

**Wissenschaftliche Berichte
FZKA-PTE Nr. 16**

Endlagerforschung

**11. Projektstatusgespräch
zu
BMWi-geförderten FuE-Projekten
bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle**

**Karlsruhe, KIT Campus Nord
25.11. - 26.11.2014**

**Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)**



Herausgeber:
Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1
76344 Eggenstein-Leopoldshafen
Internet: www.ptka.kit.edu

Februar 2015



PTKA
Projektträger Karlsruhe
Karlsruher Institut für Technologie

Vorwort

Das erste Projektstatusgespräch zur untertägigen Entsorgung fand bereits 1994 in Braunschweig statt. Das nunmehr Elfte bezieht sich ausschließlich auf BMWi-geförderte FuE-Projekte bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle und wurde am 25. und 26.11.2014 im Karlsruher Institut für Technologie (Campus Nord) veranstaltet. Es setzte die Reihe dieser Veranstaltungen fort, auf denen der aktuelle Stand der von PTKA-WTE betreuten Forschungsprojekte Fachleuten aus Wissenschaft, Behörden und Industrie sowie weiteren interessierten Teilnehmern vorgestellt wird. Die Projektstatusgespräche sind auch ein Forum, auf dem Informationsaustausch zu vielen Themen der Entsorgungsforschung möglich ist, wodurch auch der wissenschaftliche und kollegiale Austausch gefördert wird.

Das Bundesministerium für Wirtschaft und Energie (BMWi) fördert im Rahmen seiner Zuständigkeit auf Basis des Förderkonzeptes „Schwerpunkte zukünftiger FuE-Arbeiten bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle (2011 - 2014)“ anwendungsorientierte Grundlagenforschung zur Endlagerung Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle. Diese Forschung soll im Sinne der Vorsorgeforschung des Bundes zu fundierten wissenschaftlich-technischen Kenntnissen führen, die Voraussetzung und Grundlage dafür sind, dass die Sicherheit komplexer Endlagersysteme beurteilt und über lange Zeiträume nachgewiesen werden kann.

Aufgrund der großen Anzahl der von PTKA-WTE betreuten Forschungsprojekte musste für die Veranstaltung eine Auswahl aus den aktuell geförderten Vorhaben getroffen werden. Die vorgestellten Forschungsprojekte repräsentierten hierbei ein breitgefächertes fachliches Spektrum. Es wurde über FuE-Aktivitäten berichtet, die sich neben der Weiterentwicklung der Sicherheitsnachweiskonzepte für unterschiedliche Wirtsgesteine, mit Untersuchungen zur Rückholbarkeit, mit Verschlussystemen, mit Methoden der numerischen Modellierung und Visualisierung sowie mit geochemischen Prozessen zur Rückhaltung und Sorption von Radionukliden befassten. Es ist erneut klar geworden, dass die Lösung der Aufgaben in der Endlagerforschung nur multidisziplinär und interdisziplinär angegangen werden kann. Dabei hat sich der Ansatz, komplexe Fragestellungen in Verbänden zu bearbeiten, als sinnvoll und zielführend erwiesen.

Im vorliegenden Materialienband sind die Beiträge des 11. Projektstatusgesprächs zu BMWi-geförderten FuE-Projekten der Endlagerforschung zusammengefasst. Soweit die Autoren schriftliche Zusammenfassungen bereitgestellt haben, sind diese mit in die Sammlung aufgenommen worden.

Projekträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

Dr. H. Bittdorf
Dipl.-Ing. M. Bühler
Dr. H. Pitterich
Dr. W. Steininger

Der vorliegende Materialienband dient der aktuellen Unterrichtung der auf dem Gebiet der Entsorgung radioaktiver Abfälle arbeitenden Institutionen und der zuständigen Behörden.

Verantwortlich für den Inhalt sind die Autoren. Das Karlsruher Institut für Technologie (KIT) übernimmt keine Gewähr insbesondere für die Richtigkeit, Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter.

Eine auszugsweise oder vollständige Vervielfältigung ist erlaubt, wenn die Zustimmung der betroffenen Autoren vorliegt.

Inhaltsverzeichnis

Veranstaltungsprogramm	1
G. Enste, BGR.....	3
<i>Salz, Tonstein, Kristallin als Wirtsgestein für die Endlagerung in Deutschland</i>	
A. Lommerzheim, DBE Technology	36
<i>Methodik und Anwendungsbezug eines Sicherheitsnachweiskonzeptes für ein HAW-Endlager im Tonstein (Projekt AnSicht)</i>	
J. Wolf, GRS.....	58
<i>Robustheit der Sicherheitsaussage für EL-Systeme in magmatischen Gesteinen</i>	
W. Bollingerfehr, DBE Technology.....	86
<i>Untersuchungen zur Rückholbarkeit</i>	
W. Kudla, TU Bergakademie Freiberg; M. Jobmann und P. Herold, DBE Technology.....	116
<i>Forschungsvorhaben ELSA 2 – Halbtechnische Versuche zur Verdichtung von Salzgrus und Schachtverschlusskonzepte im Tonstein und Salz</i>	
O. Czaikowski, GRS.....	160
<i>Möglichkeiten und Grenzen der Demonstration ausgewählter Verschlusseigenschaften im Labor und ihre Auswirkungen auf die Modellierung (Projekt DOPAS)</i>	
A. Hampel, Wissenschaftlicher Berater.....	187
<i>Verbundprojekt zum Stoffgesetzvergleich für Steinsalz: Aktuelle Arbeiten zur Modellierung der Verheilung</i>	
K. Wieczorek, GRS	209
<i>Virtuelles Untertagelabor im Salz</i>	
H. Geckeis, Karlsruher Institut für Technologie; T. Reich, Universität Mainz; M. Acker, TU Dresden.....	241
<i>Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen</i>	
V. Brendler, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf.....	287
<i>Rückhaltungsmodelle für Spaltprodukte – Quantifizierung und Abbau von Unsicherheiten</i>	
U. Noseck, GRS.....	324
<i>Eine neue Methode zur Integration von Sorptionsprozessen in die Langzeitsicherheitsanalyse</i>	

Anmeldung

Anmeldeformular:

<http://www.ptka.kit.edu/wte/146.php>

Anmeldeformular bitte zurücksenden
oder faxen an: 0721 608 22377
Um Anmeldung bis zum 7.11.2014 wird
gebeten.

Die Teilnahme ist kostenlos.

Veranstaltungsort

Fortbildungszentrum für Technik und Umwelt
(FTU)
KIT - Campus-Nord -
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1
76344 Eggenstein-Leopoldshafen

Hinweise zur Anreise:

<http://www.fortbildung.kit.edu/anfahrt.php>



Information

Organisation:

Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
KIT Campus Nord
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1
76344 Eggenstein-Leopoldshafen

Ansprechpartner:

Dr. Holger Bittdorf
Telefon: 0721 608 25792
E-Mail: holger.bittdorf@kit.edu
Dipl.-Ing. Michael Bühler
Telefon: 0721 608 24844
E-Mail: michael.buehler@kit.edu



PTKA
Projektträger Karlsruhe
Karlsruher Institut für Technologie

www.ptka.kit.edu/wte

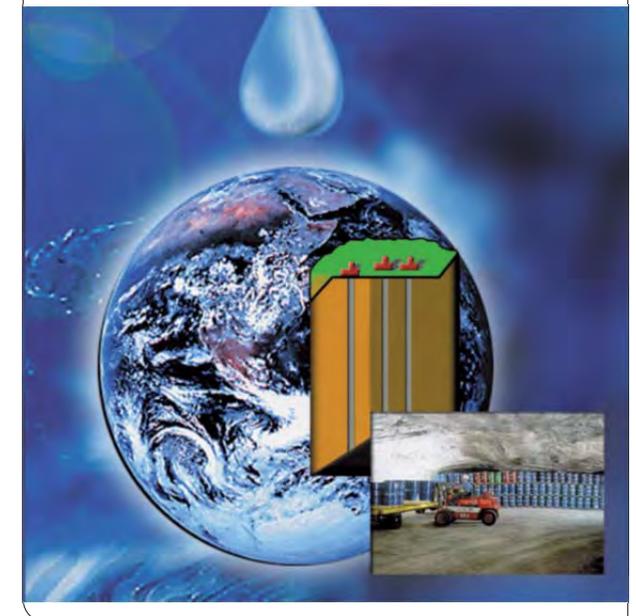


11. Projektstatusgespräch zu

BMW-geförderten FuE- Projekten bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle

Karlsruhe
25.11. - 26.11.2014

Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)



Programm

Dienstag, 25. November 2014

13:00 - 13:15

Begrüßung

U. Breuer, Vizepräsident, Karlsruher Institut für Technologie

13:15 - 14:00

Salz, Tonstein, Kristallin als Wirtsgestein für die Endlagerung in Deutschland

G. Enste, BGR

14:00 - 14:30

Methodik und Anwendungsbezug eines Sicherheitsnachweiskonzeptes für ein HAW-Endlager im Tonstein (Projekt AnSicht)

A. Lommerzheim, DBE Technology

14:30 - 15:00

Robustheit der Sicherheitsaussage für EL-Systeme in magmatischen Gesteinen

J. Wolf, GRS

15:00 – 15:30

Untersuchungen zur Rückholbarkeit

W. Bollingerfehr, DBE Technology

15:30 - 16:00

Kaffeepause

16:00 - 16:45

Forschungsvorhaben ELSA 2 – Halbtechnische Versuche zur Verdichtung von Salzgrus und Schachtverschlusskonzepte im Tonstein und Salz

W. Kudla, TU Bergakademie Freiberg; M. Jobmann und P. Herold, DBE Technology

16:45 - 17:30

Möglichkeiten und Grenzen der Demonstration ausgewählter Verschlusseigenschaften im Labor und ihre Auswirkungen auf die Modellierung (Projekt DOPAS)

O. Czaikowski, GRS

17:30 - 18:15

Verbundprojekt zum Stoffgesetzvergleich für Steinsalz: Aktuelle Arbeiten zur Modellierung der Verheilung

A. Hampel, Wissenschaftlicher Berater

18:30 - 21:00

Empfang

Mittwoch, 26. November 2014

09:00 - 09:45

Virtuelles Untertagelabor im Salz

K. Wieczorek, GRS

09:45 - 10:30

Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen

H. Geckeis, Karlsruher Institut für Technologie; T. Reich, Universität Mainz; M. Acker, TU Dresden

10:30 - 11:00

Kaffeepause

11:00 -11:45

Rückhaltungsmodelle für Spaltprodukte – Quantifizierung und Abbau von Unsicherheiten

V. Brendler; Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

11:45 - 12:30

Eine neue Methode zur Integration von Sorptionsprozessen in die Langzeitsicherheitsanalyse

U. Noseck, GRS

12:30

Schlusswort

Ab 12:45

Mittags-Imbiss vom Buffet

13:15

Bustransfer zum Hauptbahnhof Karlsruhe

Salz, Tonstein, Kristallin als Wirtsgestein für die Endlagerung in Deutschland

Bundesanstalt für Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

Stilleweg 2

30655 Hannover

www.bgr.bund.de

11. Projektstatusgespräch Karlsruhe



Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

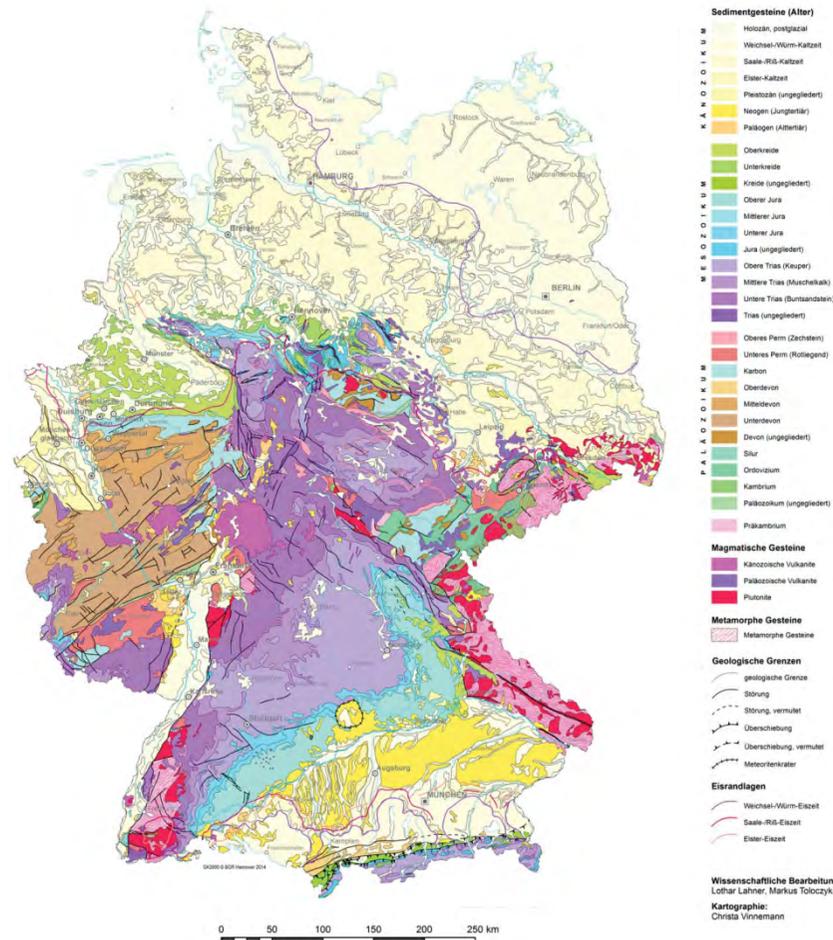
GEOZENTRUM HANNOVER

Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfallstoffe gemäß § 3 Standortauswahlgesetz



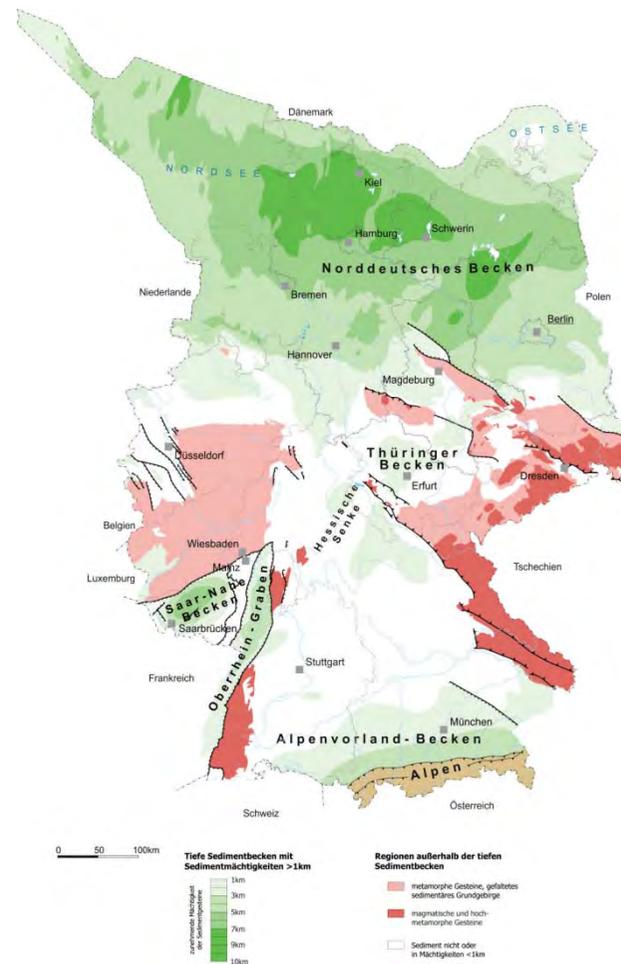
11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

Geowissenschaftliche Karte der Bundesrepublik Deutschland (Geologie)



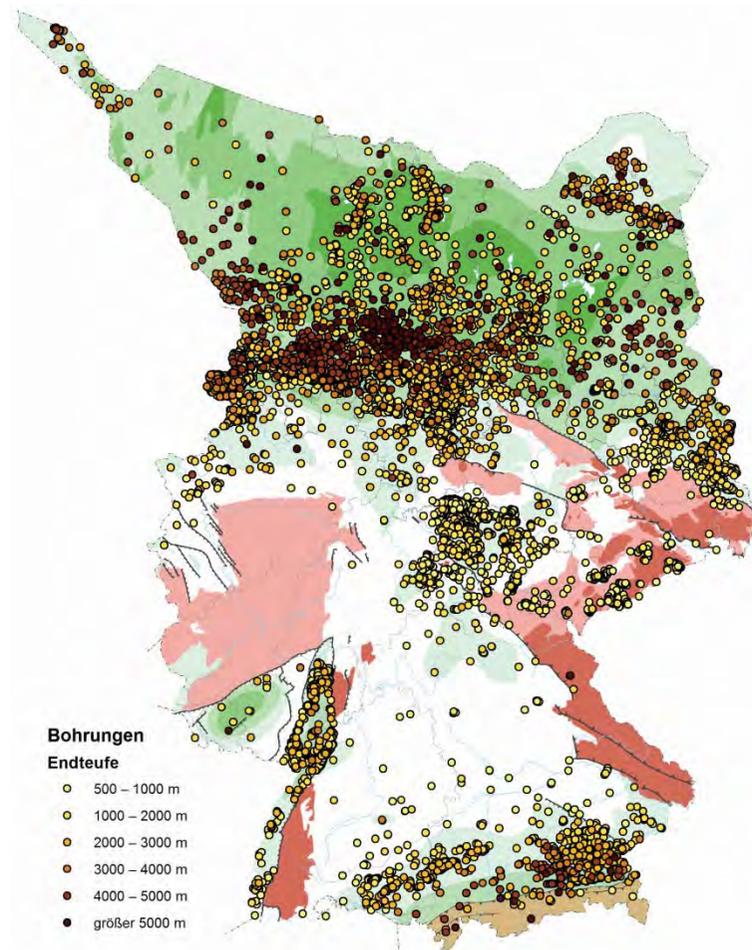
11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

Übersichtskarte mit tiefen Sedimentbecken in Deutschland



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

Übersichtskarte mit Tiefbohrungen in Deutschland

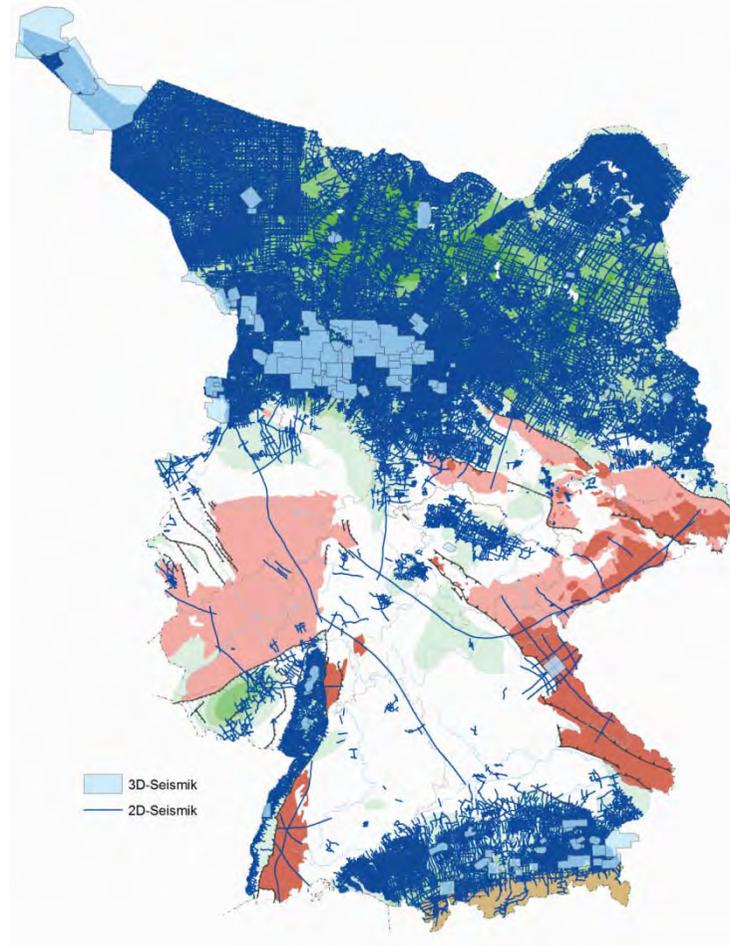


11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

BGR Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

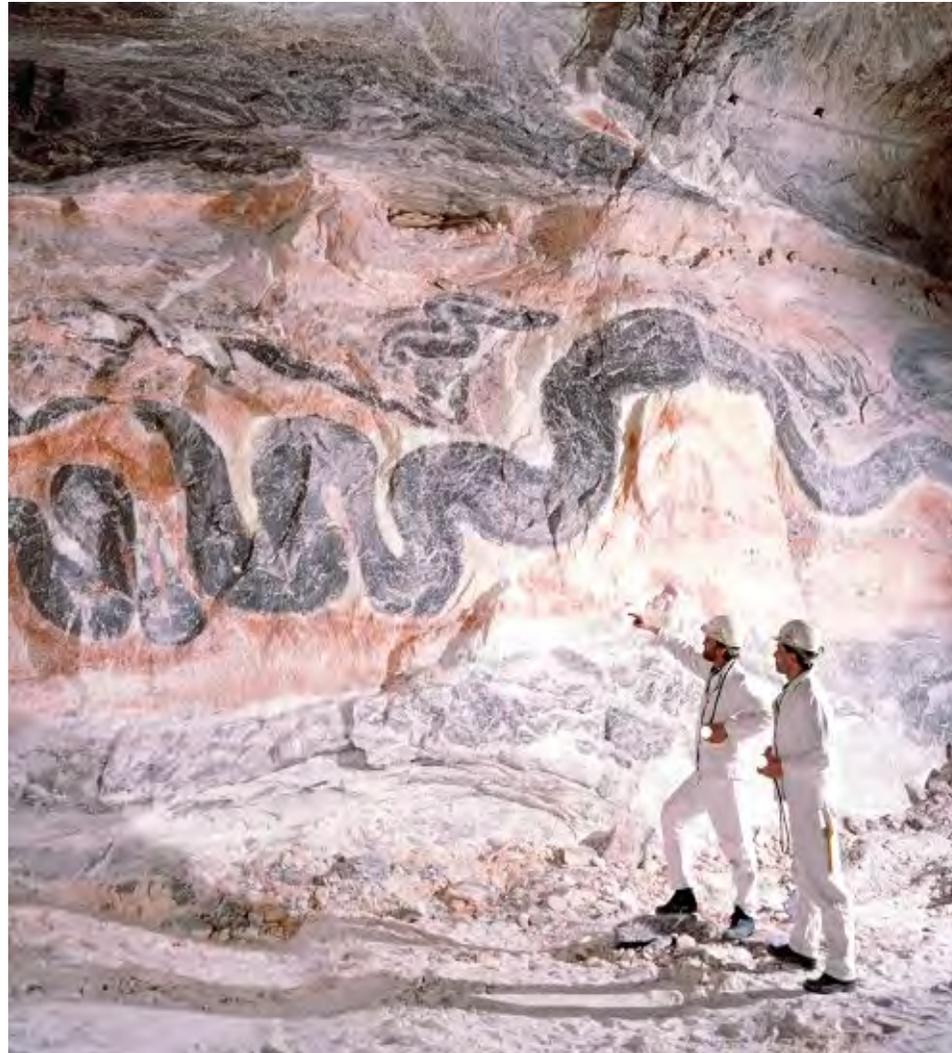
GEOZENTRUM HANNOVER

Übersichtskarte mit seismischen Untersuchungen in Deutschland



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

Salz



Werrarevier,Quelle: K+S

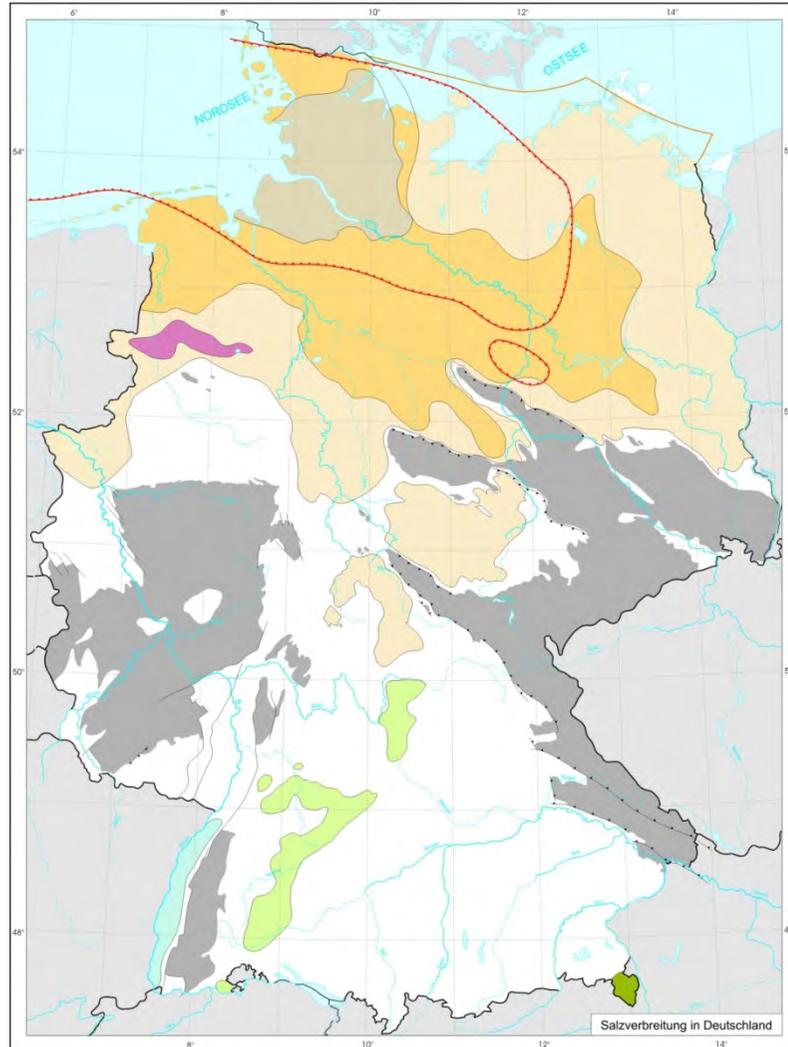
11. Projektstatusgespräch Karlsruhe



Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

Vorkommen von Salzformationen in Deutschland

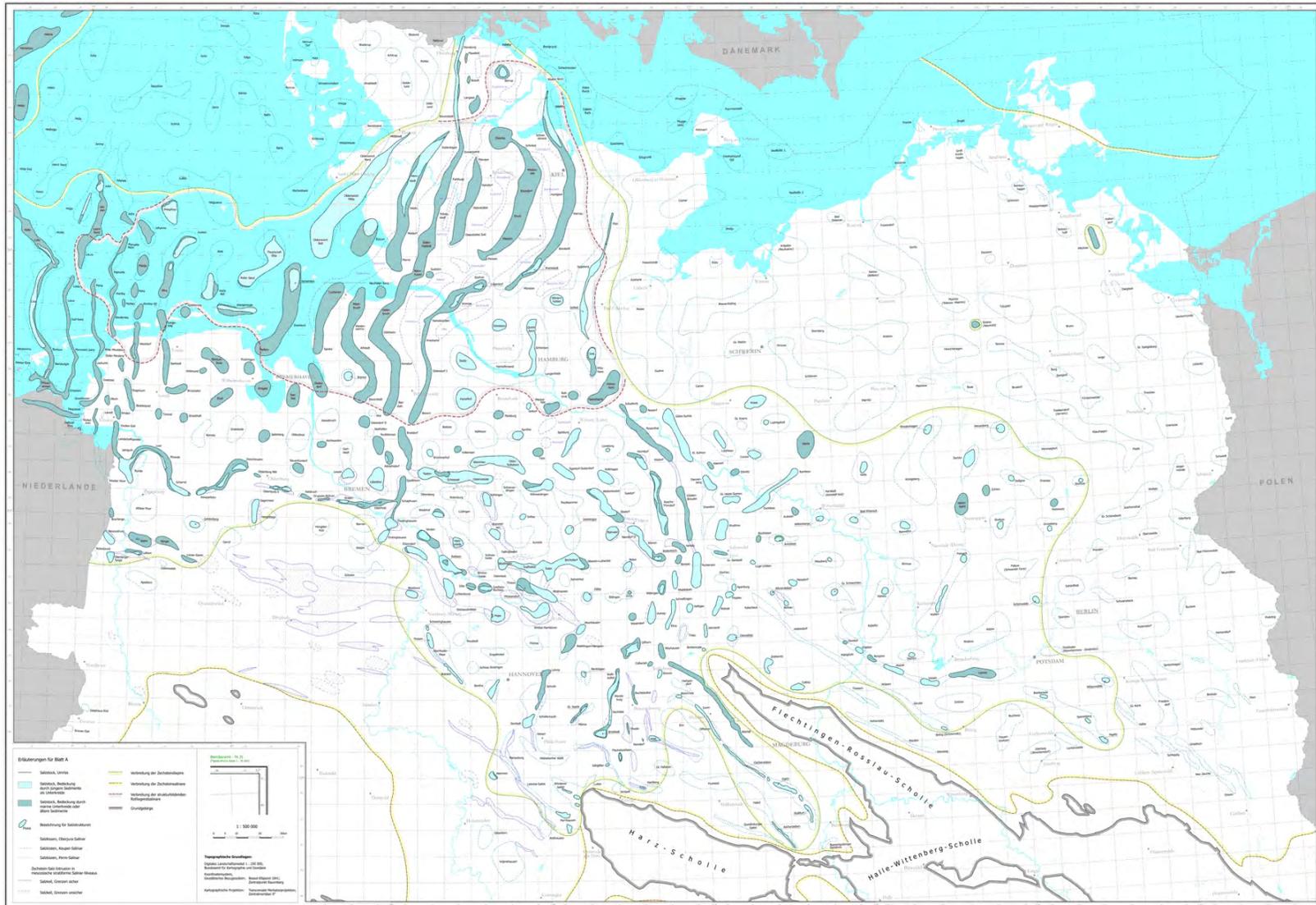


11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

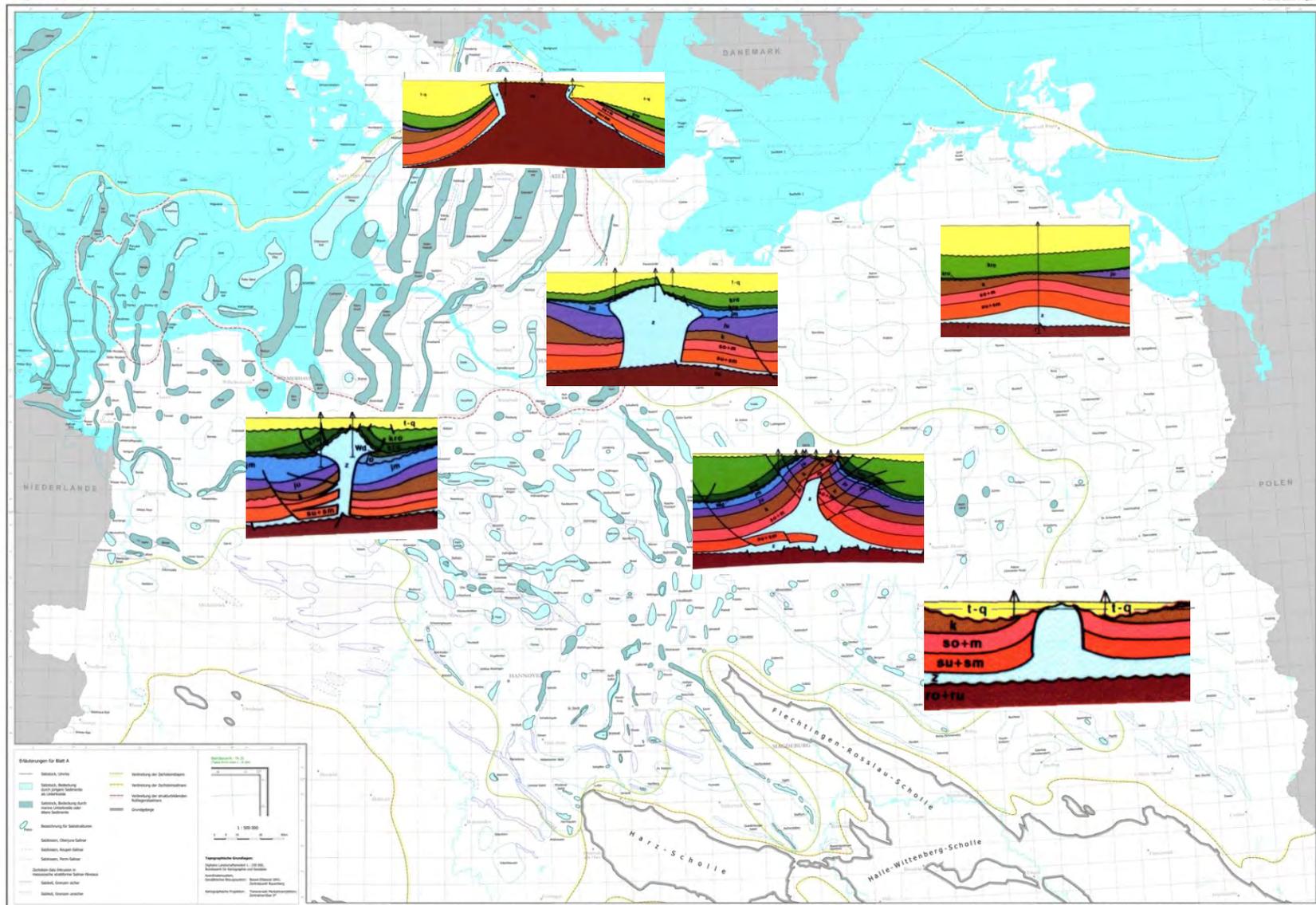


GEOZENTRUM HANNOVER

Quelle: Krull 2004



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

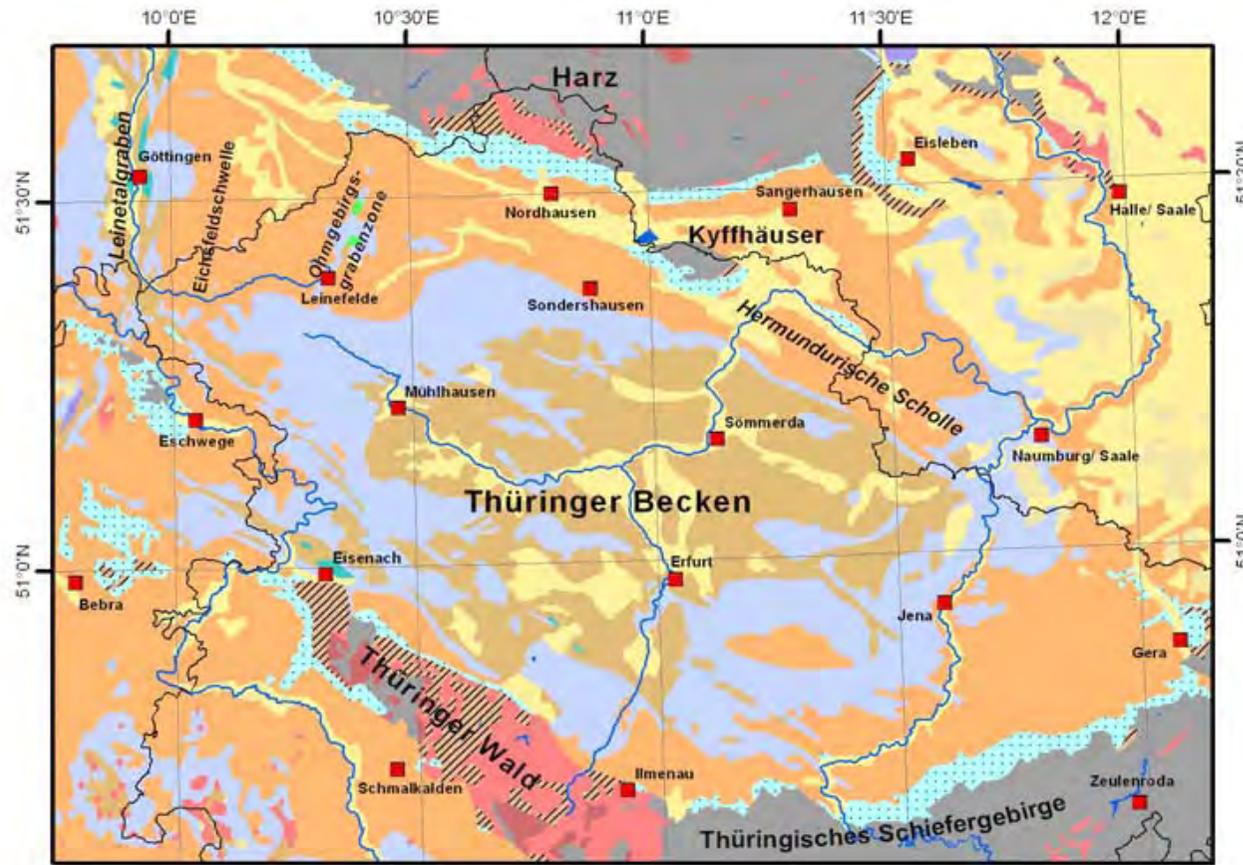


11. Projektstatusgespräch Karlsruhe



Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER



LEGENDE

Quartär	Trias (ungegliedert)	Perm (ungegliedert)	anstehendes metamorphes und gefaltetes sedimentäres Grundgebirge
Tertiär	Keuper	Rotliegendes	anstehendes magmatisches Grundgebirge
Kreide	Muschelkalk	Zechstein	anstehende Vulkanite
Jura	Buntsandstein		

11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

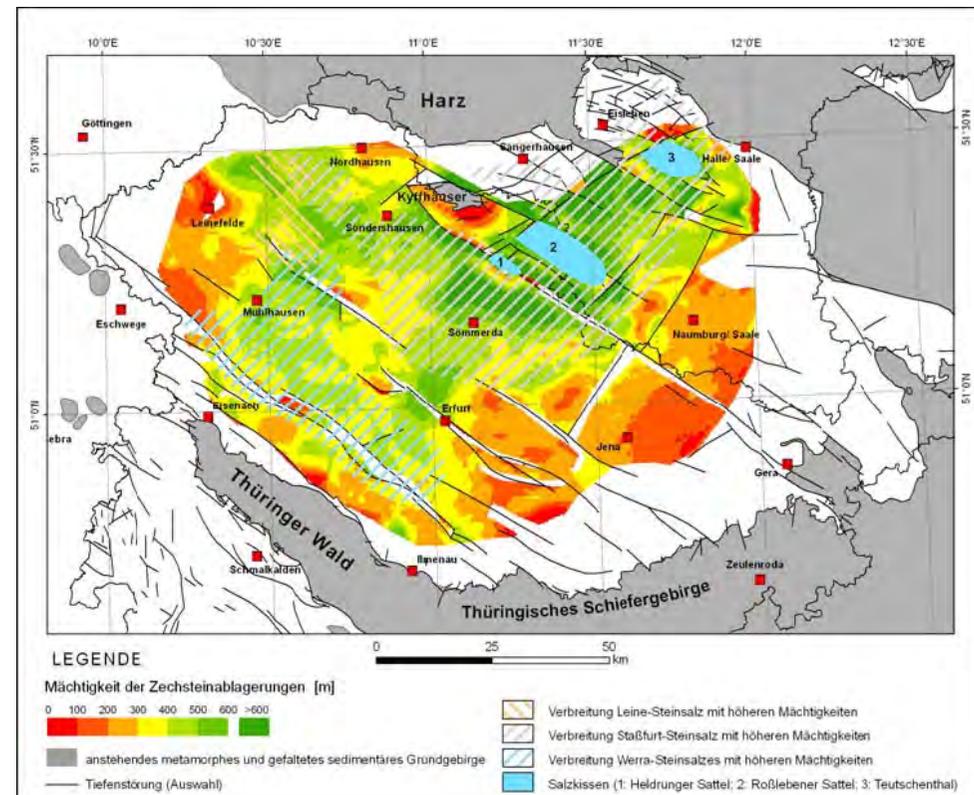
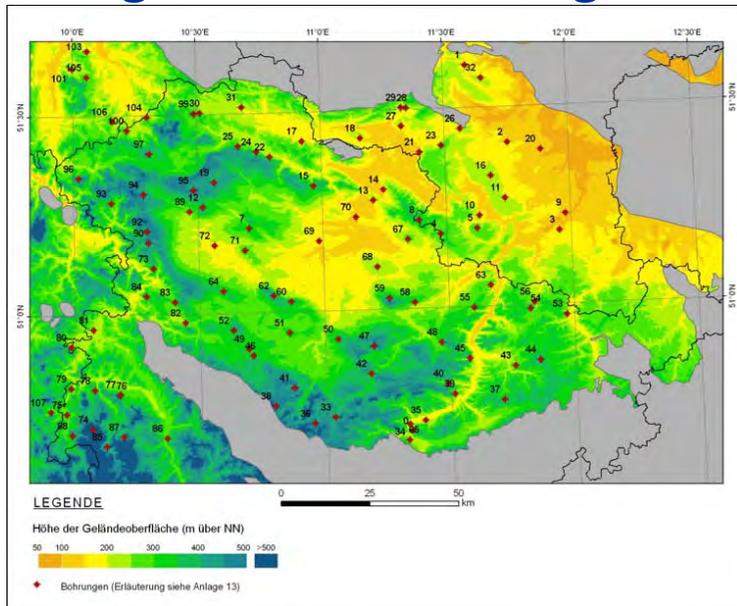


Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

Thüringer Becken

Lage der Tiefbohrungen



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

Thüringer Becken

Werra-Folge

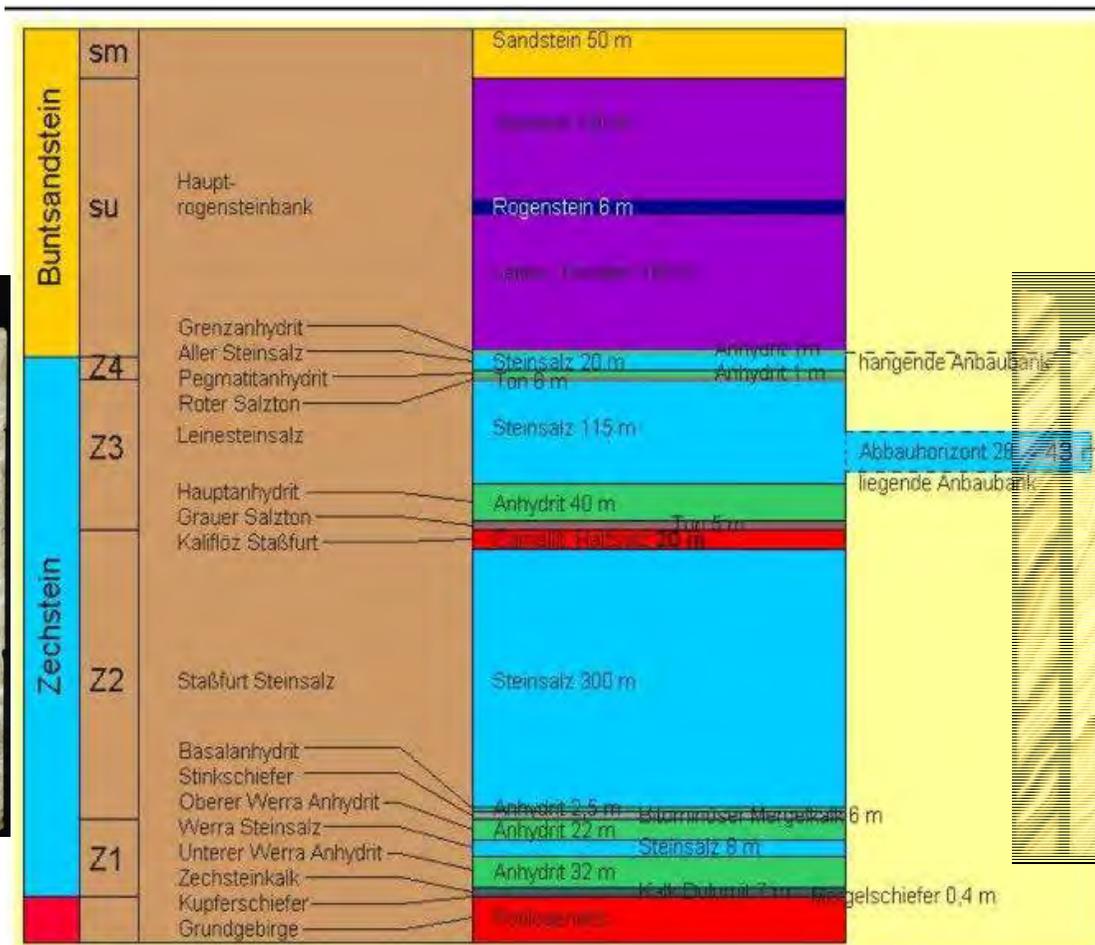
	Lithostratigraphische Bezeichnung	Thüringer Becken ¹⁾		
		Mächtigkeit [m]	Ausbildung	
Hangendes	Staßfurt-Karbonat Staßfurt-Ton	0 - 2		
•	Oberer Werra-Karbonat	z1CAb	–	wenige Meter mächtiger Dolomit
	Oberer Werra-Anhydrit	z1 ANc	0 - 130	Anhydrit („gebändert“) mit dolomitischen und tonig-bituminösen Einlagerungen
	Oberer Werra-Ton	z1To	0 - 5	im südlichen Teil des Beckens ein wenige Meter mächtiger Tonstein
	Werra-Steinsalz	z1NAa	0 - 200	Steinsalz, hellgrau, durchsetzt mit Anhydrit, Tonstein und Kalisalzen
	Unterer Werra-Anhydrit	z1ANa	0 - 150	Anhydrit mit dolomitischen und tonig-bituminösen Einlagerungen
	Unteres Werra-Karbonat	z1CAa	0 - 40	Dolomit, in Rifffazies übergehend, z.T. mit Mittlerem Werraton
	Kupferschiefer	z1Ta	0 - 1	Tonmergel, grauschwarz, im liegenden z.T. mit Mutterflöz
	Zechsteinkonglomerat	z1C	0 - 10	Konglomerat, grau, stark sandig, z.T. übergehend in Sandstein
Liegendes	Oberrotliegend			

11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

Quelle: Seidel 1992 und 2003

Verbreitung und Eigenschaften flach lagernder Salzsichten in Deutschland

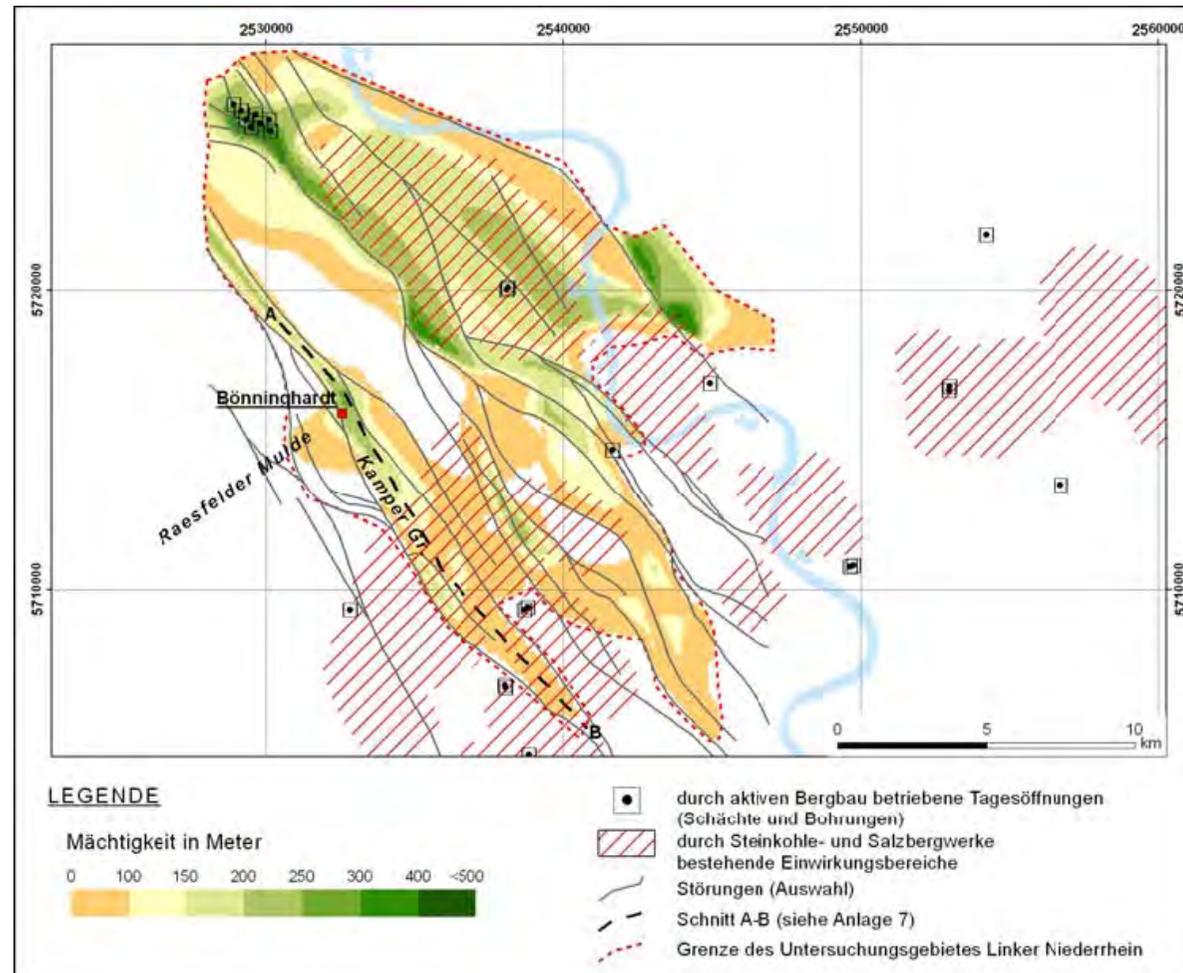
- Salzstock
- bis 3000 m mächtig
- homogener



- Flache Lagerung
- ca. 300 m mächtig
- heterogener



Salzvorkommen Niederrhein

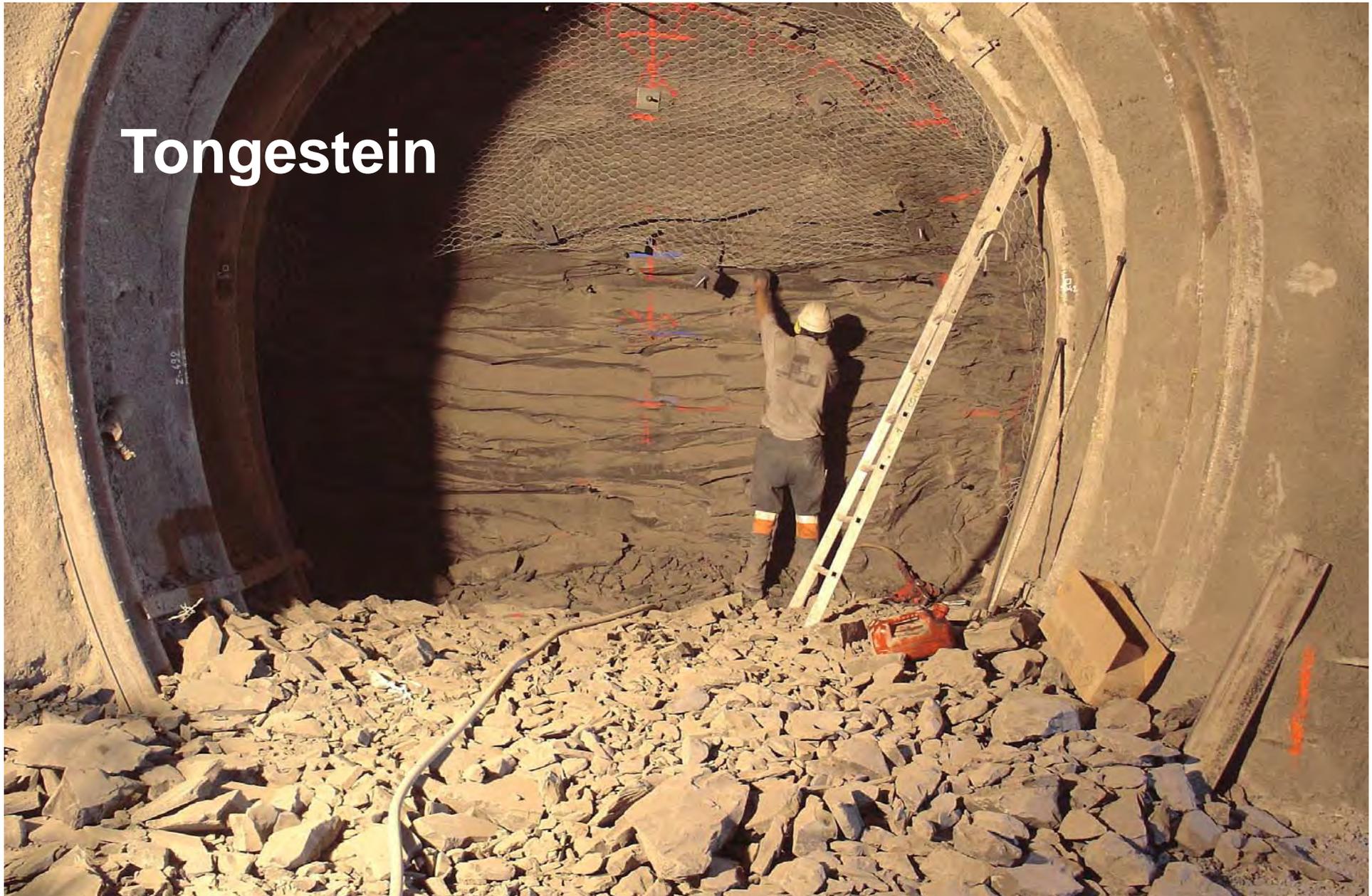


11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

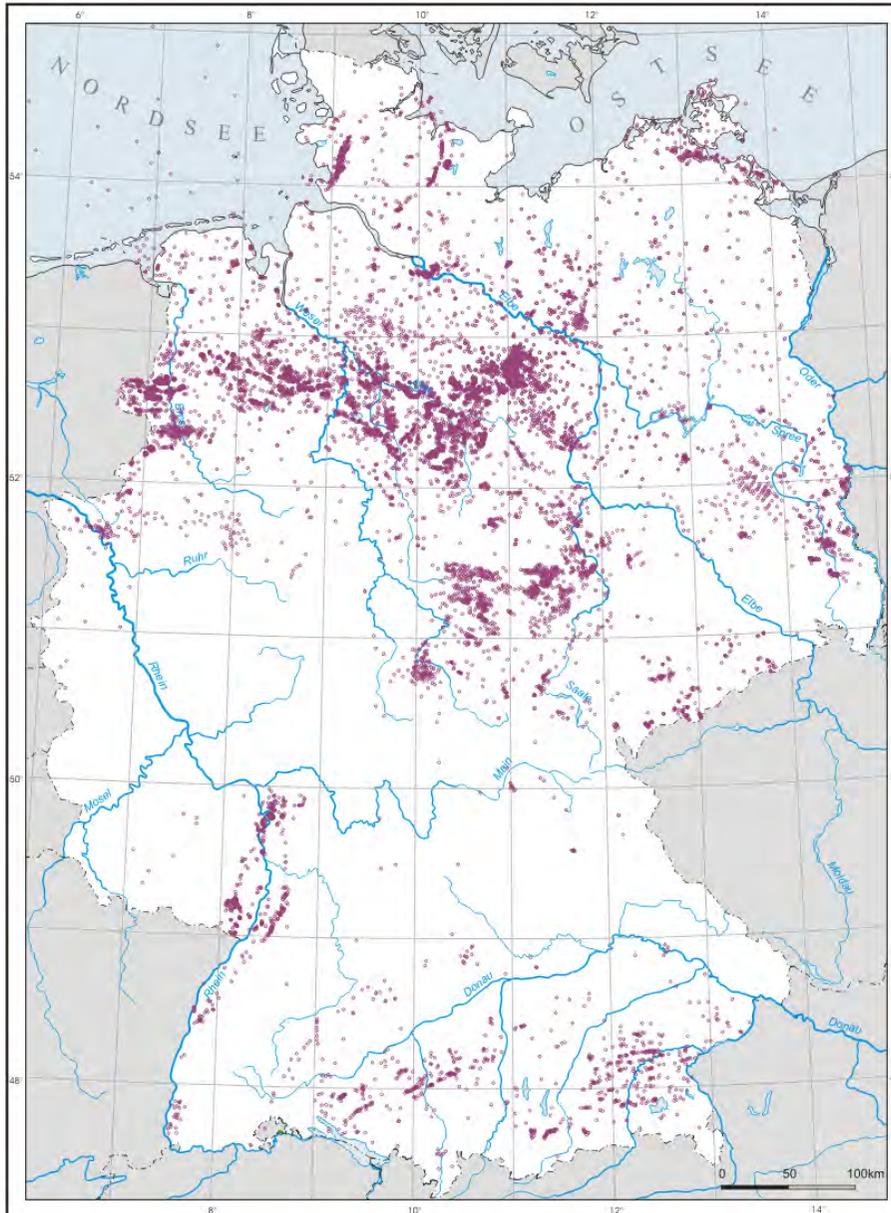
BGR Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

Tongestein



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe



„Tonstudie“ der BGR

**Bohrungen
(ca. 25 000)**

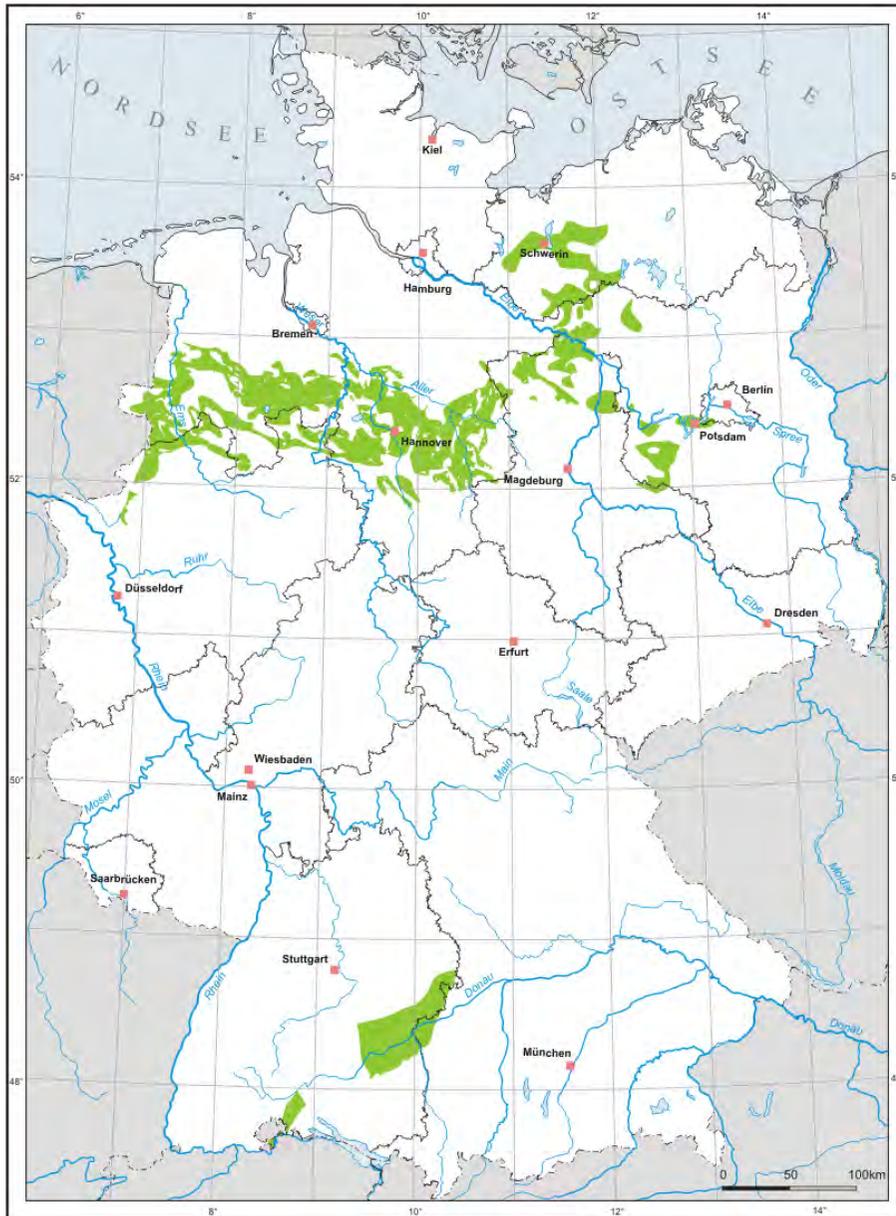
Tiefenbereich >300 m

11. Projektstatusgespräch Karlsruhe



Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER



BGR-Tonstudie (Hoth et al. 2007)

Untersuchungswürdige Tongesteinsformationen in Deutschland

Gebirgsdurchlässigkeit
kleiner 10^{-10} m/s

Tiefenlage
300 bis 1000 m

Ausdehnung
größer 10 km^2

Mächtigkeit
größer 100 m

System / Abteilung		Serie / Stufe	Norddeutschland		Süddeutschland	
			W	E	W	E
Tertiär	Quartär	Quartär				
	Neogen	ca. 1,8	Pliozän			
			Miozän			
			Oligozän			
	Paläogen		Eozän			
			Paläozän			
			Dan			
		ca. 65	Mastricht			
			Campan			
	Kreide	Oberkreide		Santon		
			Coniac			
			Turon			
			Cenoman			
			Alb			
Unterkreide			Apt			
			Barrême			
			Hauterive			
			Valangin			
		ca. 145	Berrias			
Jura	Oberjura (Malm)		"Serpulit"			
			"Münder Mergel"			
			"Eimbeckhäuser P.-K."			
			"Gigas-Schichten"			
			Kimmeridge			
	Mitteljura (Dogger)		"Korallenoolith"			
			"Heersumer Sch."			
			Callov			
	Unteljura (Lias)		Bathon			
			Bajoc			
		Aalen				
		Toarc				
Trias	Keuper	ca. 205	Rhät			
		O	"Steinmergelkeuper"			
		M	"Oberer Gipskeuper"			
		U	"Schilfsandstein"			
	Muschelkalk		"Unterer Gipskeuper"			
			"Lettenkeuper"			
	Buntsandstein		"Ob. Muschelkalk"			
			"Mittl. Muschelkalk"			
			"Unt. Muschelkalk"			
		O	"Röt"			
M		"Solling-Folge"				
		"Hardeggen-Folge"				
Perm	Oberperm (Zechstein)		"Detfurth-Folge"			
			"Volpriehausen-Folge"			
			"Quickborn-Folge"			
			"Bernburg-Folge"			
			"Calvörde-Folge"			
		ca. 250	"Möln-Zyklus"			
Unterperm (Rotliegend)		"Friesland-Zyklus"				
		"Ohre-Zyklus"				
		"Aller-Zyklus"				
		"Leine-Zyklus"				
		"Staßfurt-Zyklus"				
		"Werra-Zyklus"				
		Oberrotliegend				
		Unterrotliegend				

Stratigrafie der untersuchungswürdigen Tongesteinsformationen in Deutschland



Formation mit hohem Ton-/Tonsteinanteil



regionale/lokale Verbreitung von Tongesteinen mit guter räumlicher Charakterisierbarkeit - besonders endlagerrelevant



regionale/lokale Verbreitung von Tongesteinen mit stark eingeschränkter räumlicher Charakterisierbarkeit

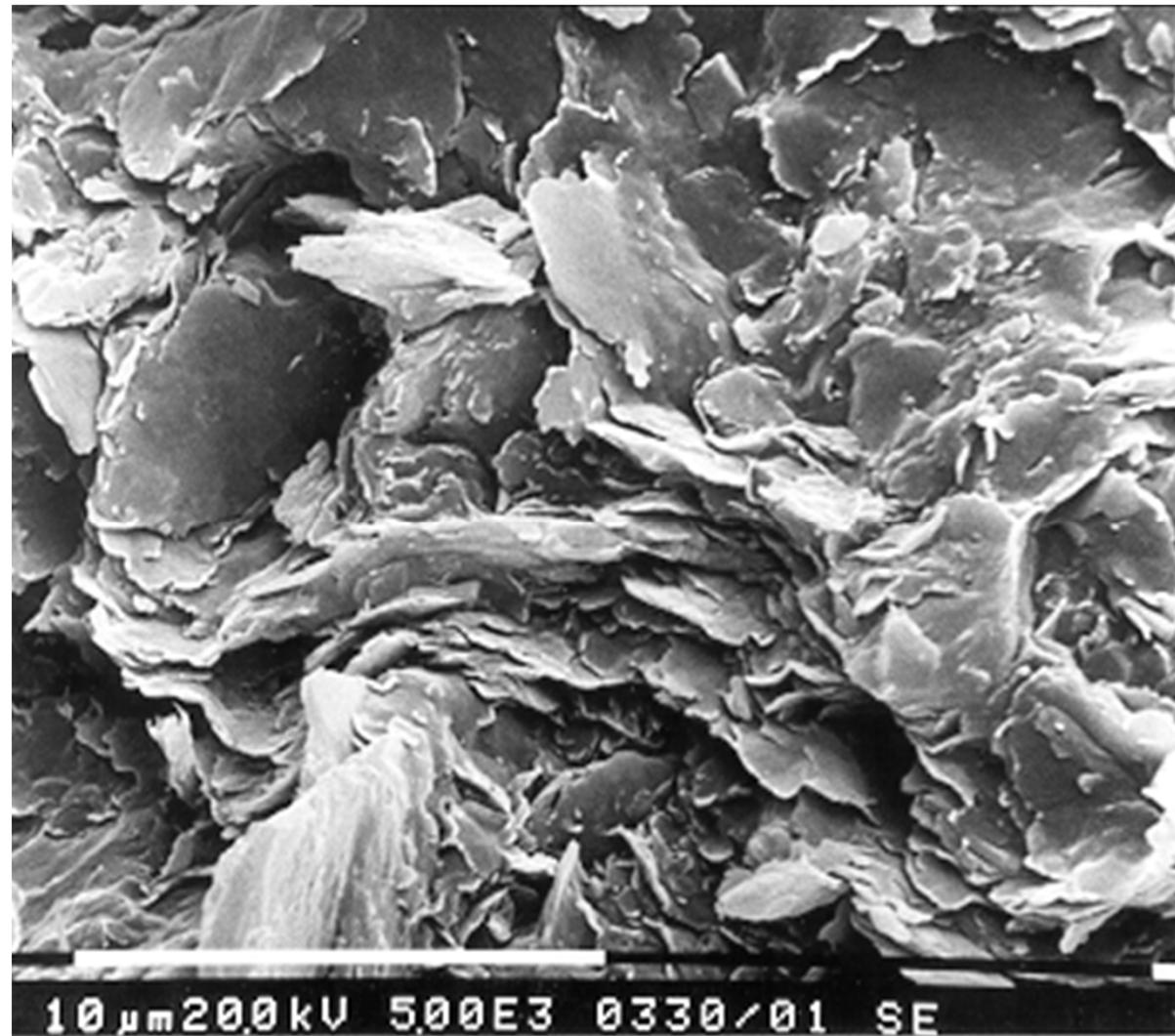


Formation mit höherem grobklastischen Anteil (Sandsteine, Siltsteine)

Tonstein

Tonstein unter dem Rasterelektronenmikroskop.

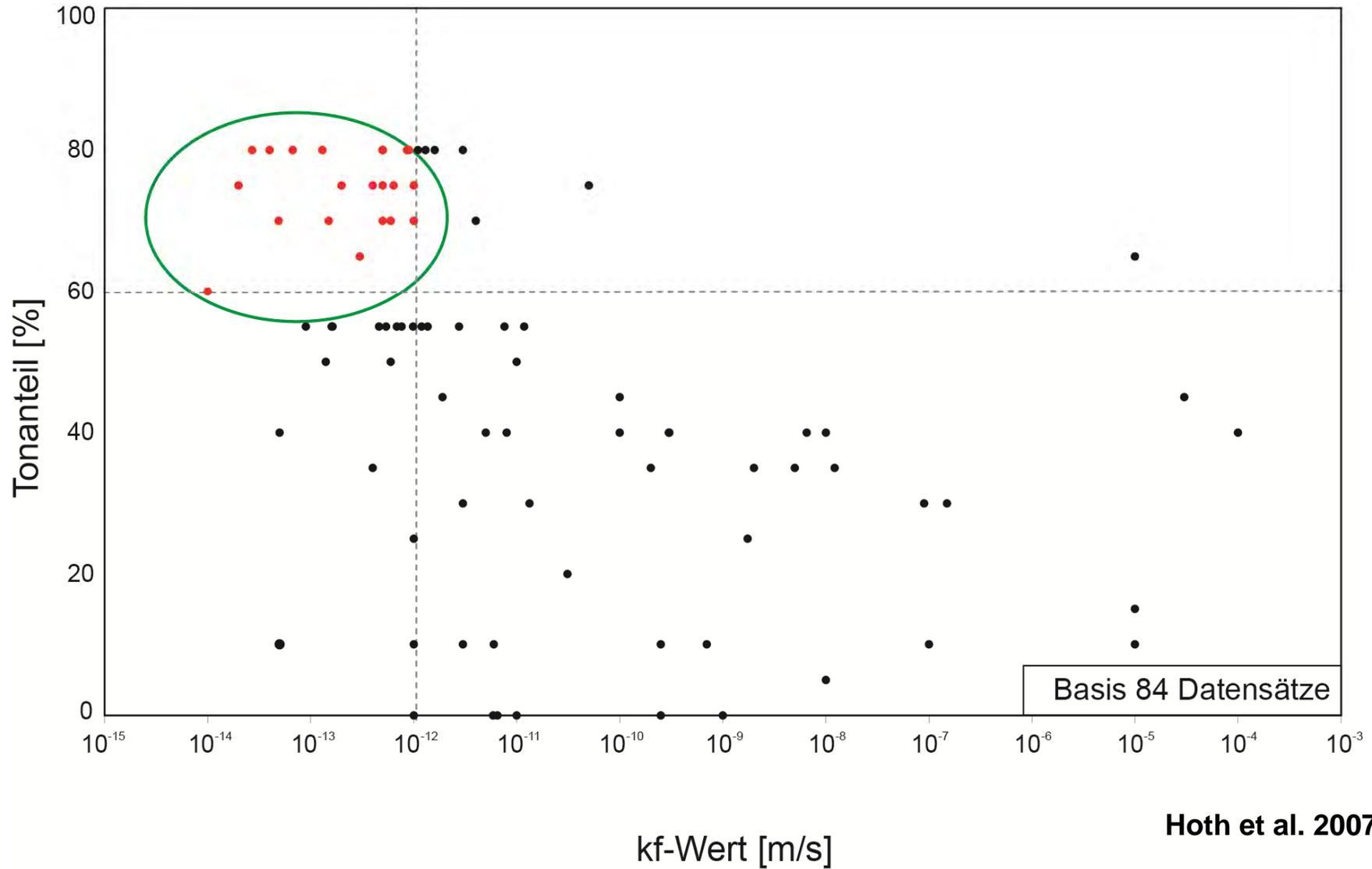
Die spezifische Oberfläche von 1 Gramm Ton kann rund 800 Quadratmeter betragen.



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

Quelle: J. Gerardi, BGR

Tonstein - Durchlässigkeit/Tonmineralanteil



Hohlraumstabilität in Tongestein



09.09.2003, 17:41



11.09.2003, 13:46



11.09.2003, 14:37



11.09.2003, 16:40



11.09.2003, 21:12



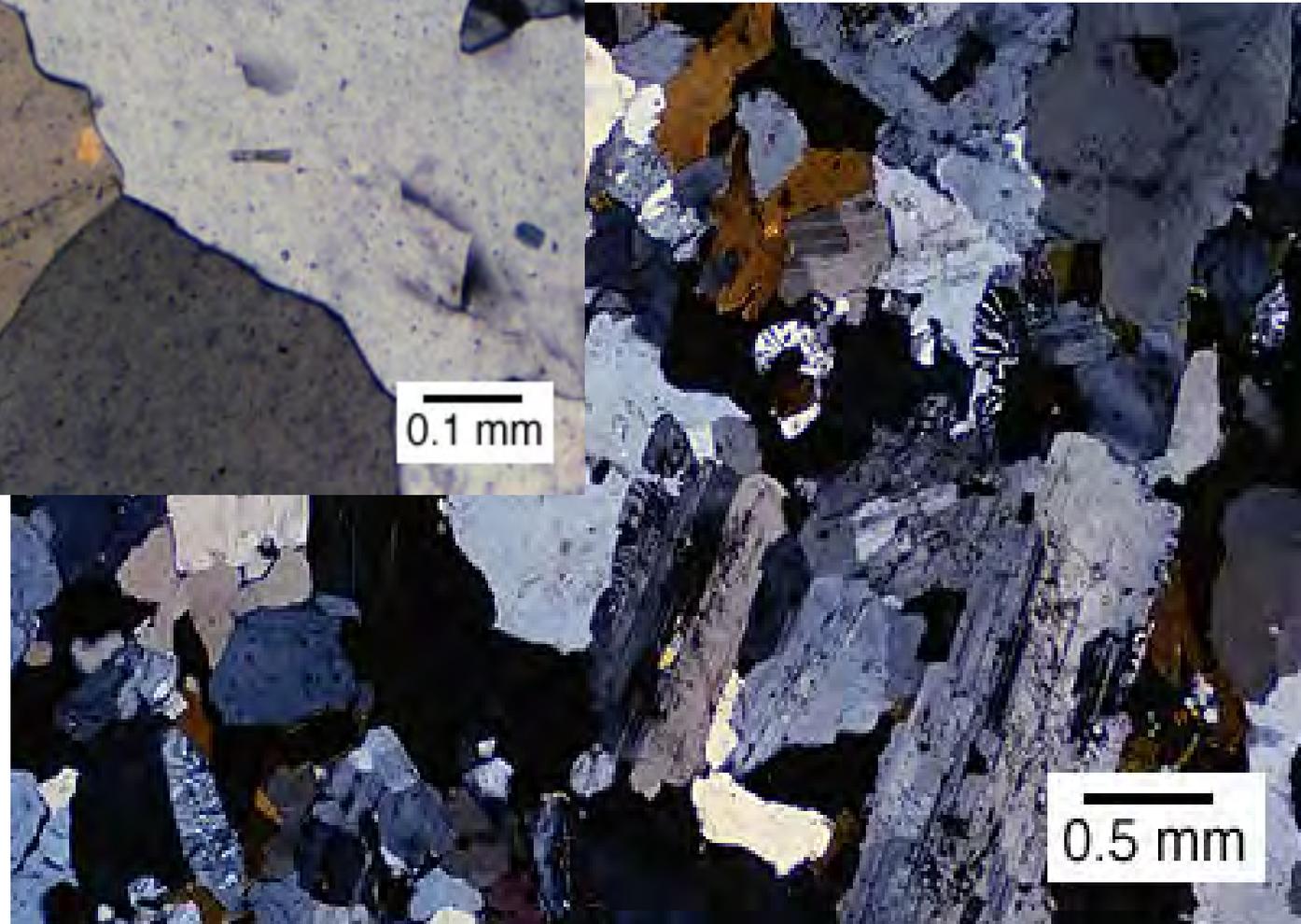
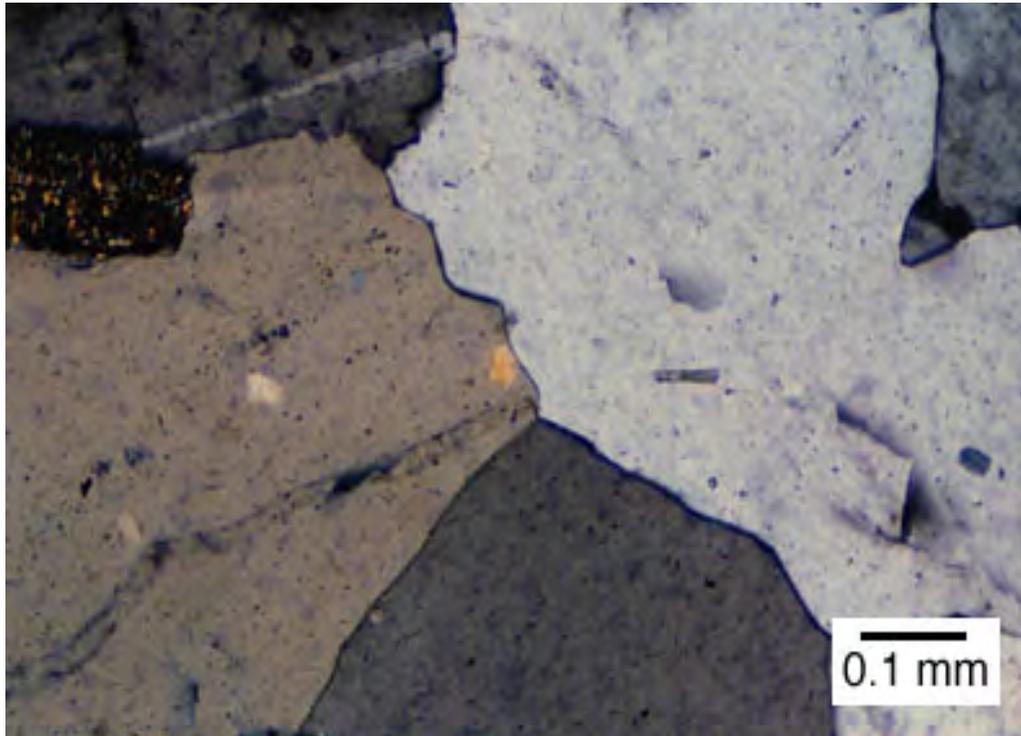
12.09.2003, 11:04

11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

BGR Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

Kristallingestein



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

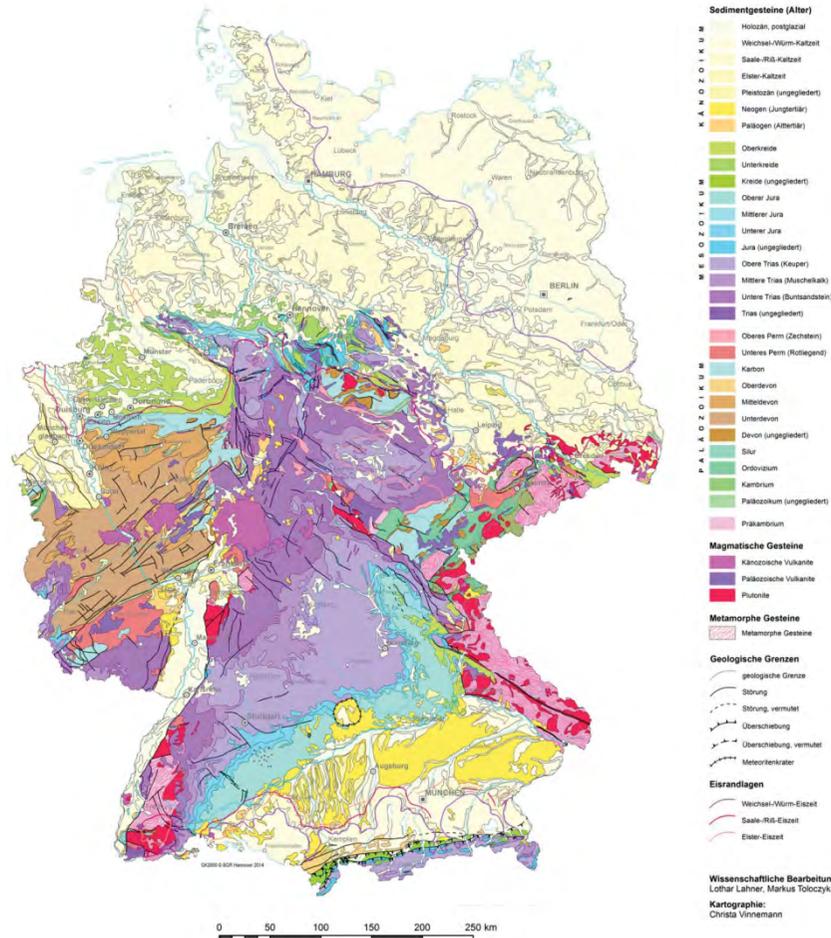
Quelle: University of British Columbia



Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

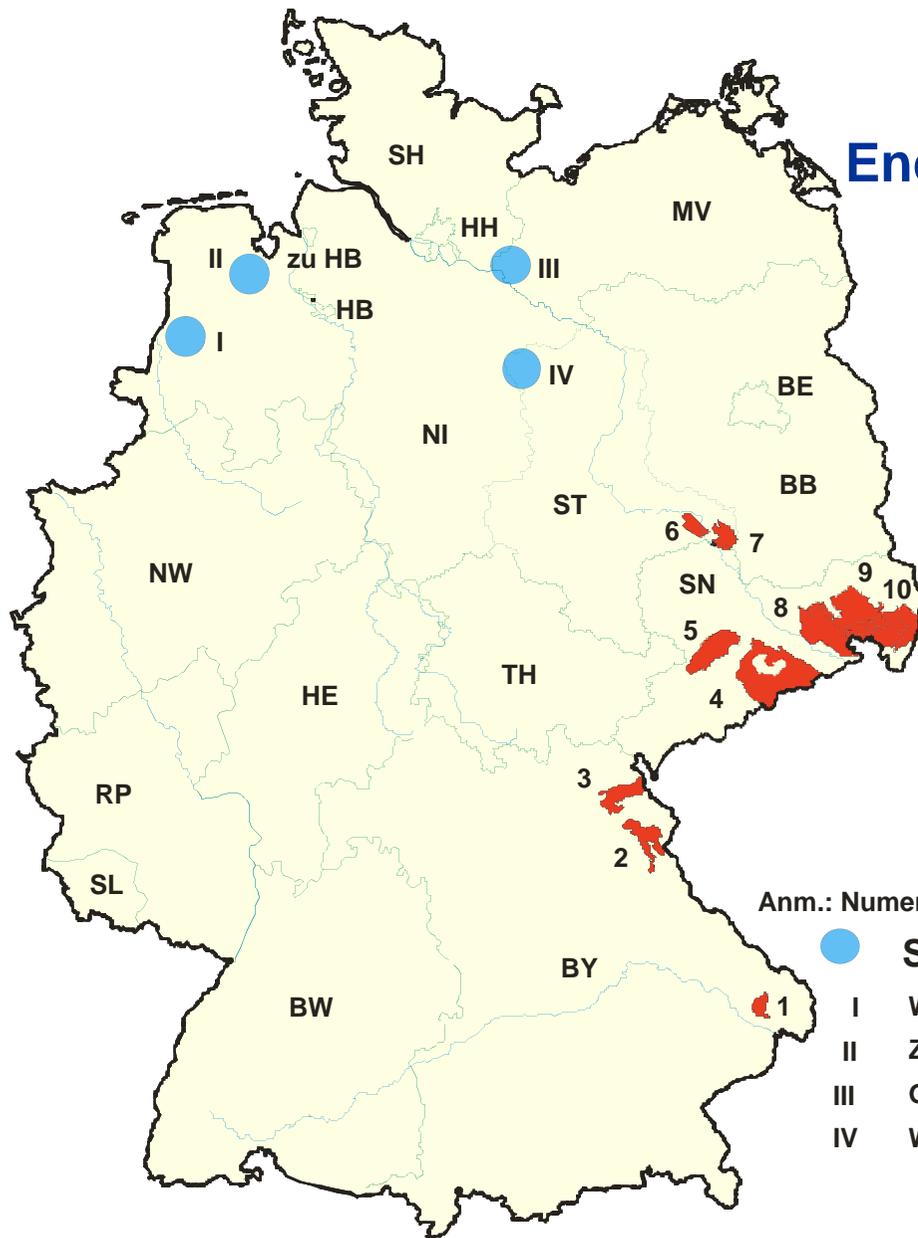
Geowissenschaftliche Karte der Bundesrepublik Deutschland (Geologie)



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

BGR Bundesanstalt für
 Geowissenschaften
 und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER



Endlagerung stark Wärme entwickelnder radioaktiver Abfälle in tiefen geologischen Formationen

Untersuchungswürdige Regionen in salinaren und kristallinen Formationen Deutschlands (1995)

Anm.: Numerierung beinhaltet keine Wertung



Salinarstrukturen

- I Wahn
- II Zwischenahn
- III Gülze - Sumte
- IV Waddekath



Kristallinregionen

- | | |
|-----------------------|--------------------|
| 1 Saldenburg | 6 Pretzsch |
| 2 Nördl. Oberpf. Wald | 7 Prettin |
| 3 Fichtelgebirge | 8 Pulsnitz |
| 4 Graugneis | 9 Radeberg - Löbau |
| 5 Granulitgebirge | 10 Zawidow |

Kristallingesteine



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe



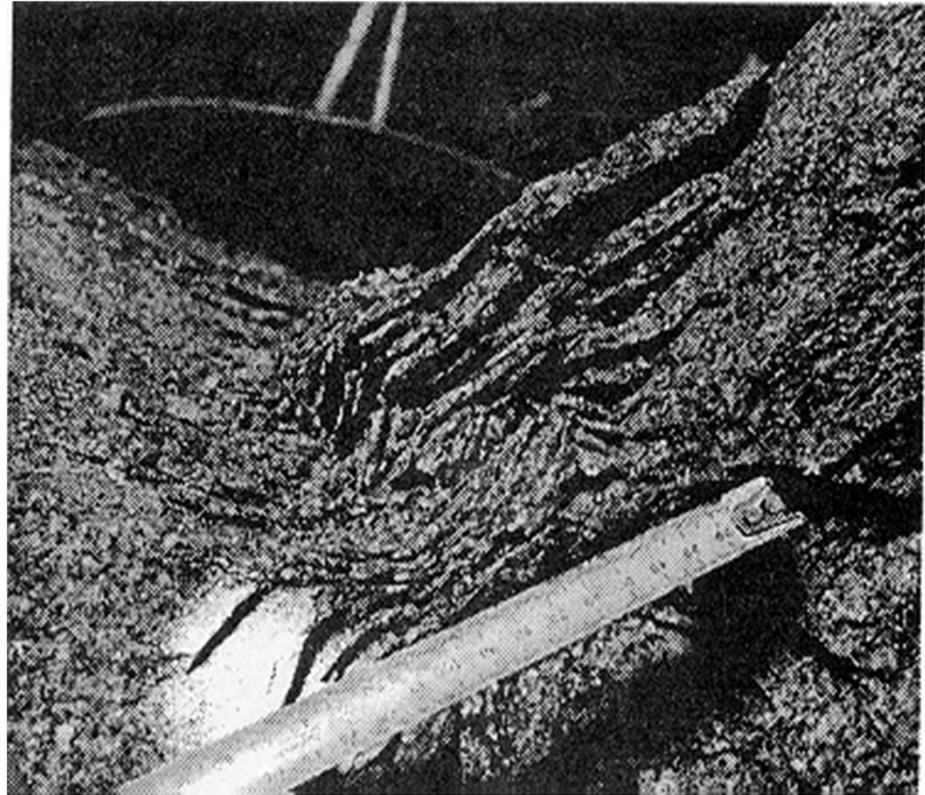
Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

Kristallingesteine



Bei großen Spannungen:
bruchhafte Deformation (ohne
Kriechen, rasches Abklingen der
Verformung)

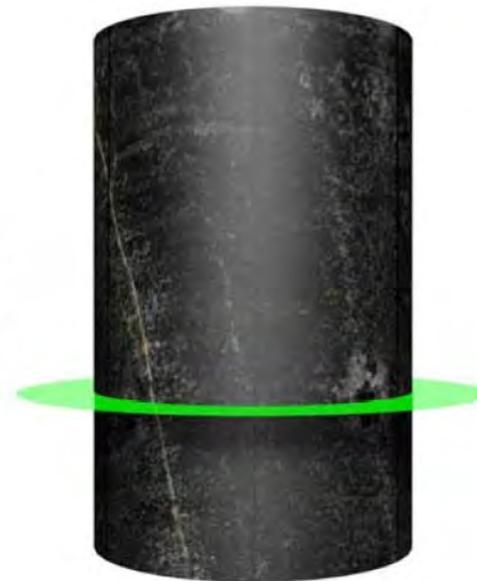
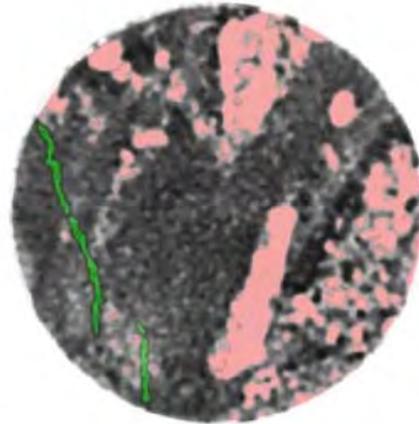
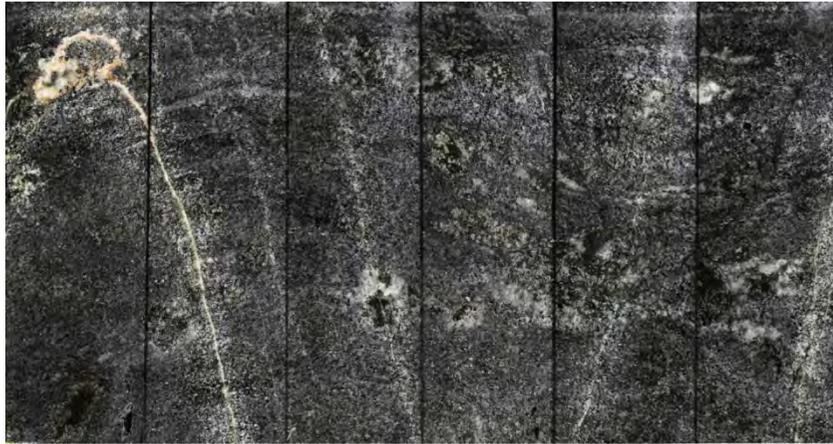


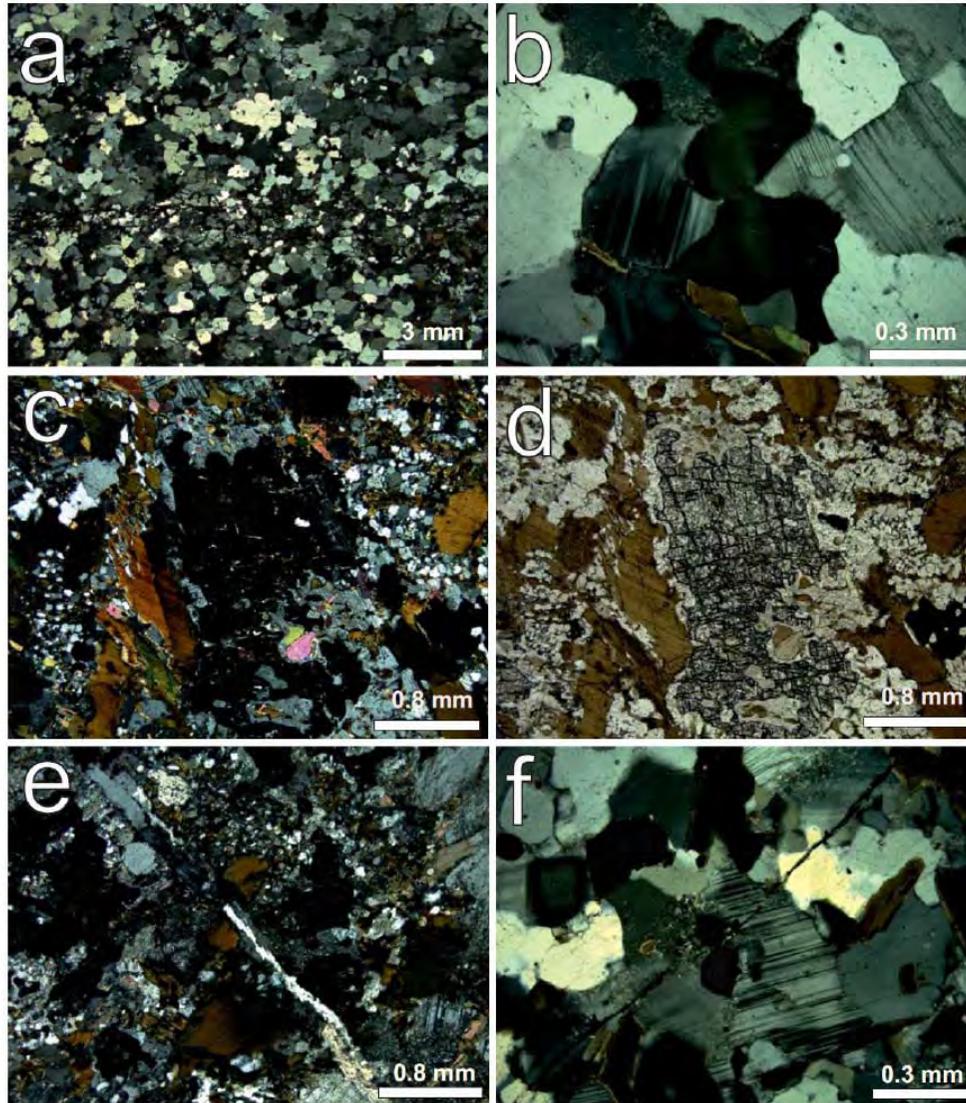
11. Projektstatusgespräch Karlsruhe

BGR Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

-Kristallingesteine



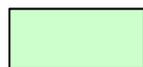


Kristallingesteine

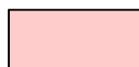
- Verheilte Klüfte
- Keine offenen Poren oder Klüfte

Wirtsgesteinseigenschaften in Deutschland

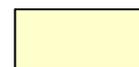
<i>Eigenschaft</i>	<i>Steinsalz</i>	<i>Ton/Tonstein</i>	<i>Kristallingestein (z. B. Granit)</i>
Temperaturleitfähigkeit	hoch	gering	mittel
Durchlässigkeit	praktisch undurchlässig	sehr gering bis gering	sehr gering (ungeklüftet) bis durchlässig (geklüftet)
Festigkeit	mittel	gering bis mittel	hoch
Verformungsverhalten	viskos (Kriechen)	plastisch bis spröde	spröde
Hohlraumstabilität	Eigenstabilität	Ausbau notwendig	hoch (ungeklüftet) bis gering (stark geklüftet)
In-situ Spannungen	lithostatisch isotrop	anisotrop	anisotrop
Lösungsverhalten	hoch	sehr gering	sehr gering
Sorptionsverhalten	sehr gering	sehr hoch	mittel bis hoch
Temperaturbelastbarkeit	hoch	gering	hoch



günstige Eigenschaft



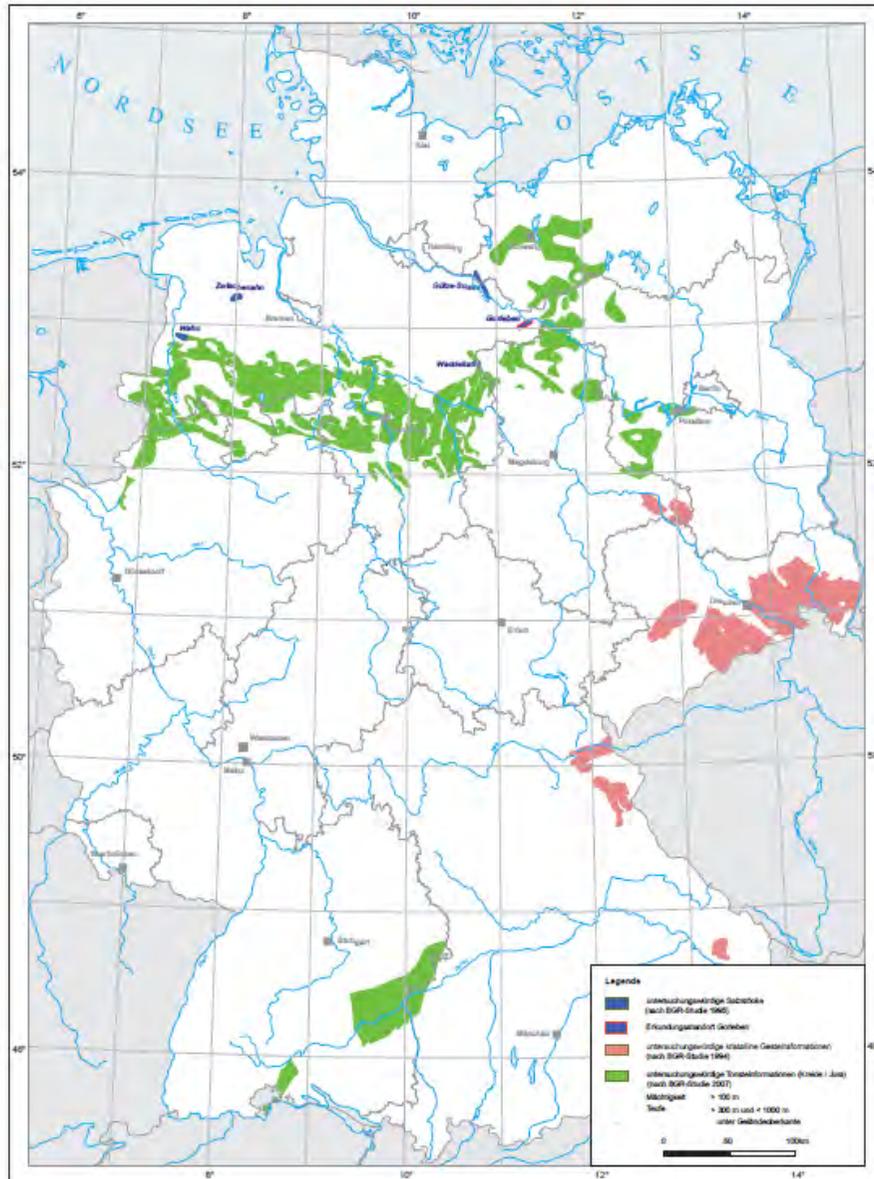
ungünstige Eigenschaft



mittel

Permeabilitäten		Steinsalz	Opalinuston	Granit (ungeklüftet)
Labor:		$k < 10^{-21} \text{ m}^2$	$k < 10^{-19} \text{ m}^2$	$\text{ca.} 10^{-20} \text{ m}^2$
In-situ:	"unverritztes" Gebirge	$k < 10^{-20} \text{ m}^2$	$k < 10^{-19} \text{ m}^2$	$k < 10^{-18} \text{ m}^2$
	Auflockerungs- bereich	$k < 10^{-14} \text{ m}^2$	$k < 10^{-16} \text{ m}^2$ bis 10^{-13} m^2	$k < 10^{-15} \text{ m}^2$

Untersuchungs- würdige Wirtsgesteins- formationen für die Endlagerung hoch radioaktiver Abfälle



11. Projektstatusgespräch Karlsruhe



Bundesanstalt für
Geowissenschaften
und Rohstoffe

GEOZENTRUM HANNOVER

Zusammenfassung

- **Die Geologie in Deutschland ist gut erschlossen**
- **Die möglichen Wirtsgesteine (Steinsalz, Tongesteine, Kristallingesteine) sind in Deutschland regional vorhanden**
- **Gute Erkundungsmethoden sind vorhanden**
- **Weitere F+E-Arbeiten zur Charakterisierung der Wirtsgesteine in Kooperation notwendig**



Methodik und Anwendungsbezug eines
Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein
HAW-Endlager im Tonstein

AnSichT

Lommerzheim, A.², Bebiolka, A.¹, Jahn, S.¹, Jobmann, M.², Maßmann, J.¹, Meleshyn, A.³,
Mrugalla, S.¹, Reinhold, K.¹, Rübel, A.³ & Stark, L.¹

¹Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe

²DBE TECHNOLOGY GmbH

³Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Die Arbeiten werden im Auftrag des Bundesministeriums für Wirtschaft und
Technologie (BMWi) unter dem Förderkennzeichen 02E11061B durchgeführt

Ziel des Vorhabens:

Überprüfung und Bewertung des erreichten Standes von Wissenschaft und Technik im Hinblick auf die Qualität und Vollständigkeit des Instrumentariums für eine sicherheitliche Bewertung von HAW-Endlagern in Tonsteinformationen in Deutschland

Grundlagen:

ISIBEL: Überprüfung und Bewertung des Instrumentariums für eine sicherheitliche Bewertung von Endlager für HAW in Salzformationen

GEIST: Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz und Tonstein (2005)

GENESIS: Untersuchungen zur sicherheitstechnischen Auslegung eines generischen Endlagers im Tonstein in Deutschland (2007)

ERATO: Referenzkonzept für ein Endlager für radioaktive Abfälle in Tongestein (2010)

ÜBERSICHT: Übertragung des Sicherheitsnachweiskonzeptes für Endlager im Salz auf andere Wirtgesteine (2009)

TemTon: Untersuchungen zur Auswirkung einer Temperaturerhöhung in Tonformationen in Deutschland im Hinblick auf die bautechnische Machbarkeit eines Endlagers und irreversible Veränderungen der potenziellen Wirtformation

Laufzeit: 2011 - 2016

ANSICHT Arbeitsprogramm

AP 1: Geologie der relevanten Tonsteininformationen und zugehöriges Endlagerkonzept

- *Geologie der Modellstandorte Nord / Süd*
- *Endlagerkonzepte incl. Rückholung / Bergbarkeit*

AP 2: Methodik des Sicherheitsnachweises für ein HAW-Endlager im Tonstein

- *Integritätsnachweis für die geotechnischen Barrieren*
- *Integritätsnachweis für die geologische Barriere*

AP 3: FEP-Selektion und Szenarientwicklung

- *Geowissenschaftliche Langzeitprognose Nord / Süd*
- *Erstellung des FEP-Katalogs Nord / Süd*
- *Szenarientwicklung Nord / Süd*

AP 4: Möglichkeit des Nachweises der Sicherheit in der Betriebs- und kontrollierten Nachbetriebsphase

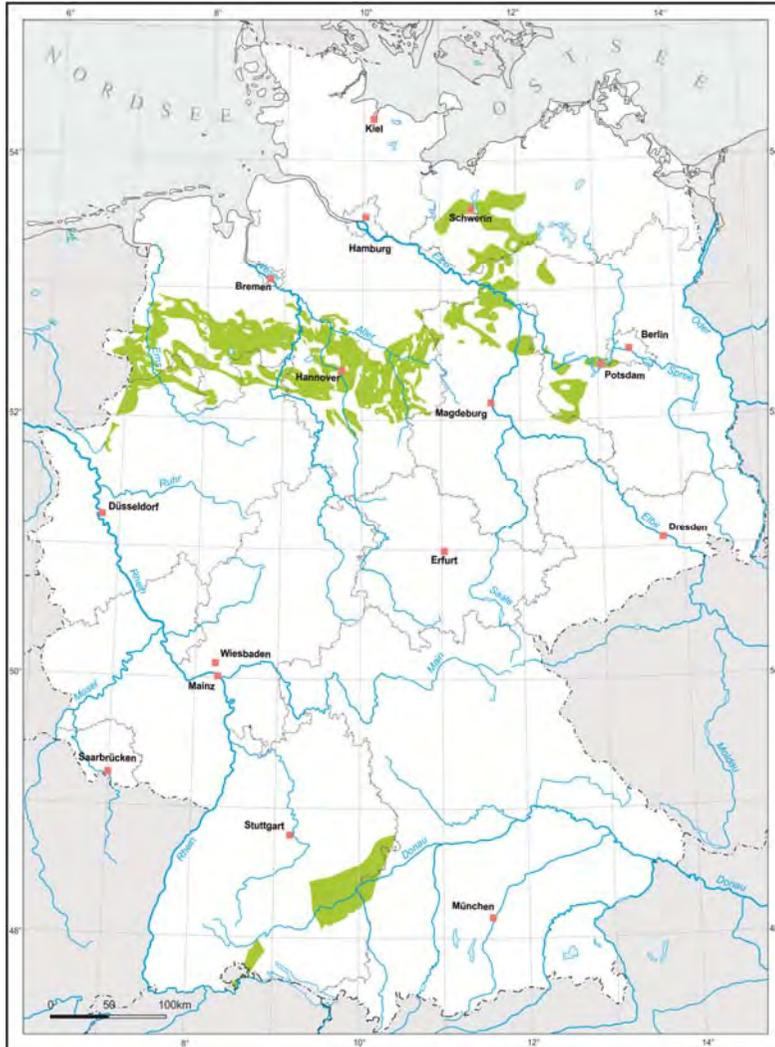
- *Sicherheitsnachweis für die Betriebs- und kontrollierte Nachbetriebsphase*
- *Schutz der Tagesoberfläche*

AP 5: Nachweiskonzept und Konsequenzenanalyse für die Langzeitsicherheit von Standorten im Tonstein

- *Erstellung eines Nachweiskonzeptes*
- *Bewertung der Datenlage und des Instrumentariums*

AP 6: Berichtswesen

Regionale Tonstudie der BGR (2007)



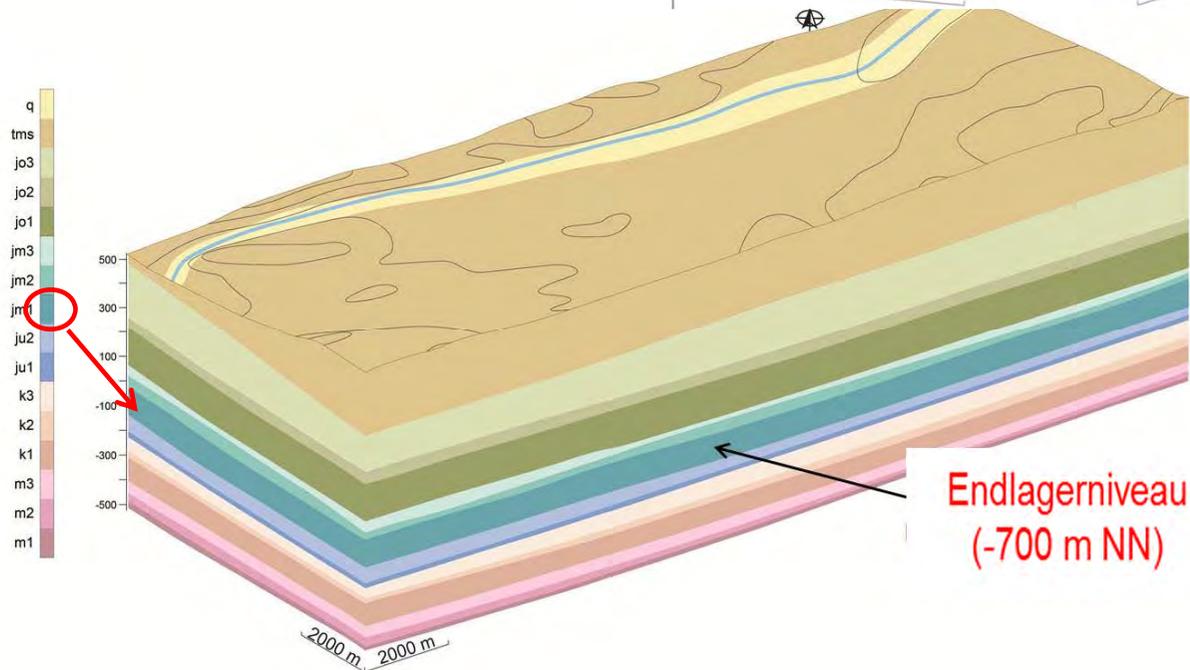
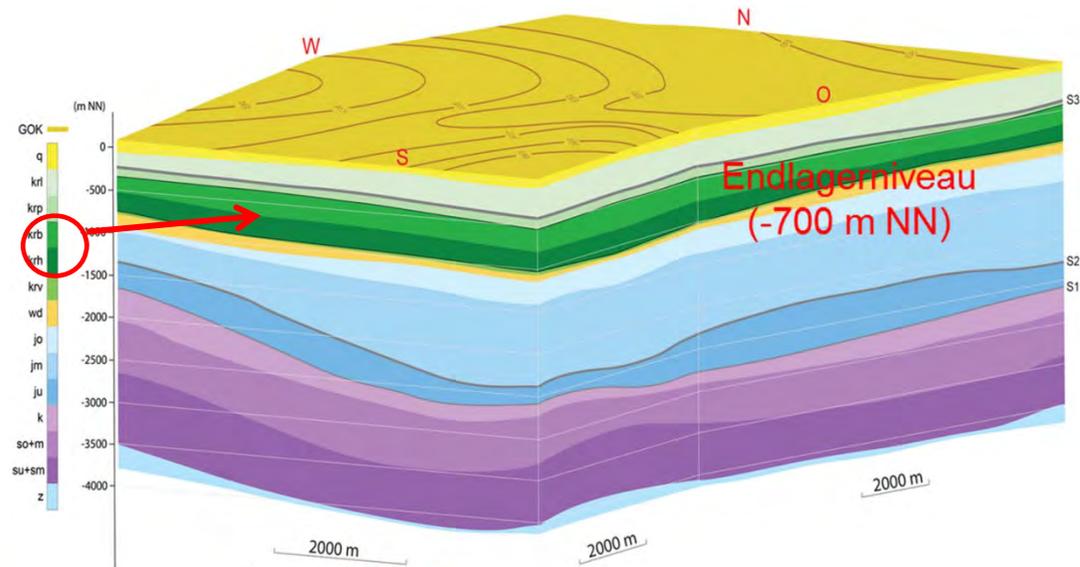
■ untersuchungswürdige Tongesteinsformationen in Deutschland
(Hoth et al. 2007)

- Gebirgsdurchlässigkeit: kleiner 10^{-10} m/s
- Tiefenlage: 300 bis 1000 m
- Ausdehnung: größer 10 km^2
- Mächtigkeit: größer 100 m
- Weitere Kriterien: Grundnutzung, Störungshäufigkeit, Neigung
- **Ausschlusskriterien: Vulkanismus, Erdbeben, aktive Störungszonen**

Modifizierte Anforderungen im Projekt ANSICHT:

- Potenzielles Einlagerungsniveau in einer Teufenlage zwischen 600 m und 800 m
- Standort in einer regional gut charakterisierbaren tonigen Schichtenfolge

Modell NORD
 Wirtsgestein:
 Barremium & Hauterivium
 (ca. 540 m, Unterkreide Tone)



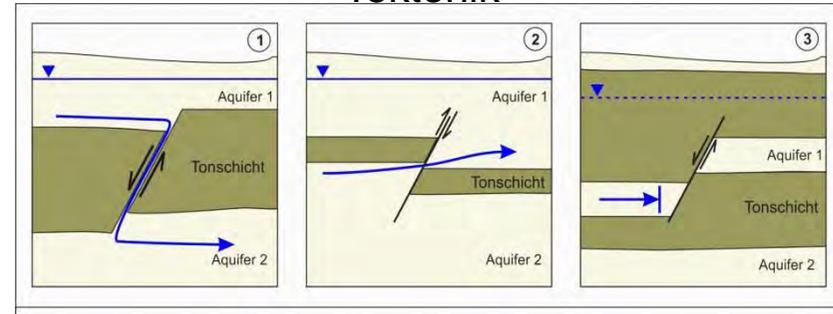
Modell SÜD
 Wirtsgestein:
 Opalinus Ton
 (ca. 110 m, Jura Ton)

Aktualitätsprinzip: Extrapolation der vergangenen Entwicklungen in die Zukunft

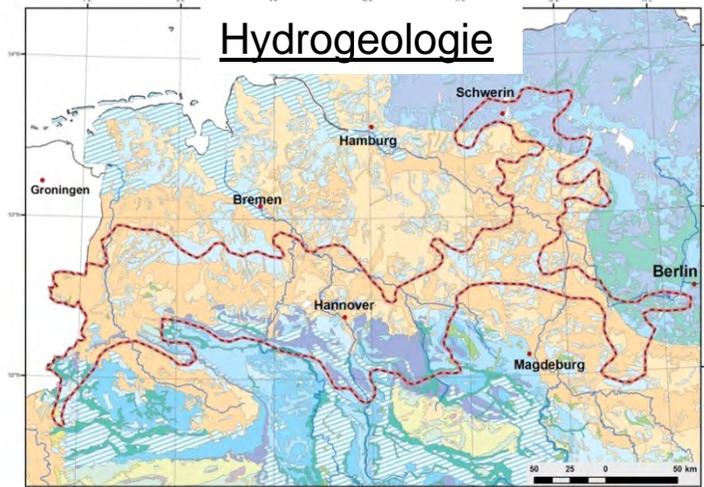
Klimaentwicklungen



Tektonik

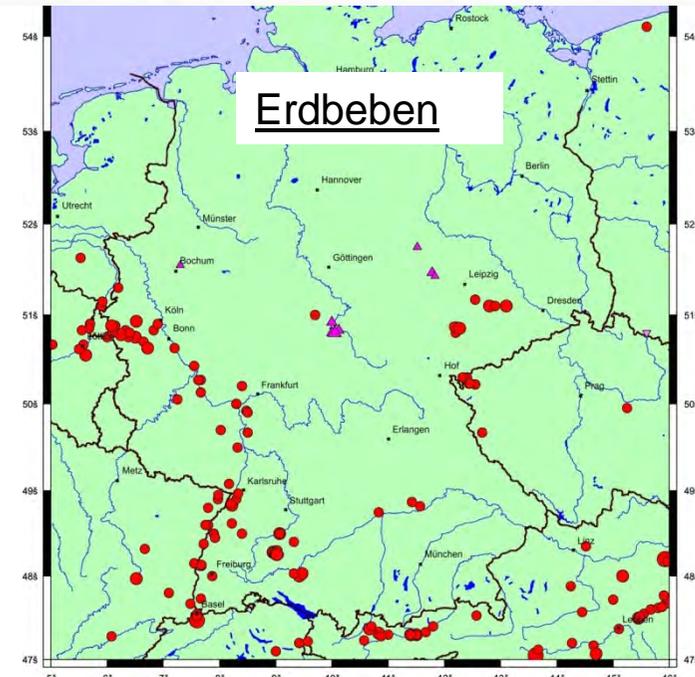


Hydrogeologie



Quelle der geologischen und hydrogeologischen Daten: Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR)

Erdbeben



GRS BGR DBE TEC

ANSICHT Sicherheitskonzept

Sicherheitsanforderungen des BMU (2010)

Nachsorgefreier Einschluss der RN im einschlusswirksamen Gebirgsbereich (ewG)

Geringfügige Freisetzen von RN am Rand des ewG

ANSICHT

Prinzip: Einschluss der Radionuklide durch Behinderung des Schadstofftransportes

Begrenzung des advektiven und diffusiven Stofftransportes

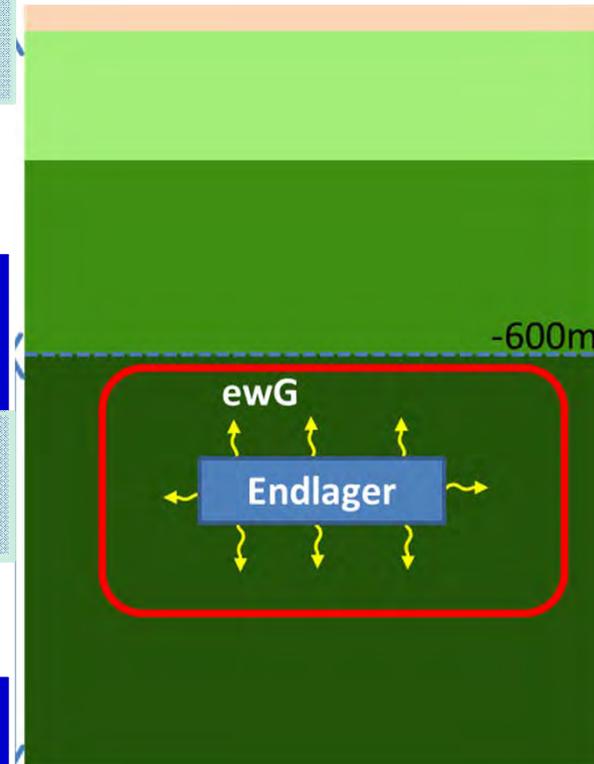
Wiederherstellung der ursprünglichen geringen Permeabilität im ewG

Einschluss / Rückhaltung durch

Wirtsgestein:
geringe Permeabilität,
Sorption, Plastizität

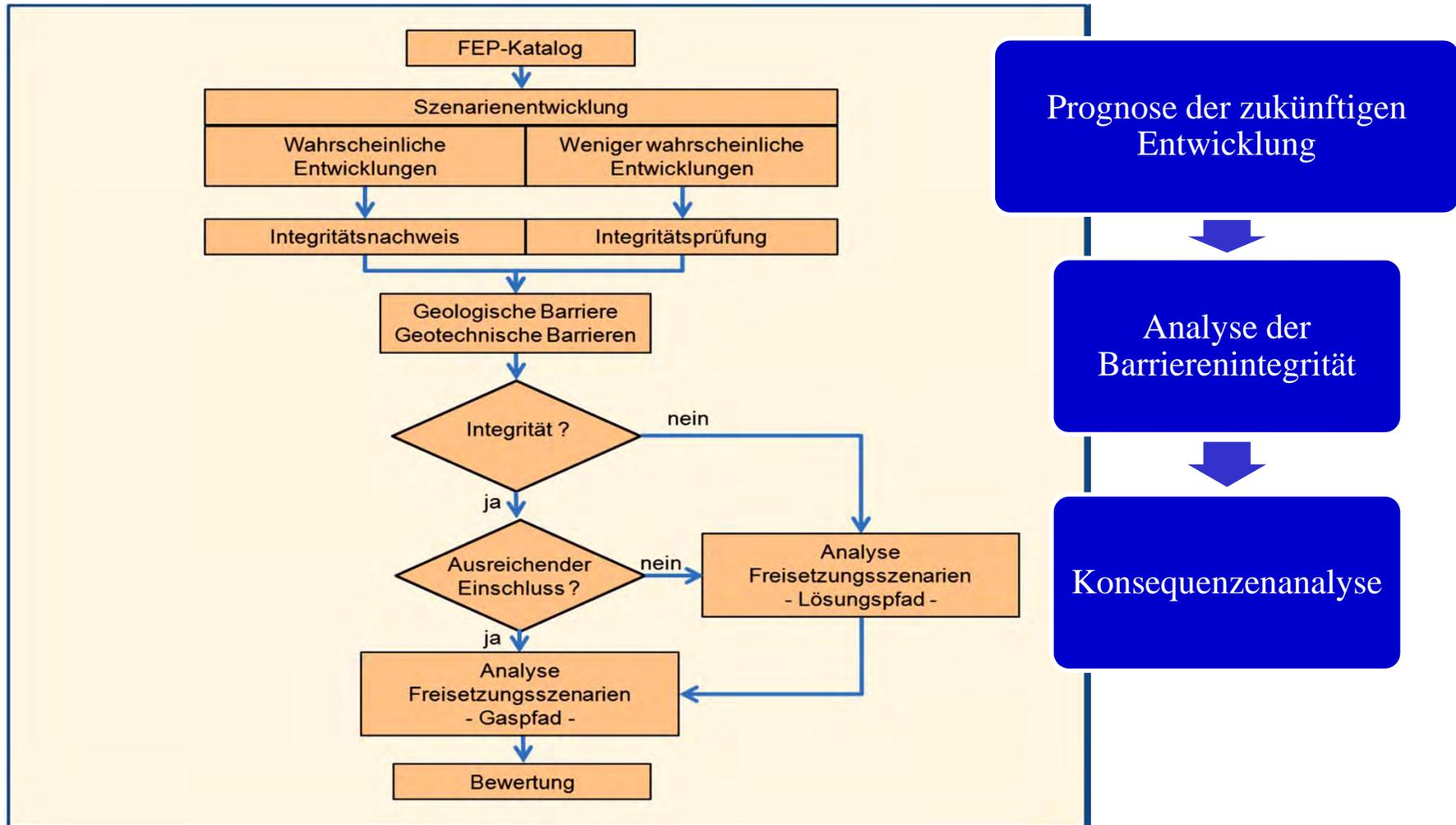
ewG:
Integrität über den
Nachweiszeitraum

Verschluss-
bauwerke



ANSICHT Sicherheitsnachweiskonzept

Vorgehen bei der Sicherheitsbewertung eines Tonstandortes



Grundlagen der technischen Planungen

Auffahrung und Errichtung des Bergwerkes

- Einlagerungssohle zwischen 600 und 800 m Teufenlage
- Endlagerkonzept kompatibel mit der Mächtigkeit, den Eigenschaften und der Ausdehnung des Wirtsgesteins
- Endlagerungssohle allseitig von Wirtsgestein umschlossen
- Rückholbarkeit und Bergbarkeit der Abfallbinde gemäß BMU (2010)

Wiederherstellung / Erhaltung der Integrität der geologischen Barriere

- Minimierung der aufgefahrenen Grubenräume
- Einlagerung im Rückbau
- Verschließen von Schächten, Strecken und Bohrlöchern
- Verfüllung der offenen Hohlräume mit quellfähigem Versatz
- Begrenzung der Temperaturen im Wirtsgestein

ANSICHT Randbedingung: Abfallinventare



CSD-Kokille:
1,34 x 0,43 m, 0,5 t

Abfallstrom			Bohrloch	Strecken	
Brennelemente aus Leistungsreaktoren	DWR	UO ₂	12.450 BE	6.990 RK-BE	4.660 Pollux-3
		MOX	1.530 BE		
	SWR	UO ₂	14.350 BE	2.600 RK-BE	1.734 Pollux-3
		MOX	1.250 BE		
WWER-DWR Strukturteile BE-Kondition.	UO ₂	5.050 BE	1.010 RK-BE	674 Pollux-3	
			874 RK-ST	2620 Mosaik	
Wiederaufarbeitung	CSD-V		3.729 Kokillen	1.245 RK-HA	1.245 Pollux-3
	CSD-B		308 Kokillen	103 RK-WA	35 Pollux-9
	CSD-C		4.104 Kokillen	1.368 RK-WA	456 Pollux-9



MOSAIK-Behälter:
1,50 x 1,06 m, ca. 6 t



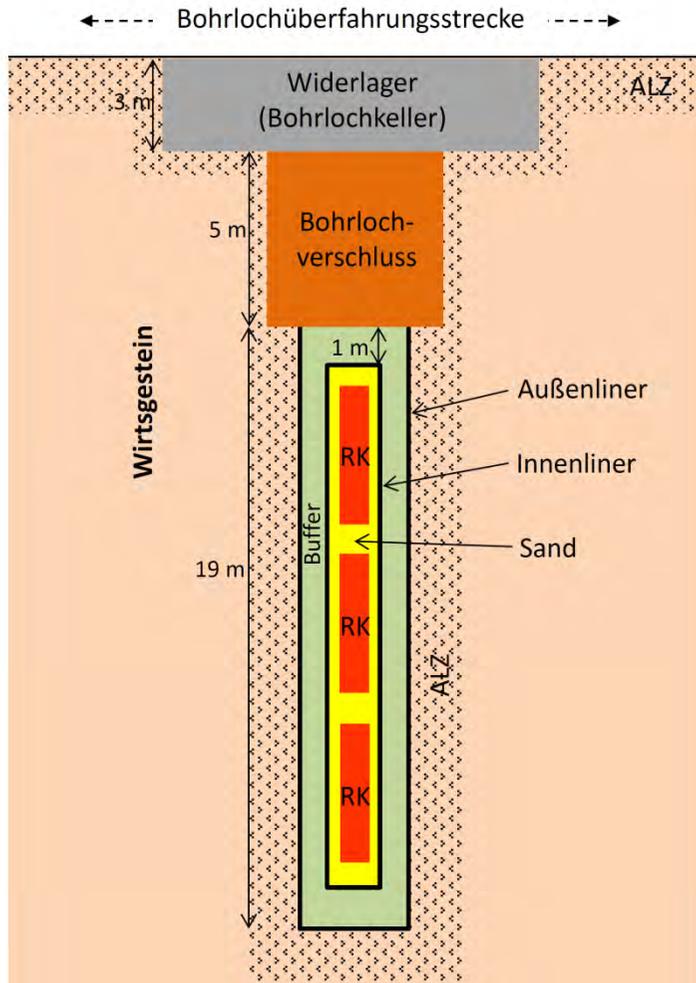
Rückholbare Kokille (RK):
4,98 x 0,43 m, 5,3 t



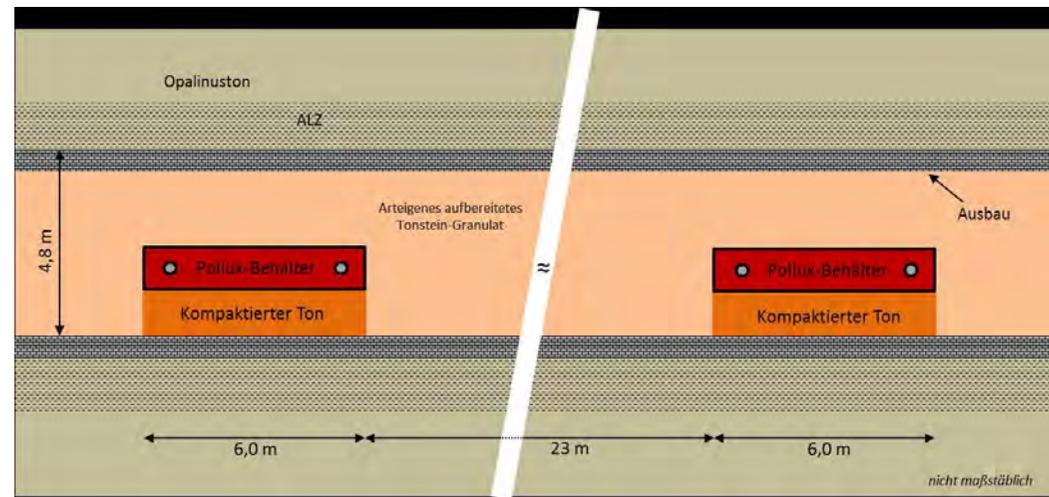
POLLUX-Behälter :
5,50 x 1,56 m, 65 t

ANSICHT, Randbedingung: Einlagerungskonzepte

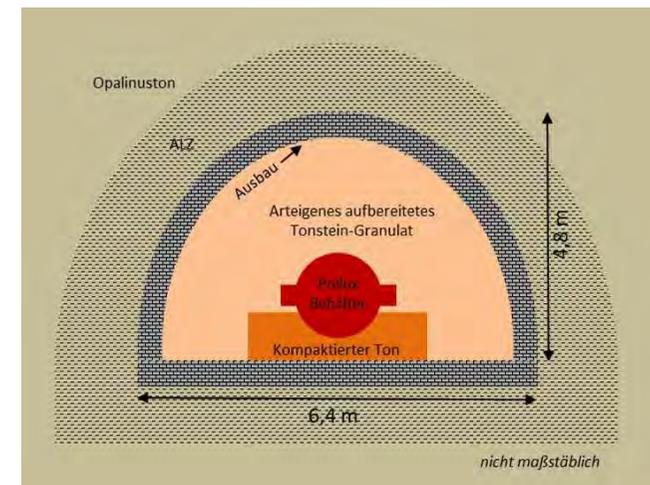
Auswahl des Referenzkonzeptes nach geologischen Randbedingungen



Bohrlochkonzept - Standortmodell NORD

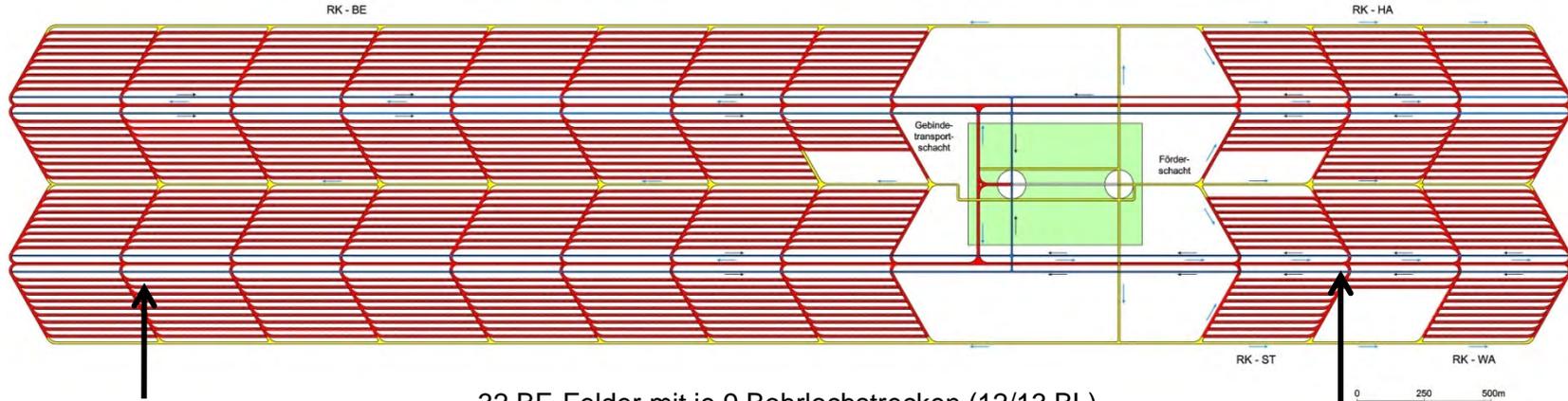


Streckenlagerungskonzept - Standortmodell SÜD



ANSICHT, Randbedingung: Grubengebäude

Endlagerkonzept Nord, Bohrlochlagerung

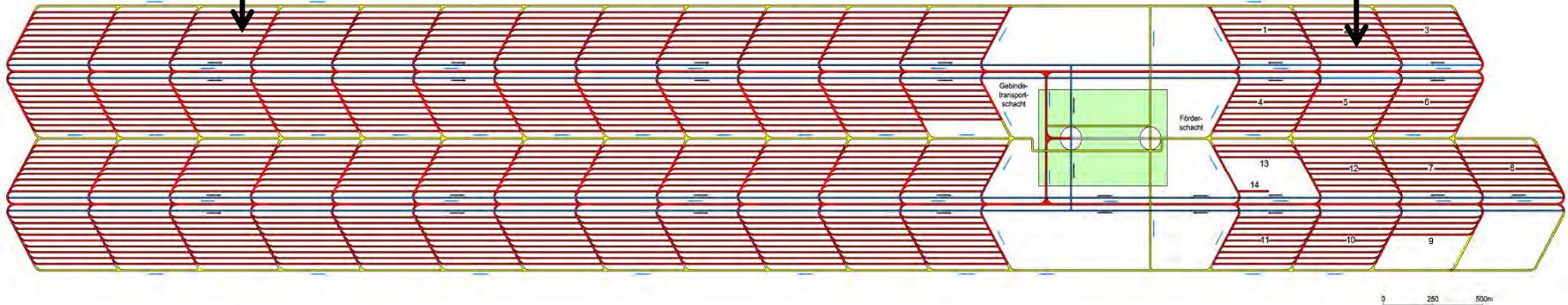


Ausgediente Brennelemente

32 BE-Felder mit je 9 Bohrlochstrecken (12/13 BL)
 12 WA-Felder mit je 9 Bohrlochstrecken (12/13 BL)
 Flächenbedarf: 7,6 m²

Wiederaufarbeitungs-
abfälle

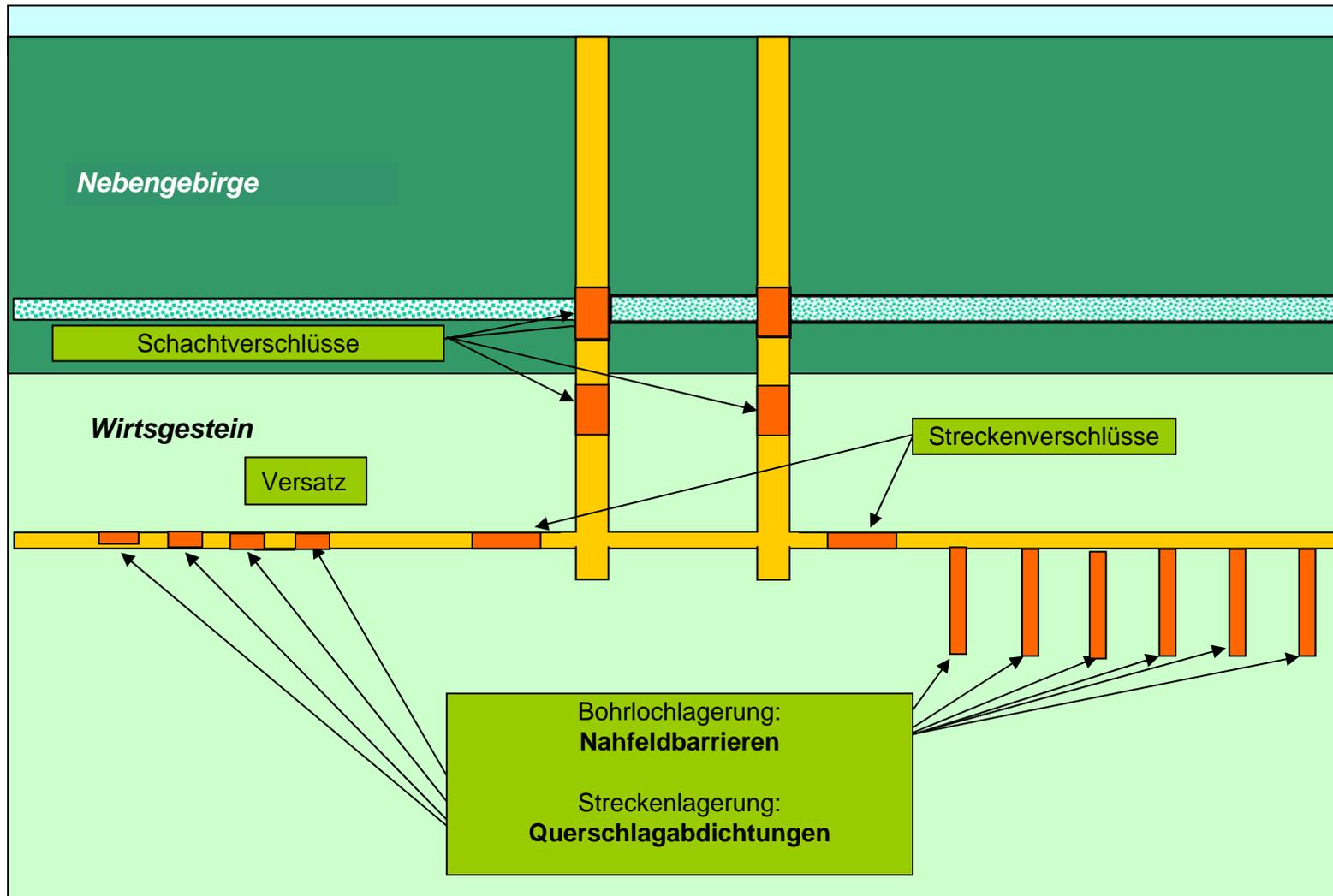
Endlagerkonzept Süd, Streckenlagerung



48 BE-Felder mit je 9 Einlagerungsstrecken
 13 WA-Felder mit je 9 Einlagerungsstrecken
 Flächenbedarf: 11,1 m²

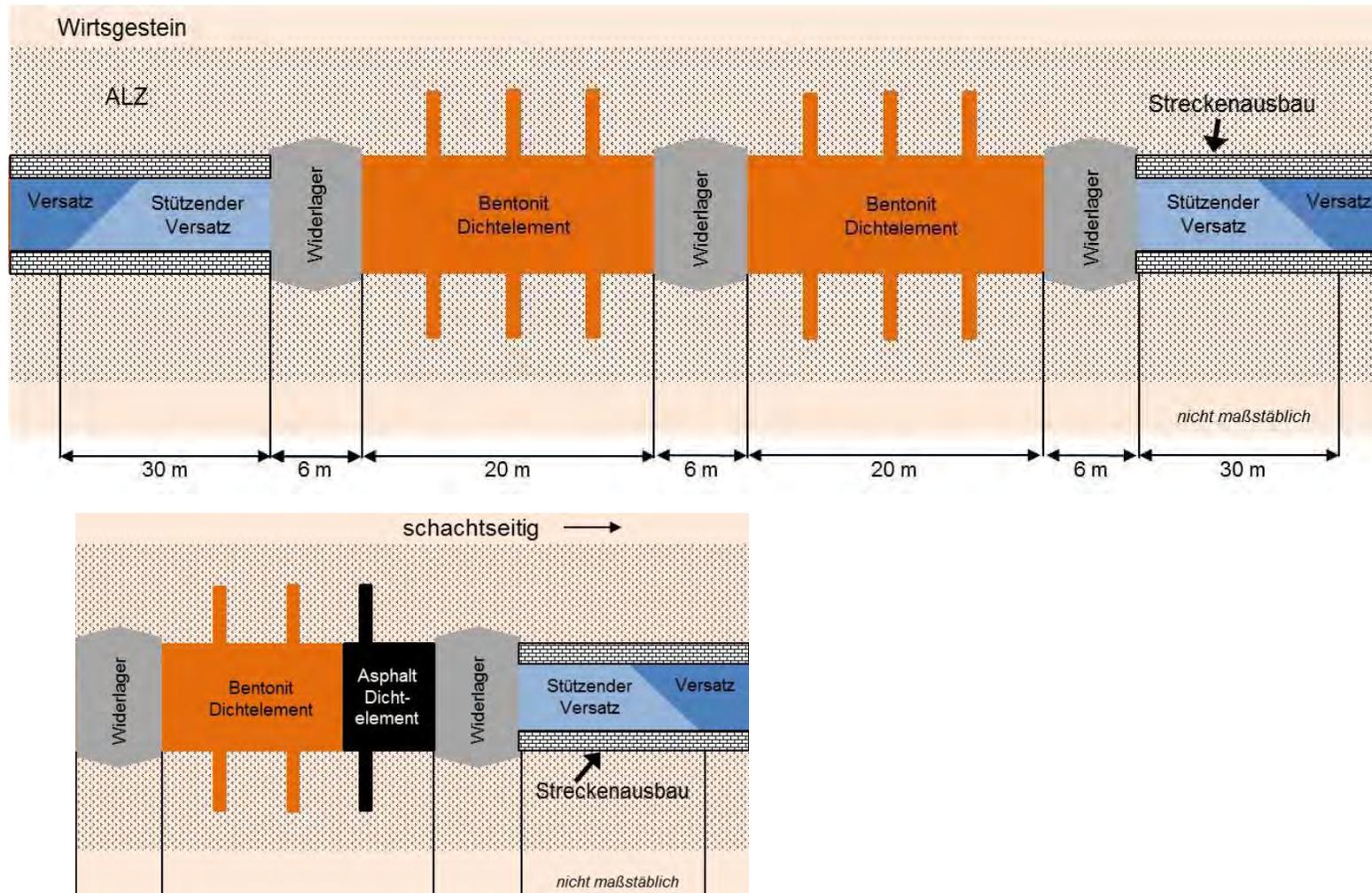
1 - 9 Pollux 3 - CSD-V
 10 - 13 Pollux 9 - CSD-CB
 14 Mosaik - Behälter

ANSICHT Randbedingung: Verfüll- und Verschlusskonzept



ANSICHT Randbedingung: Verfüll- und Verschlusskonzept

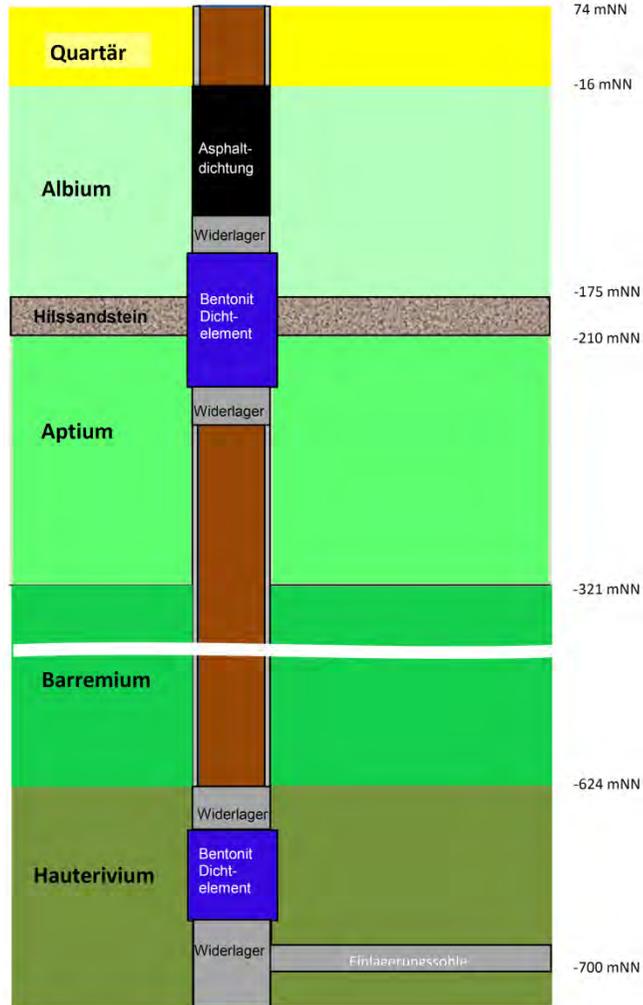
Streckenverschluss



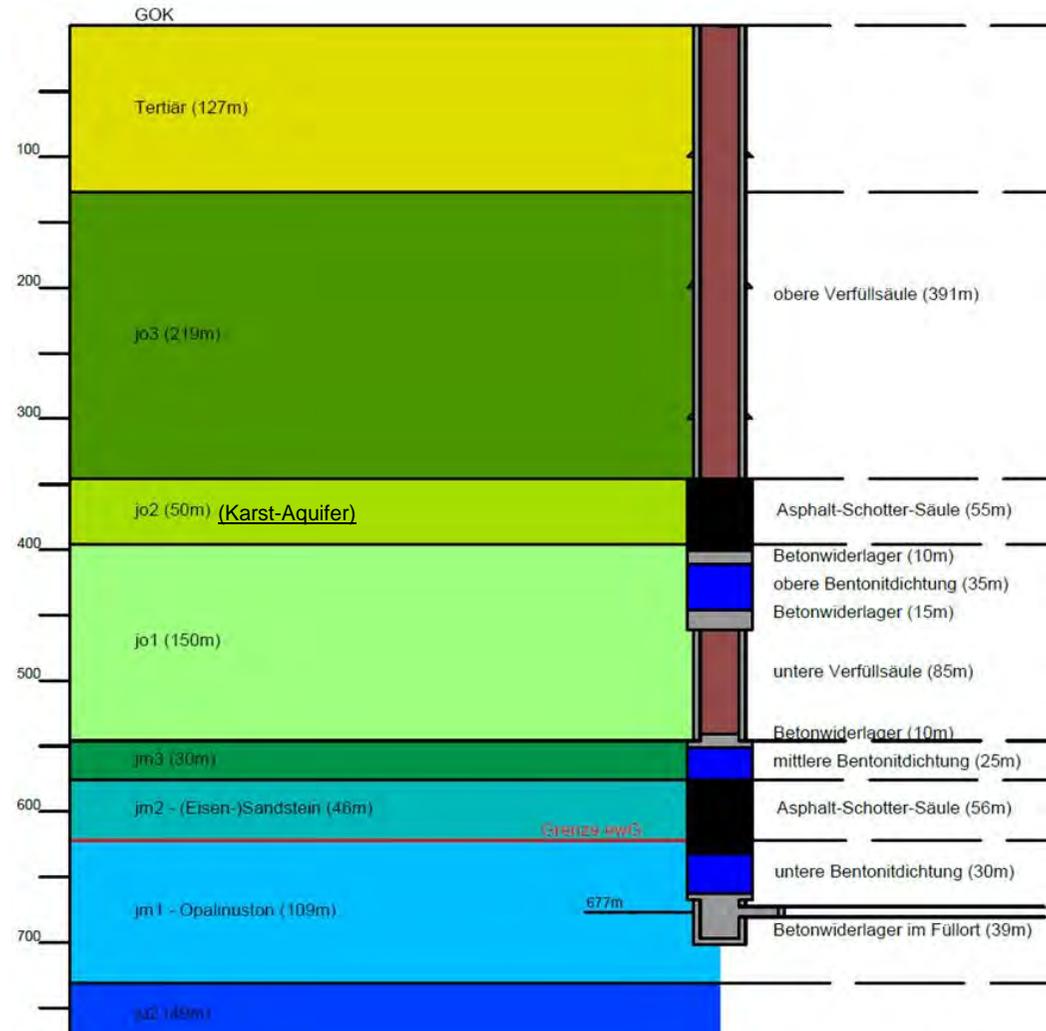
ANSICHT Randbedingung: Verfüll- und Verschlusskonzept

Schachtverschlusskonzepte

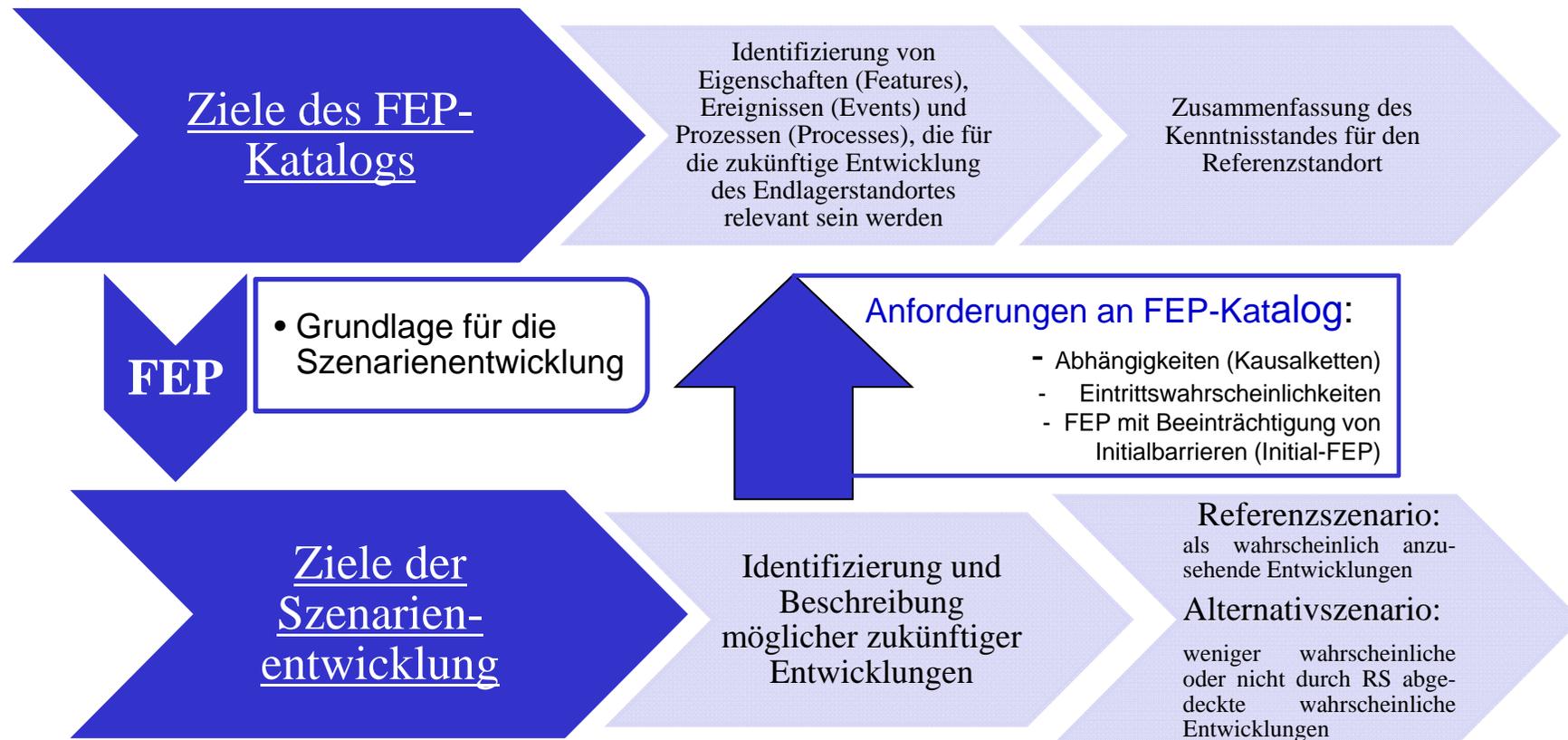
Konzept Nord



Konzept Süd



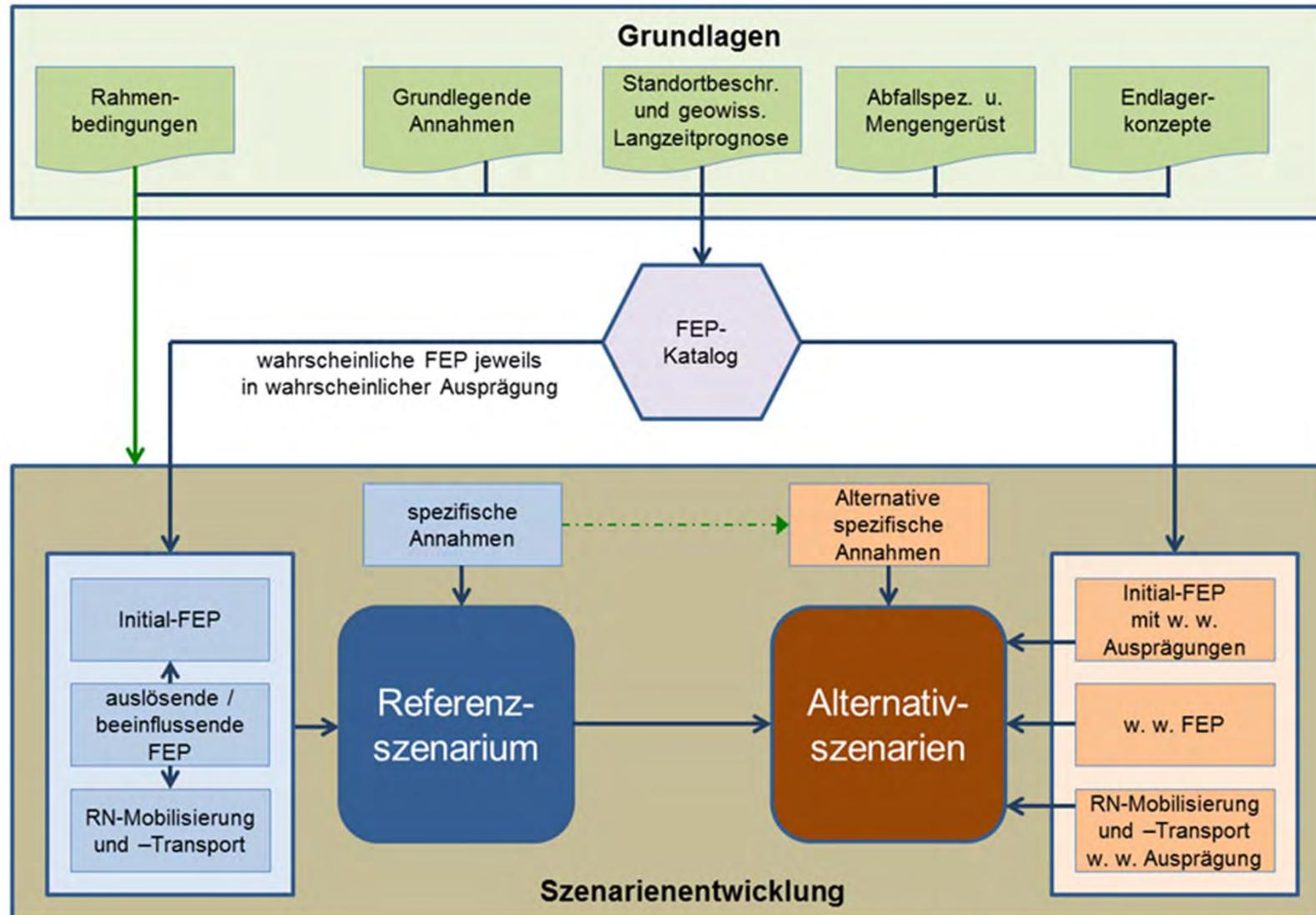
ANSICHT FEP-Katalog und Szenarientwicklung



Inhalte der FEP standort- und wirtsgesteinsspezifisch > FEP-Kataloge (Nord + Süd)

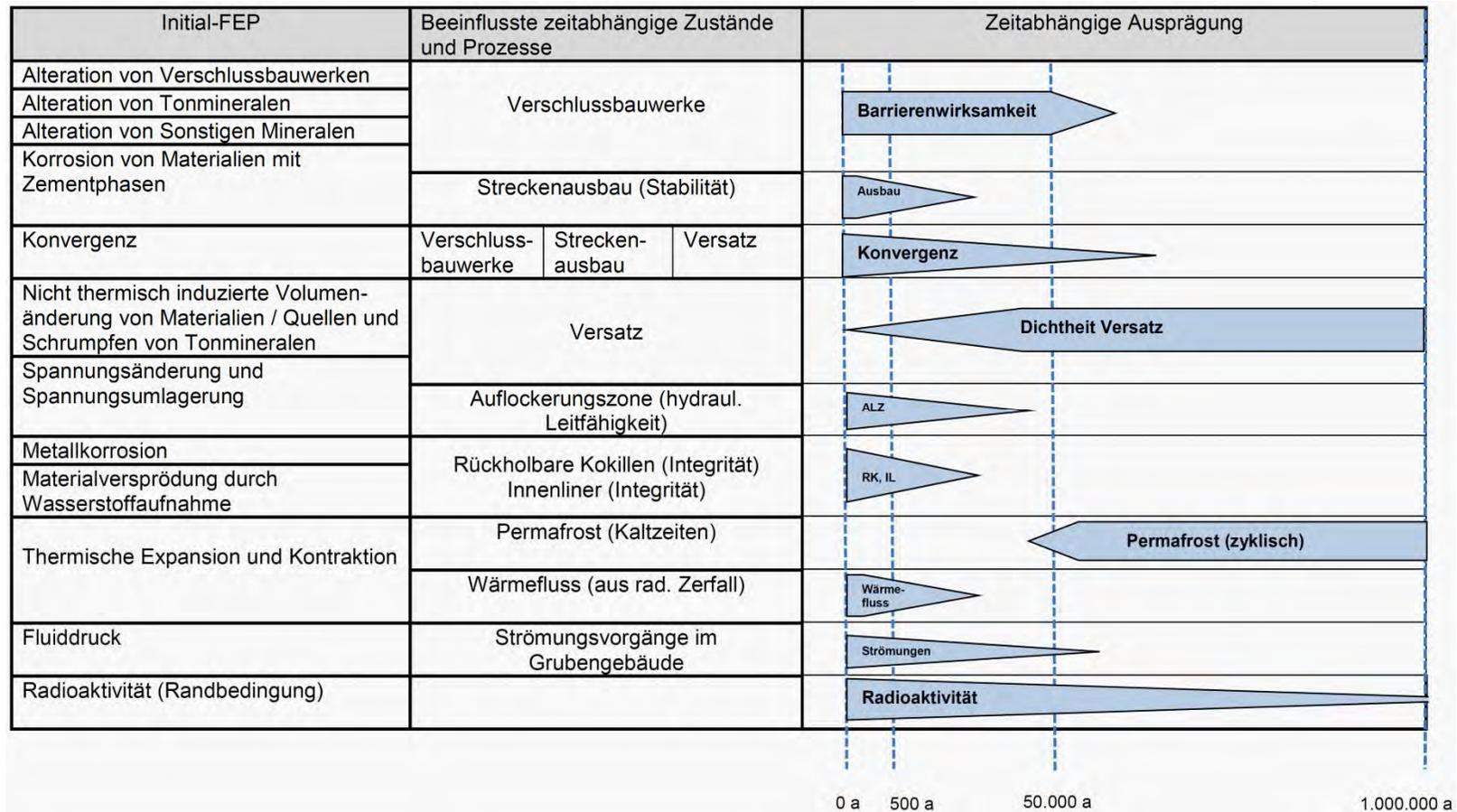
ANSICHT FEP-Katalog und Szenarientwicklung

Methodik der Szenarientwicklung (VSG-Konzept)



ANSICHT FEP-Katalog und Szenarienentwicklung

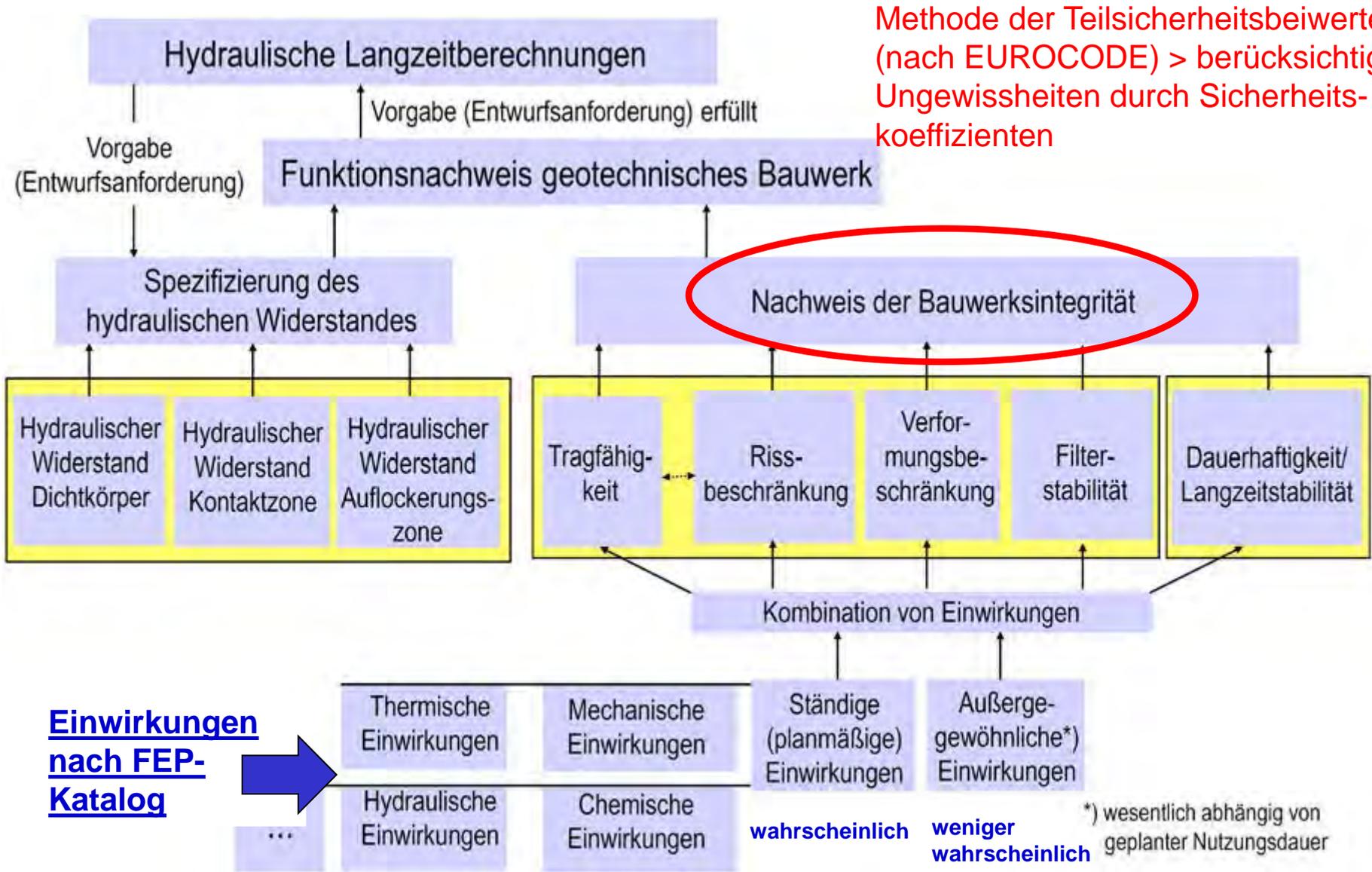
Für Entwicklung des Endlagersystems relevante, zeitabhängige Prozesse und Zustände



Nachweiskriterien abgeleitet aus den BMU-Sicherheitsanforderungen

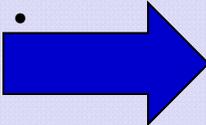
- **Advektionskriterium:** *Ausbreitung von Schadstoffen im ewG durch advective Transportprozesse allenfalls vergleichbar mit der Ausbreitung durch diffusive Transportprozesse >> allein durch die Bewegung des Porenwassers wird kein gelöster Stoff vom Einlagerungsbereich bis an den Rand des ewG transportiert*
- **Temperatur-Kriterium:** *Durch die Temperaturentwicklung darf die Barrierenwirkung des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs nicht unzulässig beeinflusst werden >> $T < 150^{\circ}\text{C}$ (dann unzureichende Datenbasis)*
- **Fluiddruck-Kriterium:** *Fluiddrucke dürfen die Druckfestigkeit des Gebirges nicht überschreiten, so dass es zu einem Wasserzutritt in den ewG kommt >> effektive Spannungen nicht im Zugspannungsbereich.*
- **Dilatanz-Kriterium:** *Spannungszustand außerhalb der ALZ unterhalb der Schädigungsgrenzen / Dilatanzfestigkeiten der Gesteinsformationen*

ANSICHT, Integrität der geotechnischen Barrieren



Methode der Teilsicherheitsbeiwerte (nach EUROCODE) > berücksichtigt Ungewissheiten durch Sicherheitskoeffizienten

Zusammenfassung und Ausblick

- Endlagermodellregionen Nord und Süd sowie die dazu gehörigen Geowissenschaftlichen Langzeitprognosen wurden fertiggestellt.
- ein Wirtsgesteinsspezifisches Sicherheitskonzept wurde gemäß BMU Sicherheitsanforderungen entwickelt.
- Zwei Endlagerkonzepte wurden - unter Berücksichtigung der Rückholung / Bergungsoption abgeleitet.
- Generische Verfüll- und Verschlusskonzepte wurden entwickelt
- Methodik des Sicherheitsnachweises wurde festgelegt.
- Der FEP-Katalog Nord wurde fertiggestellt, mit dem FEP-Katalog Süd wurde begonnen.
- Für die Szenarienentwicklung Nord wurde ein Referenzszenario abgeleitet, mit den Alternativszenarien wurde begonnen
- Die Methodik für die Integritätsnachweise und die für die rechn. Nachweise erforderlichen Datensätze wurden festgelegt
 -  **Die VSG-Methodik für einen Langzeitsicherheitsnachweis ist auf Tongesteine übertragbar !**
- *der FEP-Katalog Süd ist fertigzustellen und dann eine Szenarienentwicklung durchzuführen. Dabei soll die Methodik weiter optimiert werden.*
- *Durchführung der Integritätsanalysen*
- *Sicherheitsnachweis für die Betriebs- und frühe Nachverschlussphase*
- *Konsequenzenanalyse*
- *Bewertung von Datenlage und Instrumentarium*

Danke für ihre Aufmerksamkeit !

Robustheit der Sicherheitsaussage für Endlagersysteme in Kristallingesteinen

J. Wolf³, J. Hammer¹, J. Flügge³, M. Jobmann², J. Krone², T. Kühnlenz¹

¹ Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe

² DBE Technology GmbH

³ Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH

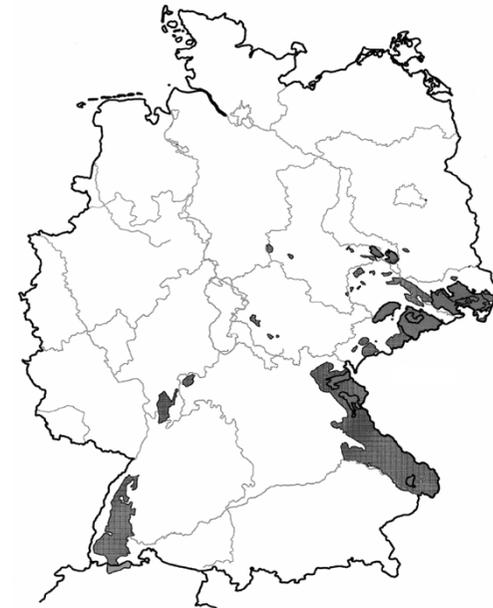
Warum FuE in Kristallingesteinen in Deutschland?

In D Fokus auf Tongestein und Salzgestein → Sicherheitsanforderungen (BMU, 2010)
→ FuE BMWi

Bessere geologische Voraussetzungen in D in Ton- und Salzgestein, entscheidend für die Bewertung der Endlagersicherheit ist letztendlich die Leistung der Barrieren in ihrer Wirkung als Gesamtsystem:

**Endlagersicherheit:
geologische + geotechnische Barrieren**

→ auch Kristallingesteine eine Option
(international großer Erfahrungsschatz: S, F, CAN, URL Grimsel (CH),
Kooperationen im Rahmen FuE-Aktivitäten des BMWi)



Quelle: GRS 2000/ BGR 1994

Wissenschaftlich-technische Zusammenarbeit mit Russland

- Russland sucht einen Standort im Kristallin
- Kooperation mit russischen Kollegen
 - Großer Erfahrungsschatz
 - Diskussion nationaler und internationaler Standards (Safety Case, Betriebssicherheit, etc.)
- Anwendung und Erweiterung des sicherheitsanalytischen Instrumentariums (auf Fragestellungen im Kristallin) → Qualifizierung
 - Laboruntersuchungen
 - Wärmeausbreitung
 - Einfluss von Erdbeben, Kaltzeiten
 - Transport in geklüftet-porösen Medien (Matrixdiffusion)
 - Sensitivitätsanalysen
 - (...)

Situation in Russland

- Russland braucht und sucht mehrere Endlager (5 Klassen von Abfällen)
- 30 Standorte werden diskutiert, 10 zurzeit untersucht
- Standort für HLW: Nishnekansker Massiv (Krasnojarsk)
 - Untersuchung seit ~ 20 Jahren
 - Verschiedene Untersuchungsregionen (Gneiss, Basalt, Granitoid)
 - Einengung auf einen Standort im Gneiss am Jenissei
 - bis Ende 2014 Erkundung dokumentiert
 - schrittweise Lizenzierung für (bis 2024)
 - Errichtung Infrastruktur an der Oberfläche
 - Auffahrung Schächte und Infrastrukturbereich
 - Errichtung eines Untertagelabors (URL)
 - Aktualisierung der Sicherheitsbewertung
 - 2015 öffentliche Anhörung

ASTER
(2002 bis 2005)

WIBASTA
(2005-2008)

URSEL
(seit 2010)

Das Projekt URSEL (2010-2015)

Ziel: Struktur eines **methodischen Ansatz** für die **sicherheitliche Bewertung**, Optimierung sowie **Beurteilung der Robustheit eines Endlagersystems** und der Sicherheitsaussage im Kristallin zu erarbeiten und beispielhaft zu erproben.

→ russische Standortdaten Jenissei



Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR)

DBE Technology GmbH (DBE TEC)

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH



VNIPI Promtehnologii (VNIPI PT)

National Operator for Radioactive Waste Management (NO.RAO)

Robustheit eines Endlagersystems

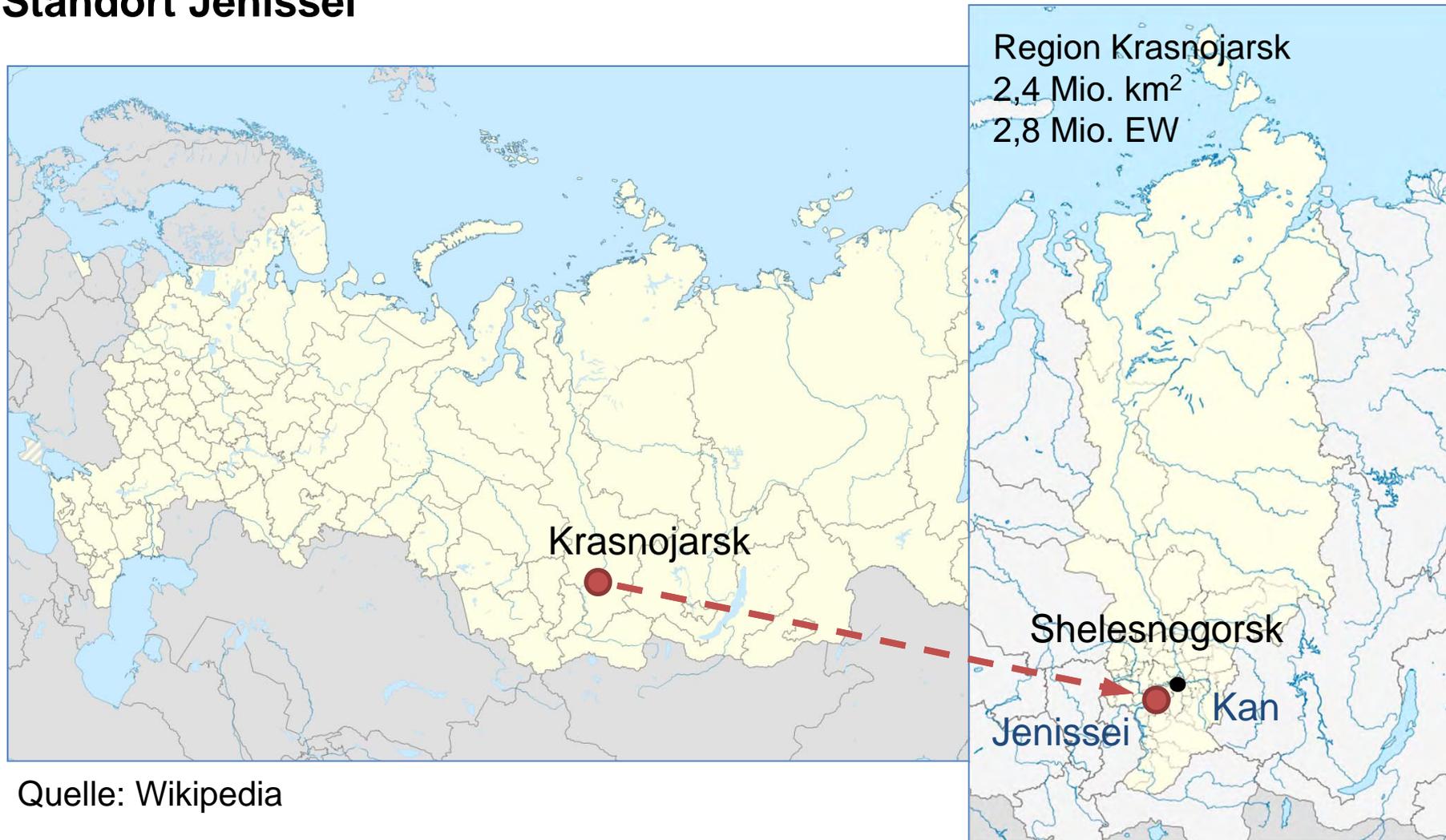
Mit Robustheit wird **die Zuverlässigkeit und Qualität** und somit die Unempfindlichkeit der Sicherheitsfunktionen **des Endlagersystems und seiner Barrieren gegenüber inneren und äußeren Einflüssen** und Störungen sowie die Unempfindlichkeit der Ergebnisse der Sicherheitsanalyse gegenüber Abweichungen von den zugrunde gelegten Annahmen bezeichnet (Sicherheitsanforderungen BMU 2010)

- Barriere (geologische und technische)
 - Charakterisierung
 - Mineralogie, Physik, Chemie
 - Hydraulik, Hydrogeologie
 - Innere und äußere Einflüsse
 - Gasbildung
 - Wärmeausbreitung
 - Erdbeben
 - Vergletscherung
 - Seismische Aktivität
- Sicherheitsanalyse = Endlagersystem Σ Barrieren
- Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse



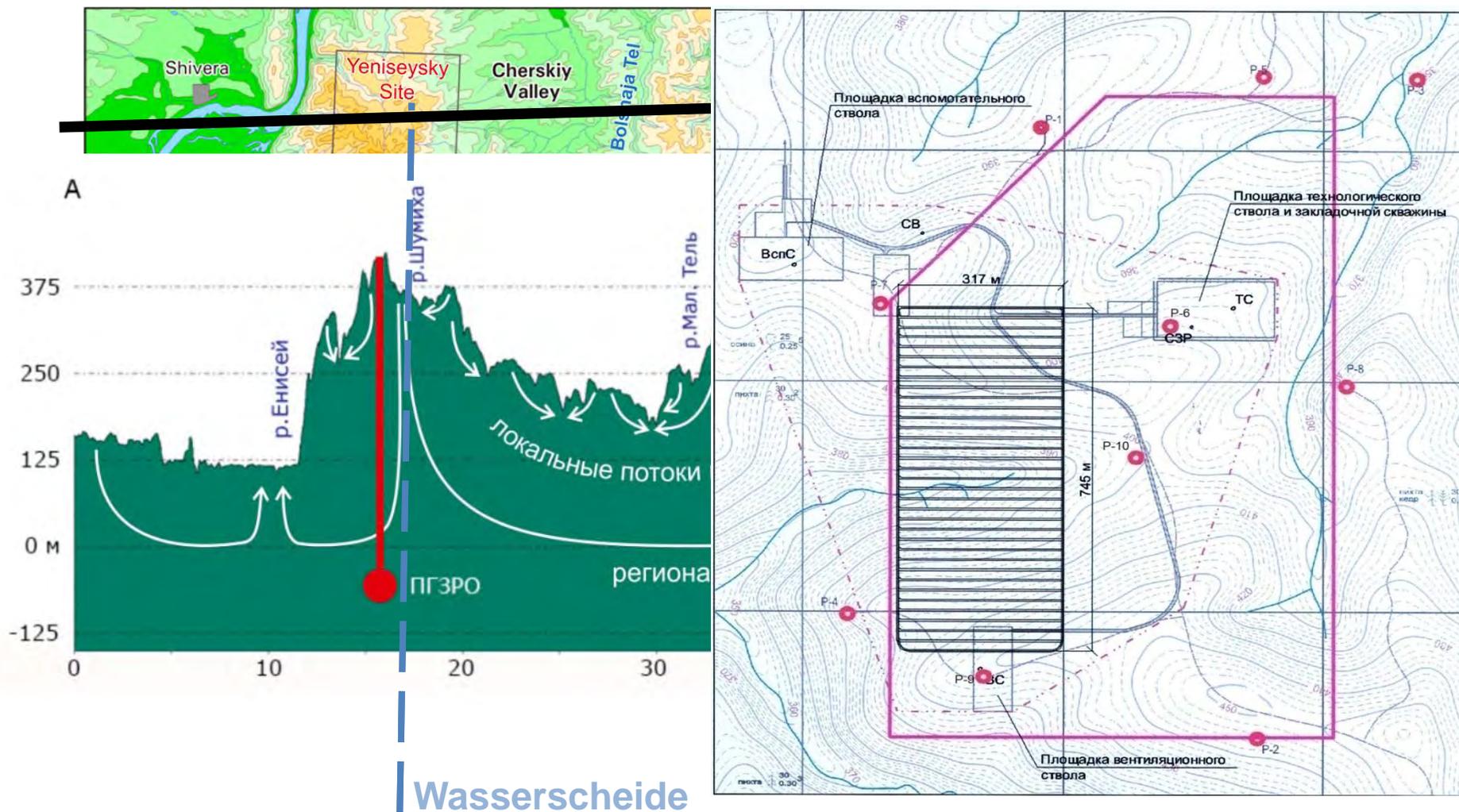
Beurteilung
der
Robustheit

Standort Jenissei



Quelle: Wikipedia

Untersuchungsregion Jenissei



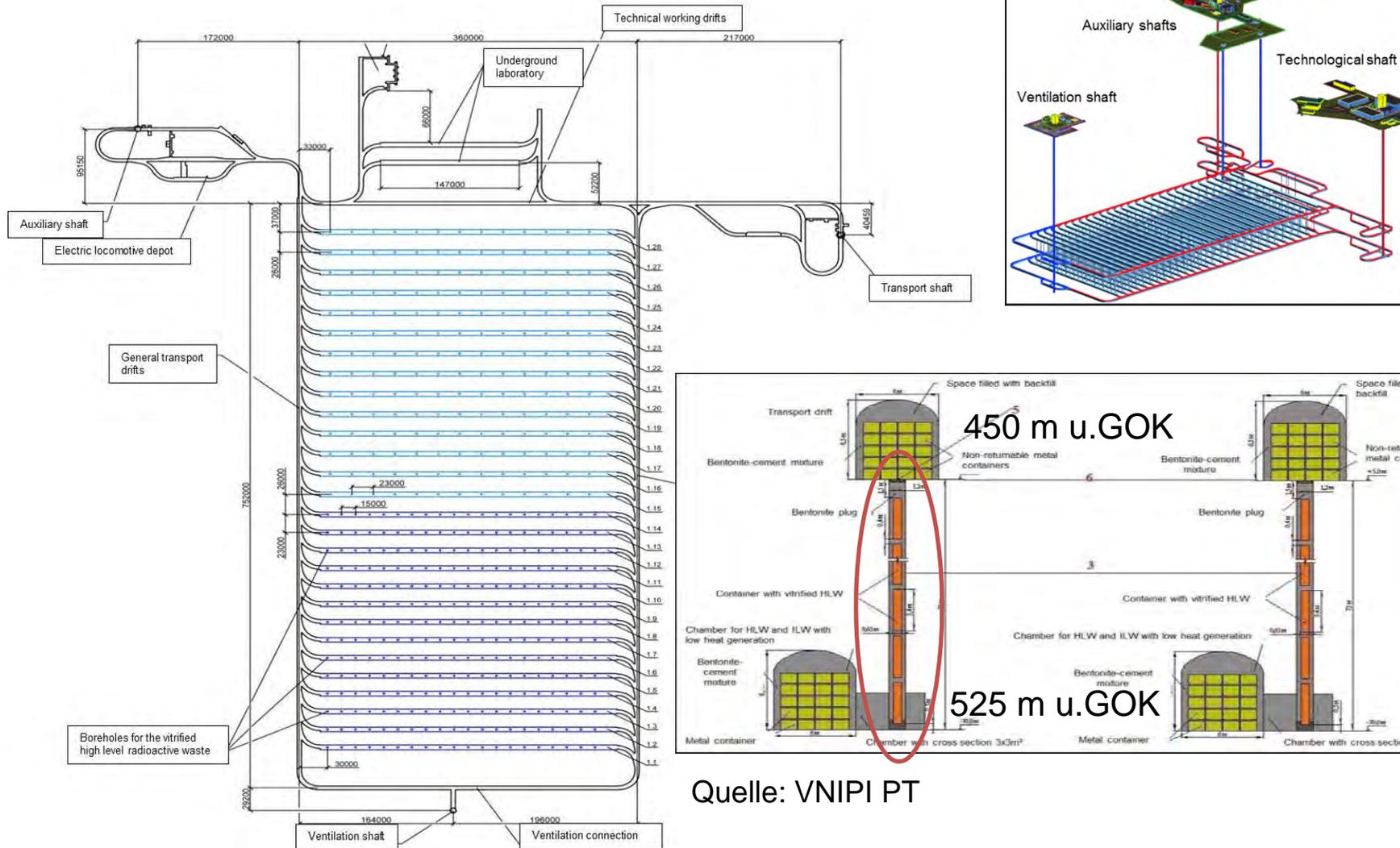
Abfälle

Vorgesehene Abfälle für das Endlager:

- verglaste Abfälle aus der Wiederaufarbeitung (HLW, Klasse 1)
 - RT-1 „PO Mayak“
 - geplante WAA RT-2 im Bergbau- und Chemiekombinat Shelesnogorsk
 - ~ 4500 m³ (7500 Behälter)
- weitere in Mayak und Shelesnogorsk gelagerte Abfälle (ILW, Klasse 2)
 - ~ 155000 m³



Endlagerkonzept



Quelle: VNIPI PT

Robustheit eines Endlagersystems

Mit Robustheit wird **die Zuverlässigkeit und Qualität** und somit die Unempfindlichkeit der Sicherheitsfunktionen **des Endlagersystems und seiner Barrieren gegenüber inneren und äußeren Einflüssen** und Störungen sowie die Unempfindlichkeit der Ergebnisse der Sicherheitsanalyse gegenüber Abweichungen von den zugrunde gelegten Annahmen bezeichnet (Sicherheitsanforderungen BMU 2010)

- Barriere (geologische und technische)
 - **Charakterisierung**
 - Mineralogie, Physik, Chemie
 - Hydraulik, Hydrogeologie
 - Innere und äußere Einflüsse
 - Gasbildung
 - **Wärmeausbreitung**
 - Erdbeben
 - **Vergletscherung**
 - Seismische Aktivität

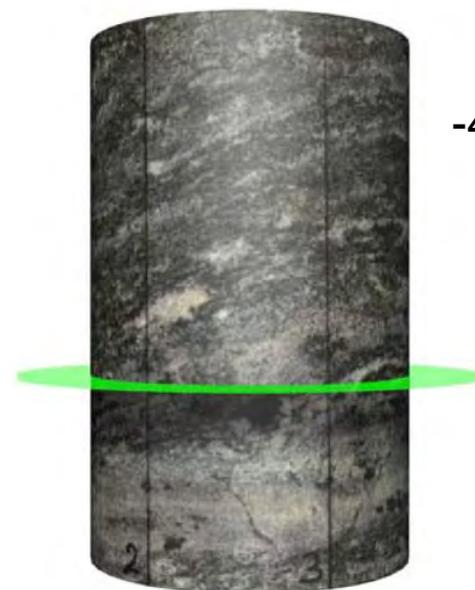
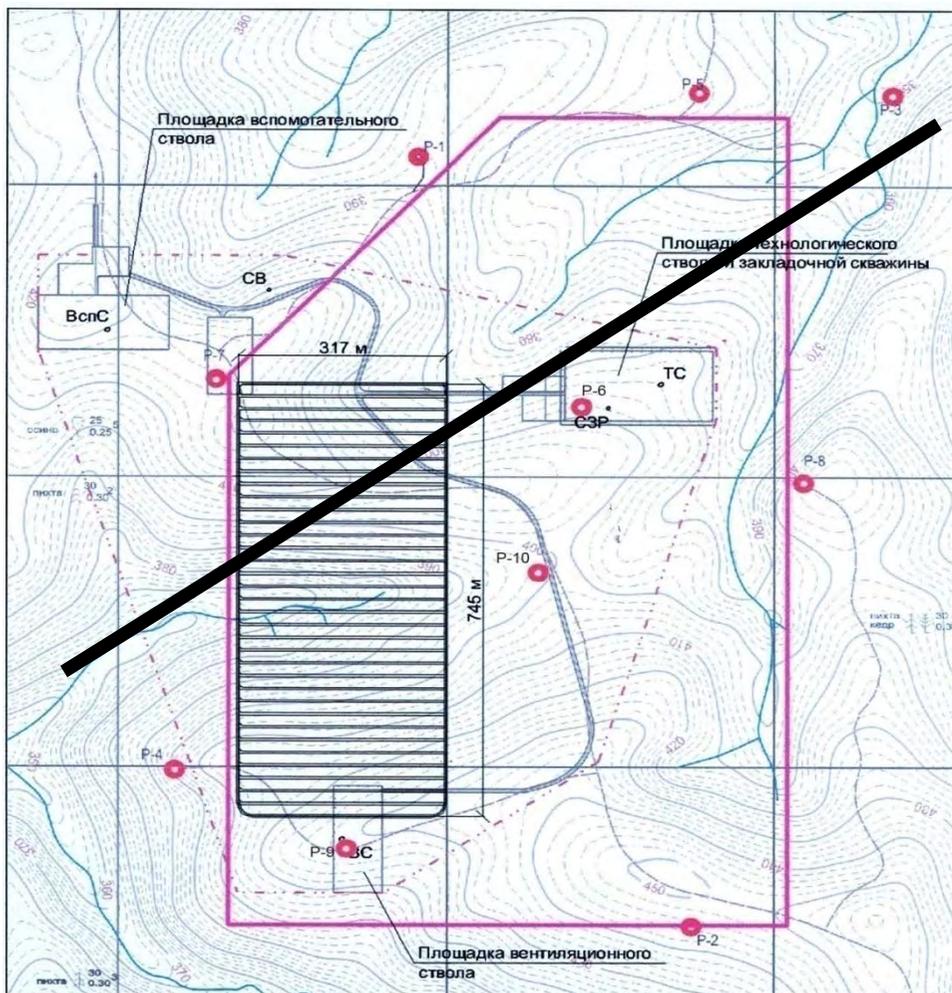


Beurteilung
der
Robustheit

- **Sicherheitsanalyse = Endlagersystem Σ Barrieren**
- **Sensitivitäts- und Unsicherheitsanalyse**

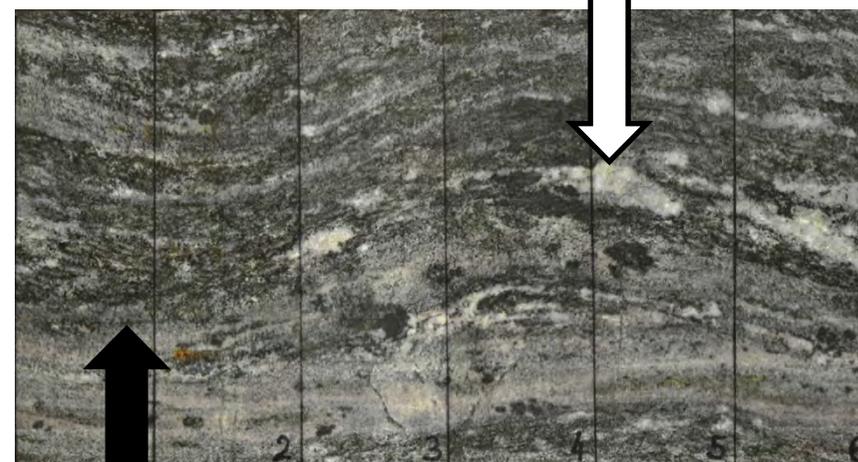
Wirtsgestein: (Biotit)-Plagiogneis

[Charakterisierung geologische Barriere]



-420 m u. GOK

Quarz
Feldspat
(> 50%)

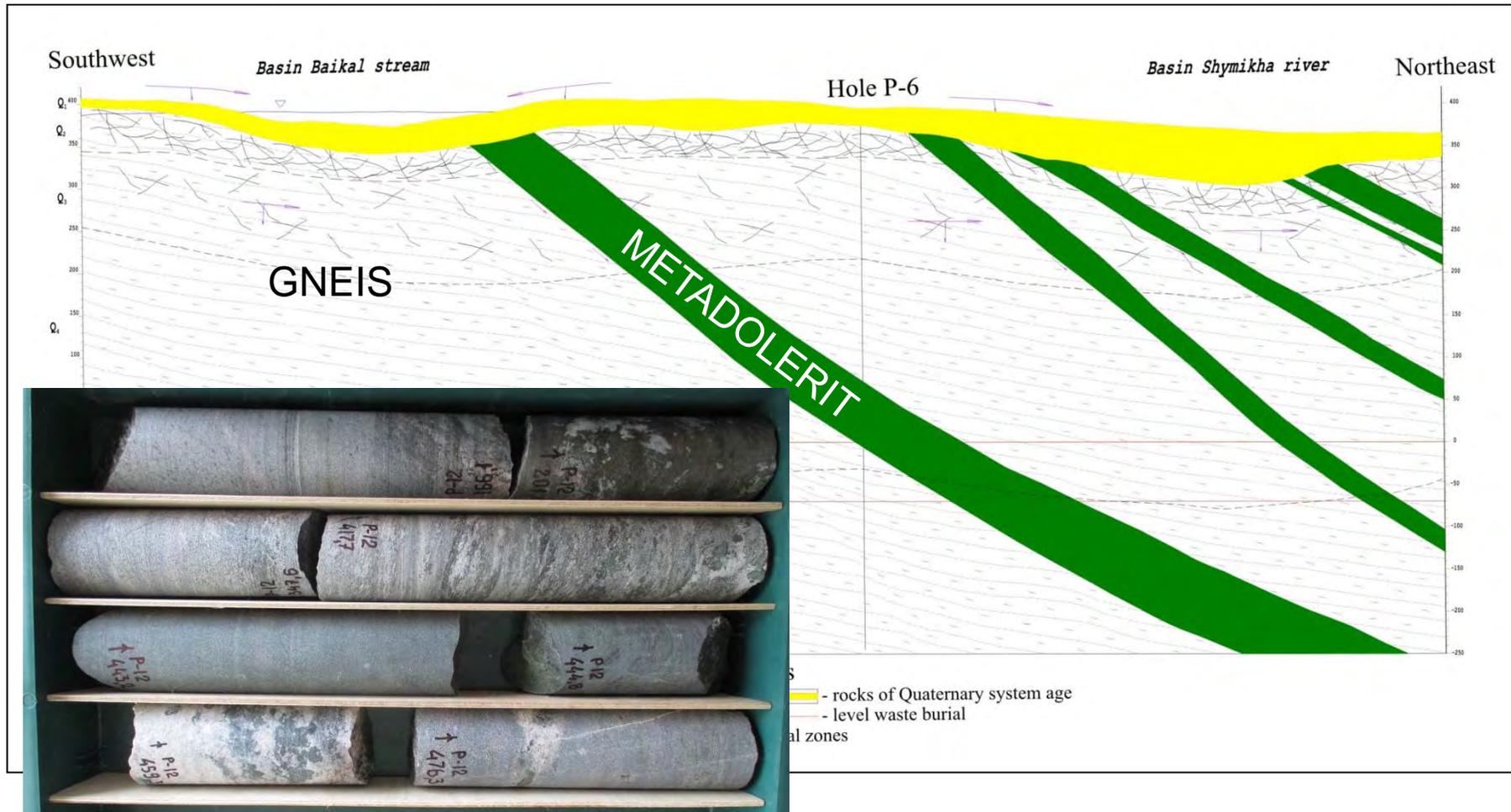


Biotit

(< 30%)

Geologisches Profil

[Charakterisierung geologische Barriere]



Laboruntersuchungen

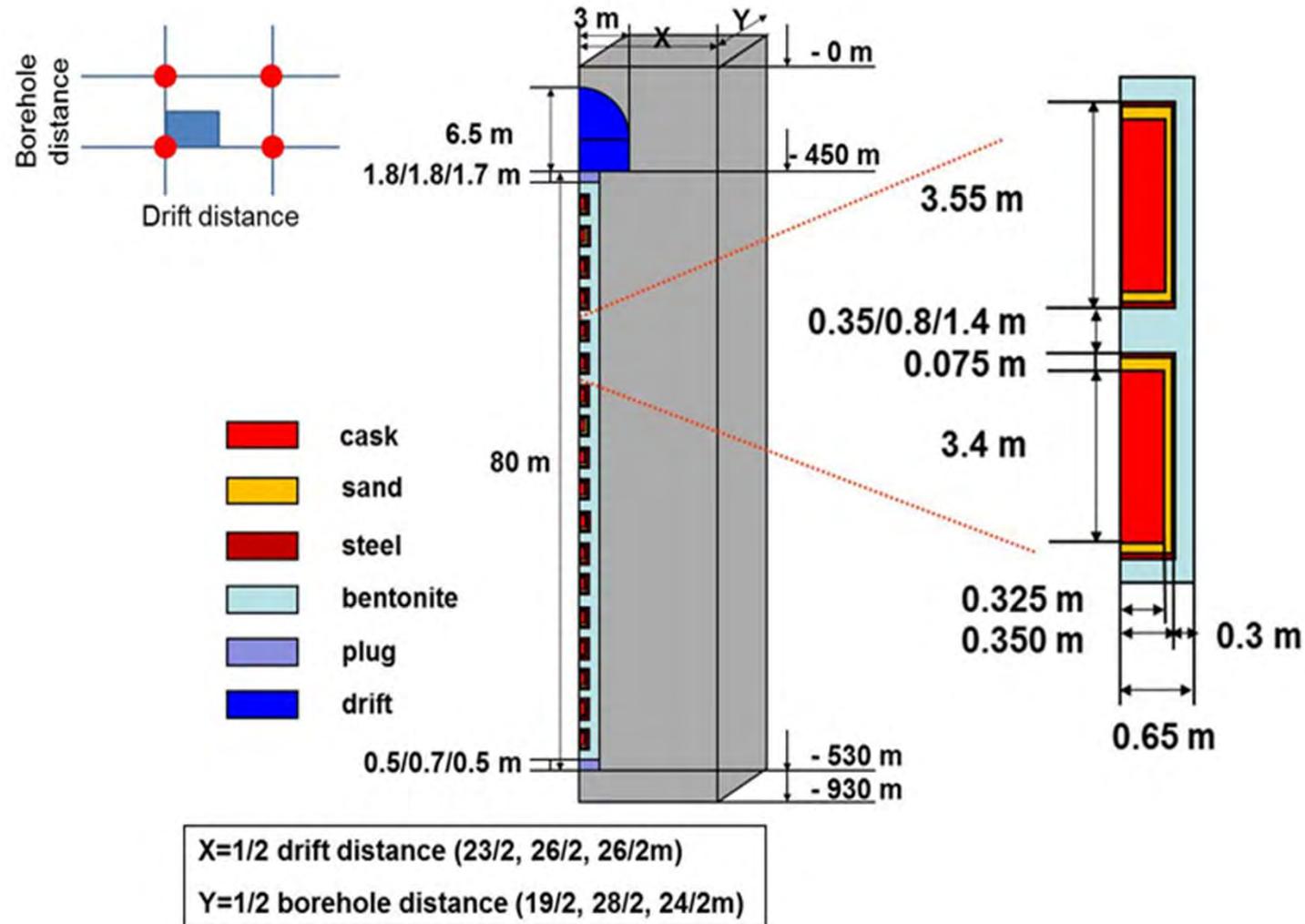
[Charakterisierung geologische Barriere]



Gestein Parameter	Porosität [%]	Durchlässigkeits- beiwert [m/s]	Wärmeleitfähigkeit [W/(m·K)]	Steifigkeit [GPa]
Gneis	0,1-1 [0.35]	$< 10^{-10}$	1-4	80-100
Dolerit	0,25	$< 10^{-11}$	3	n.g.

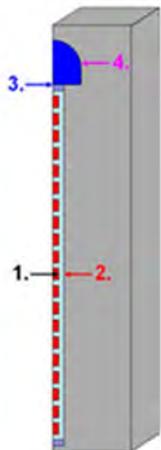
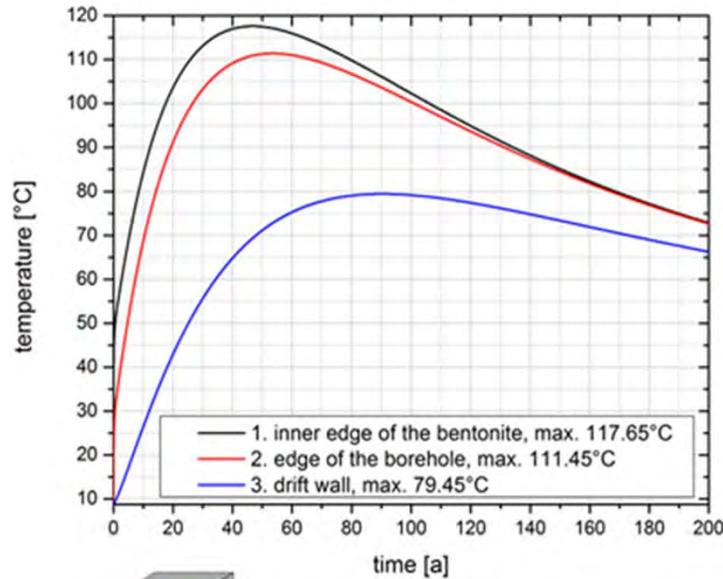
Wärmeausbreitung

[geologische und geotechnische Barriere]



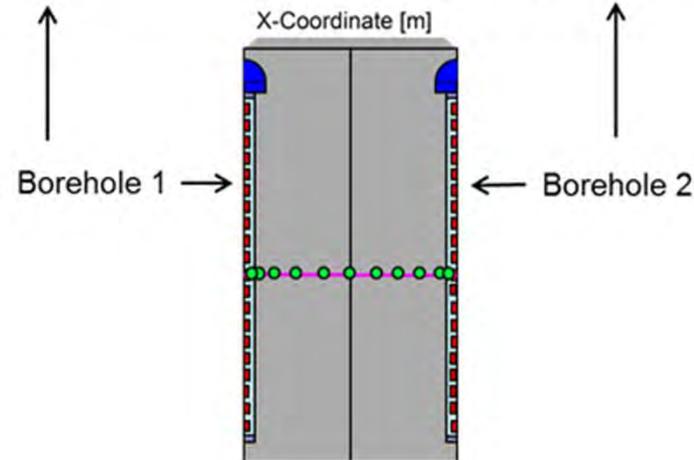
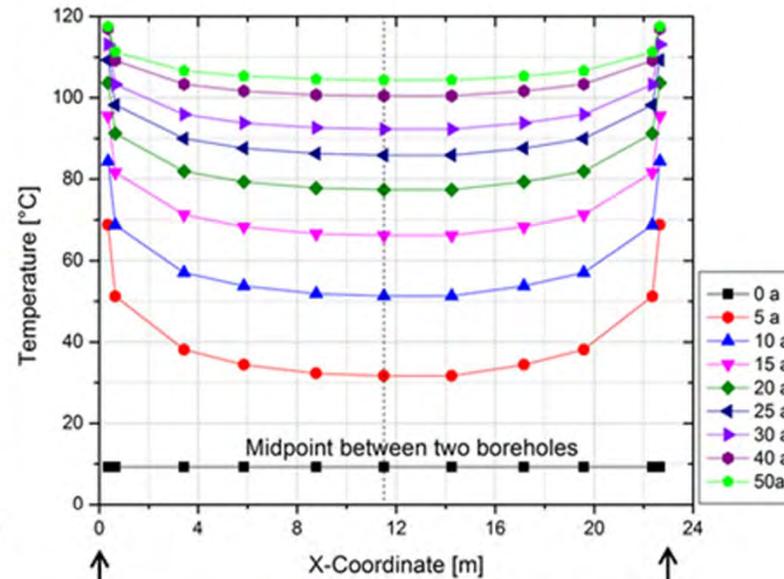
Wärmeausbreitung: Ergebnisse (FLAC3D)

[geologische und geotechnische Barriere]

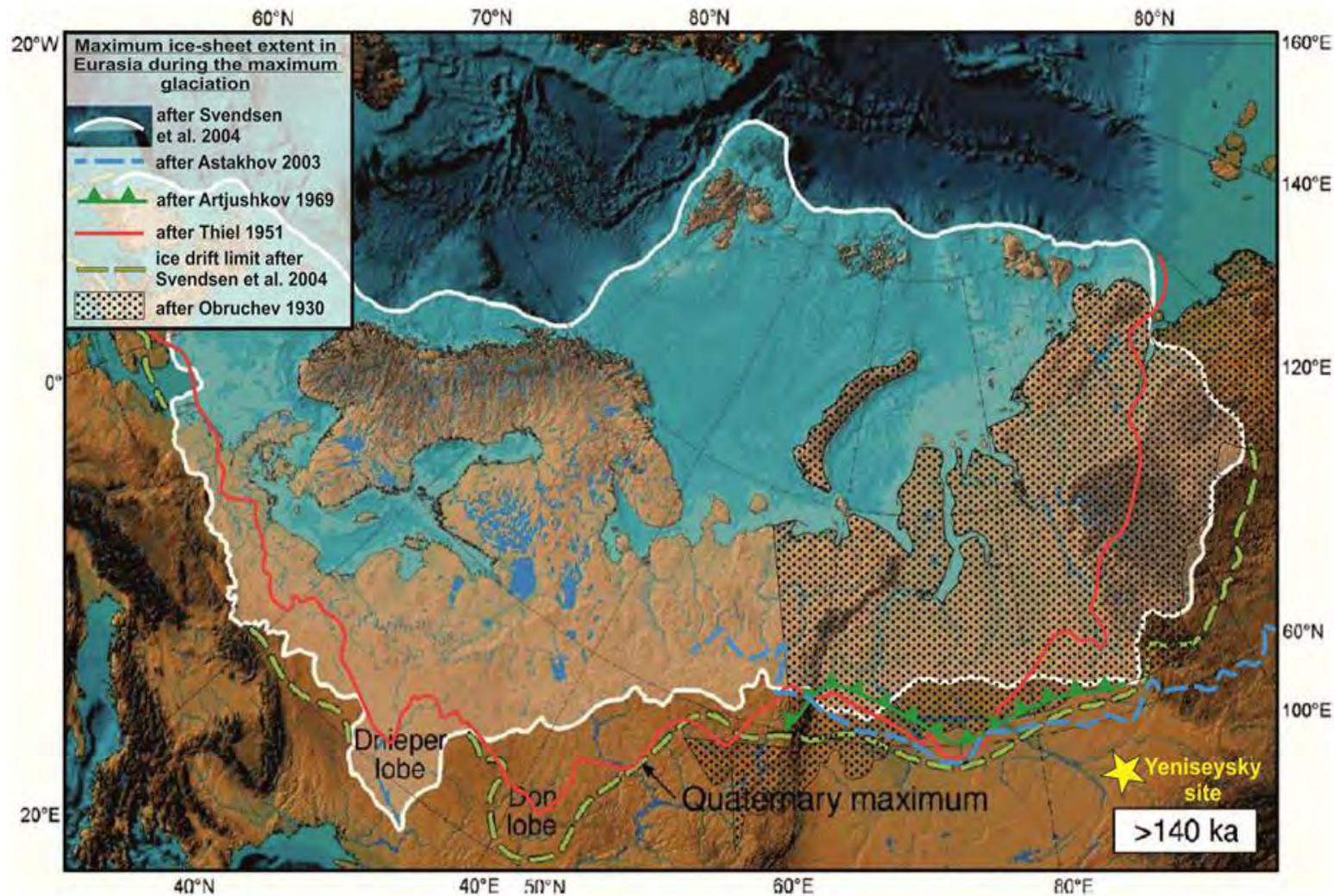


Drift distance = 23 m

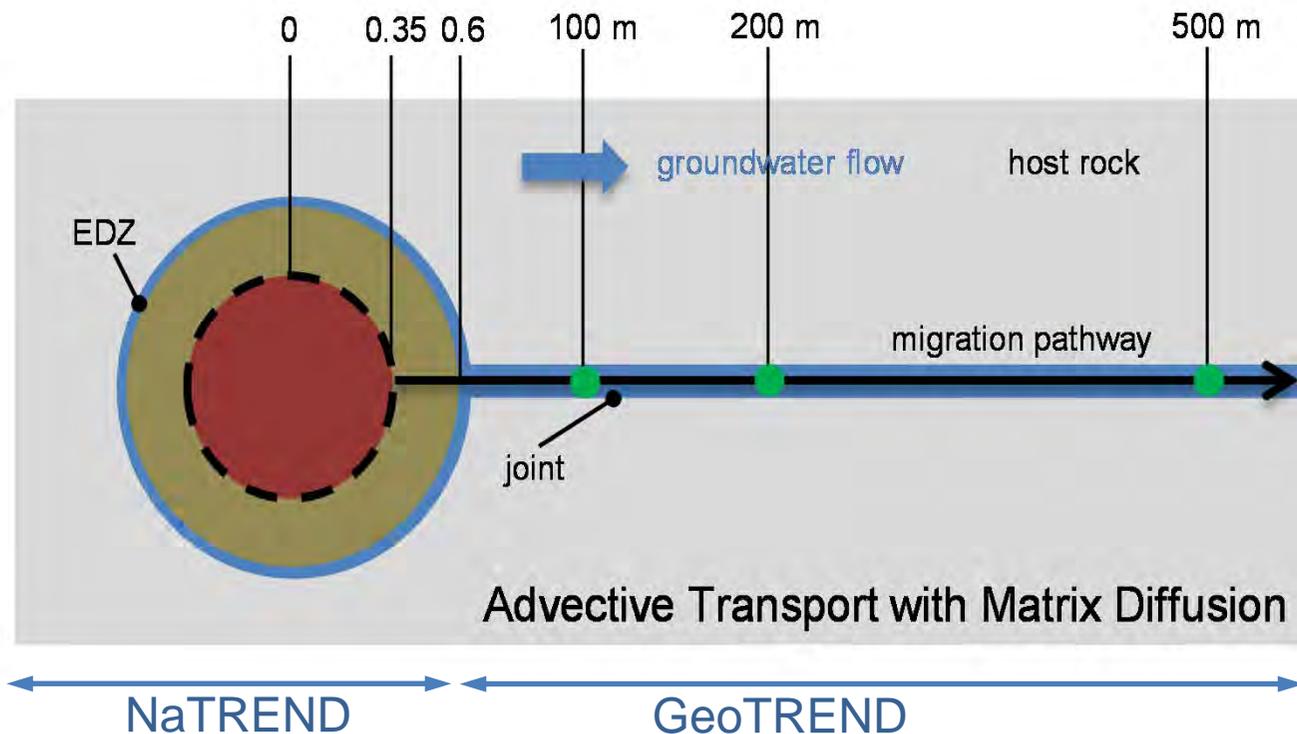
Borehole distance = 19 m



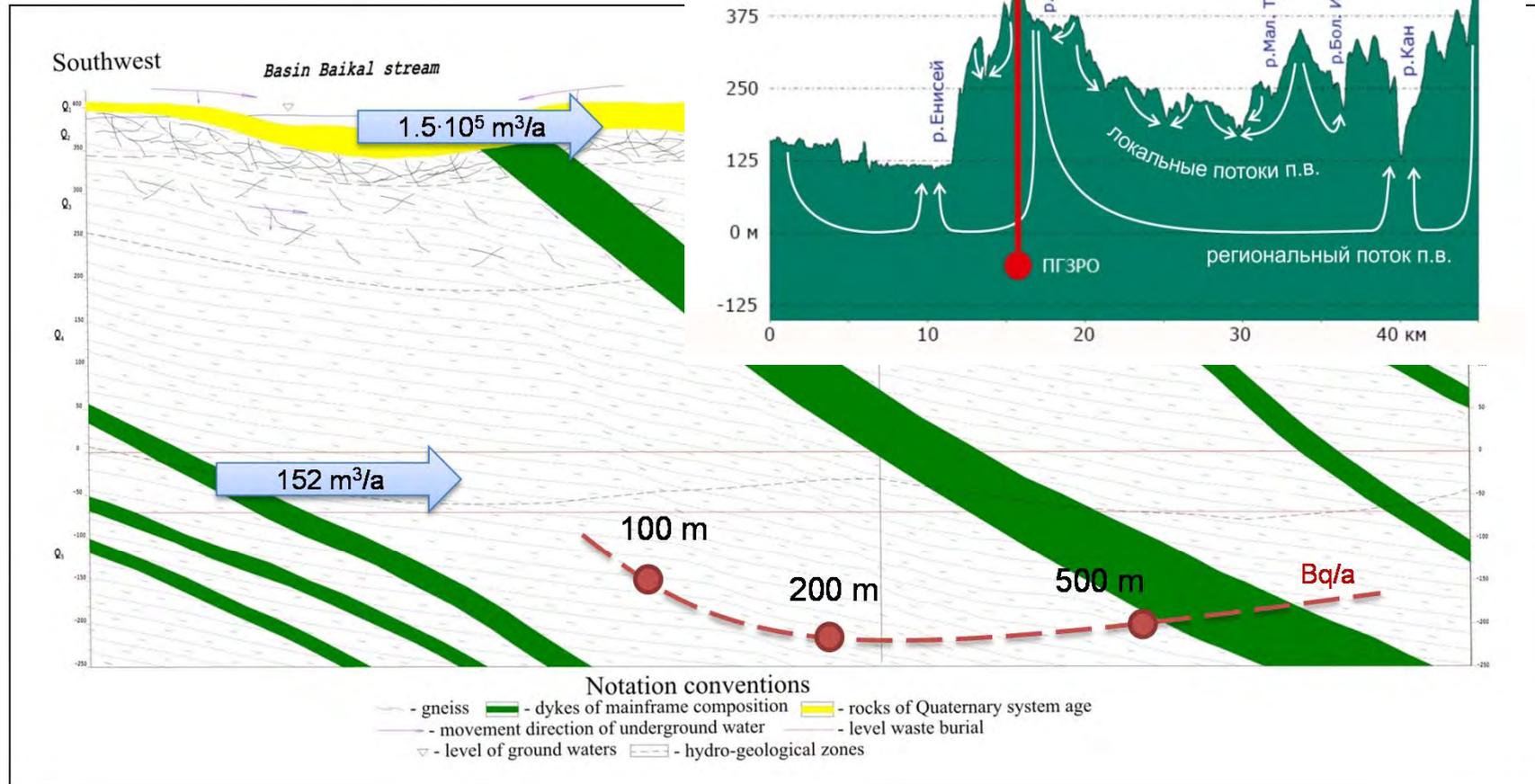
Vergletscherung Moskva (= Saale, ca. 150.000 a) [Beispiel Bewertung äußere Einflüsse]



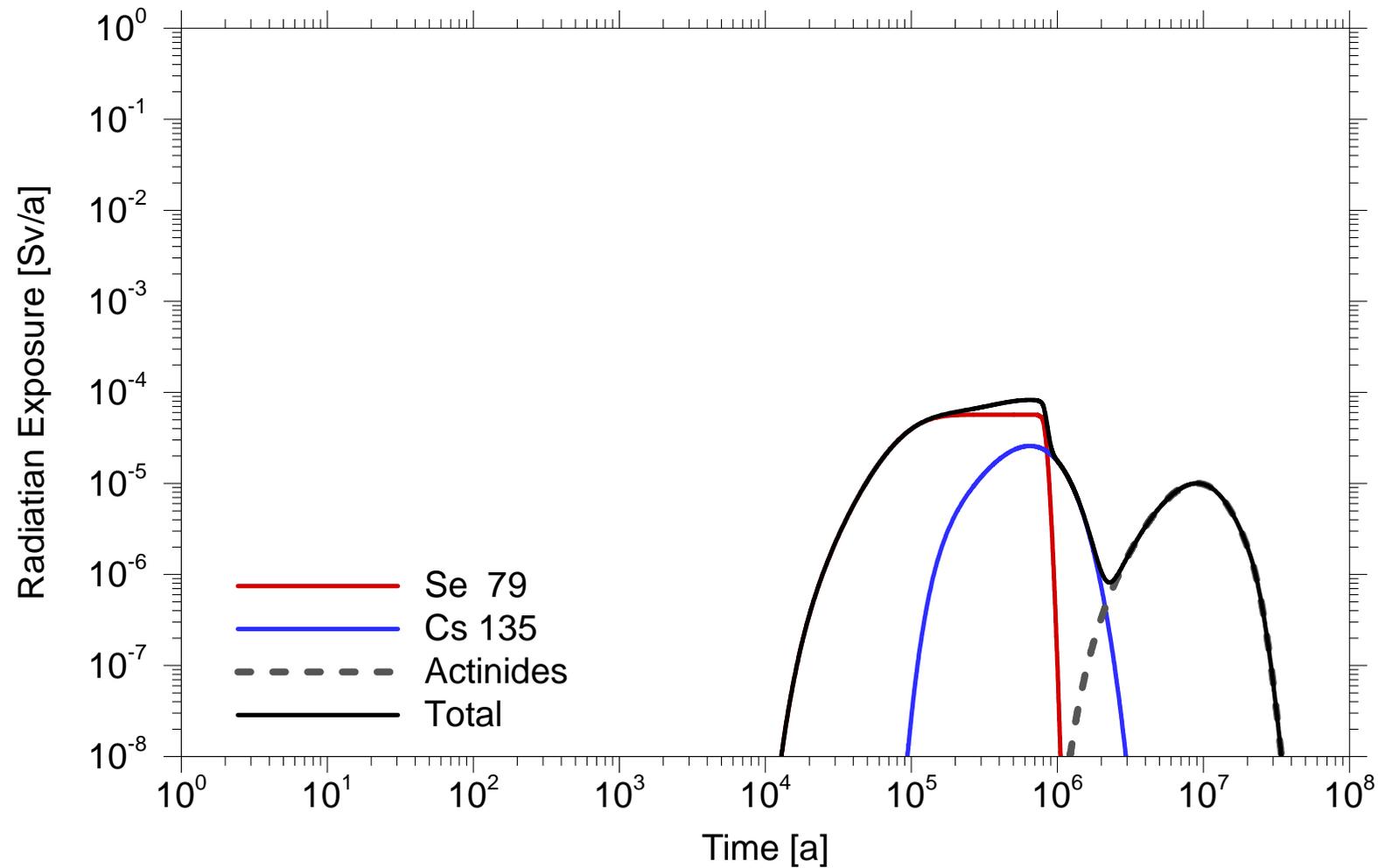
Radionuklidausbreitung (RepoTREND) [Bewertung Σ Barrieren]



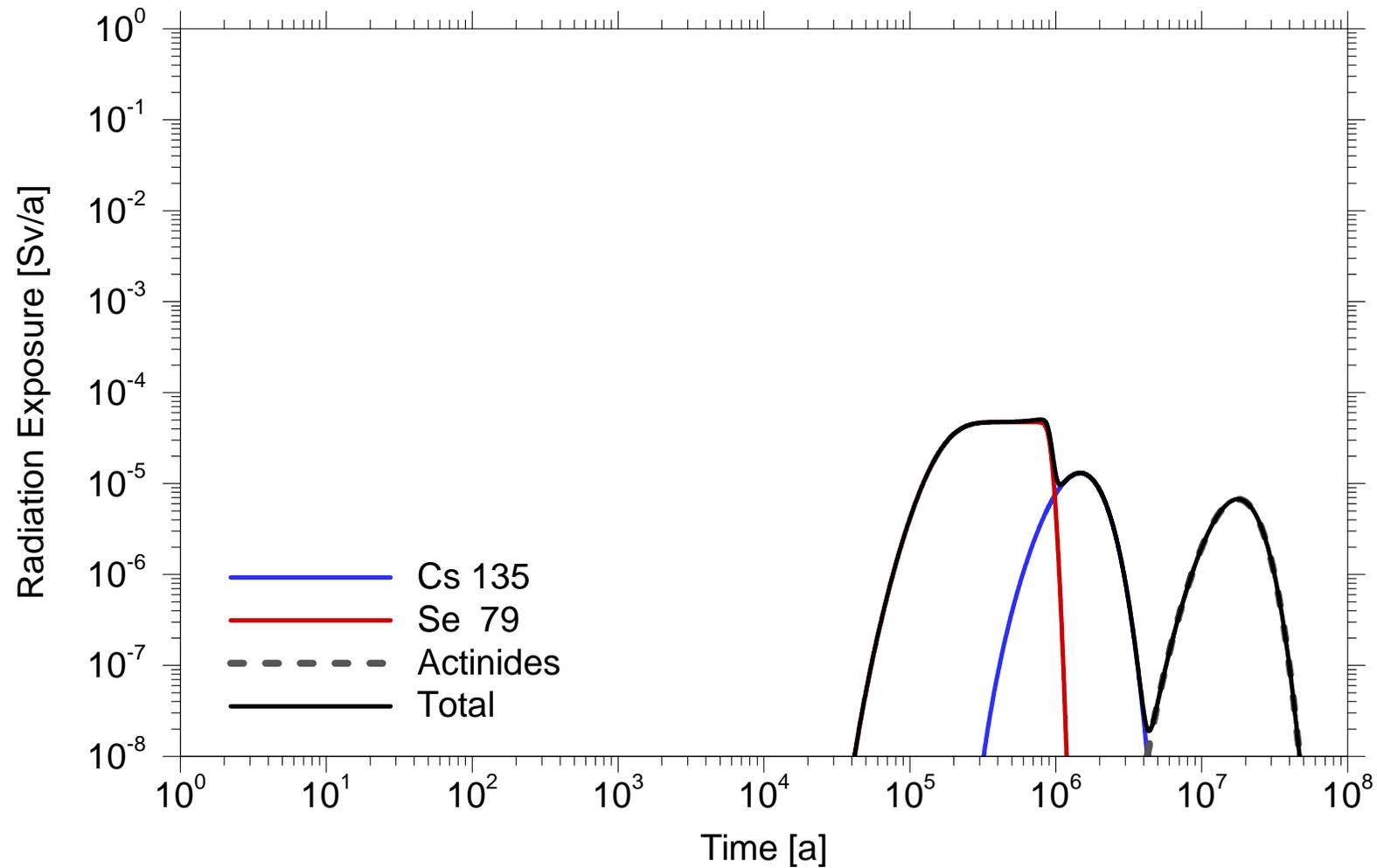
Indikator Strahlenexposition [Bewertung Σ Barrieren]



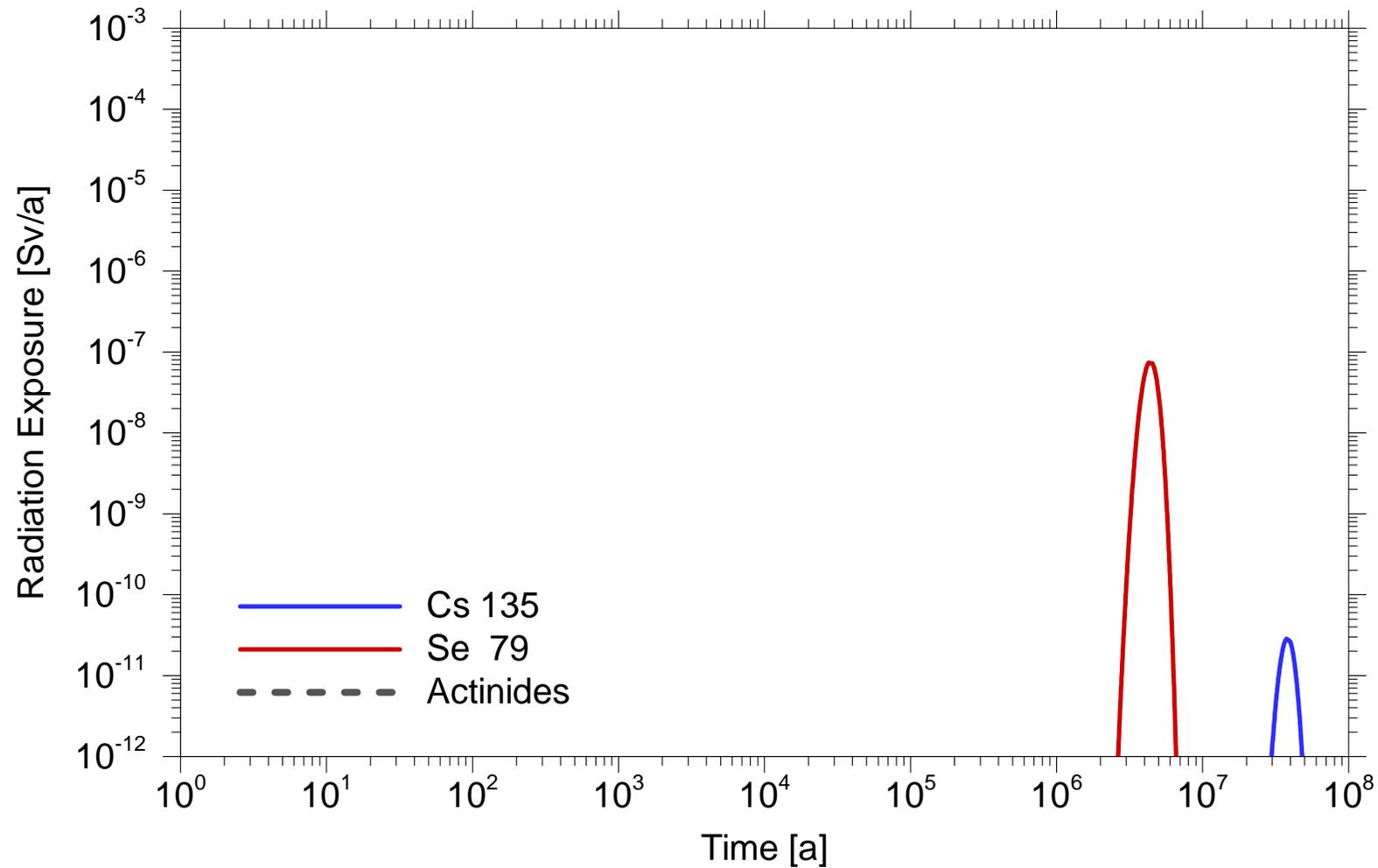
Indikator Strahlenexposition: Transportdistanz 100 m [Bewertung Σ Barrieren]



Indikator Strahlenexposition: Transportdistanz 200 m [Bewertung Σ Barrieren]



Indikator Strahlenexposition: Transportdistanz 500 m [Bewertung Σ Barrieren]

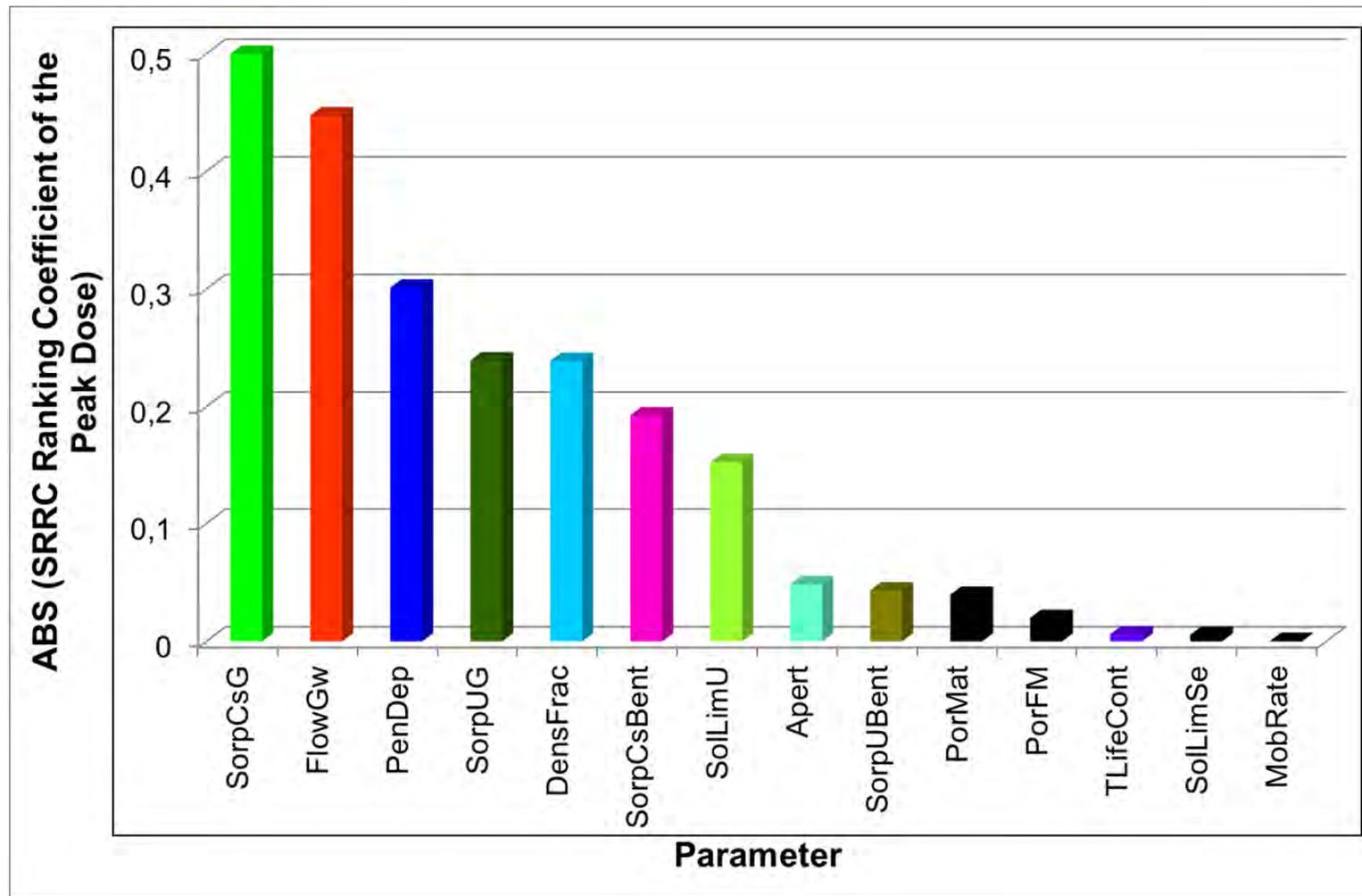


Globale Sensitivitätsanalyse

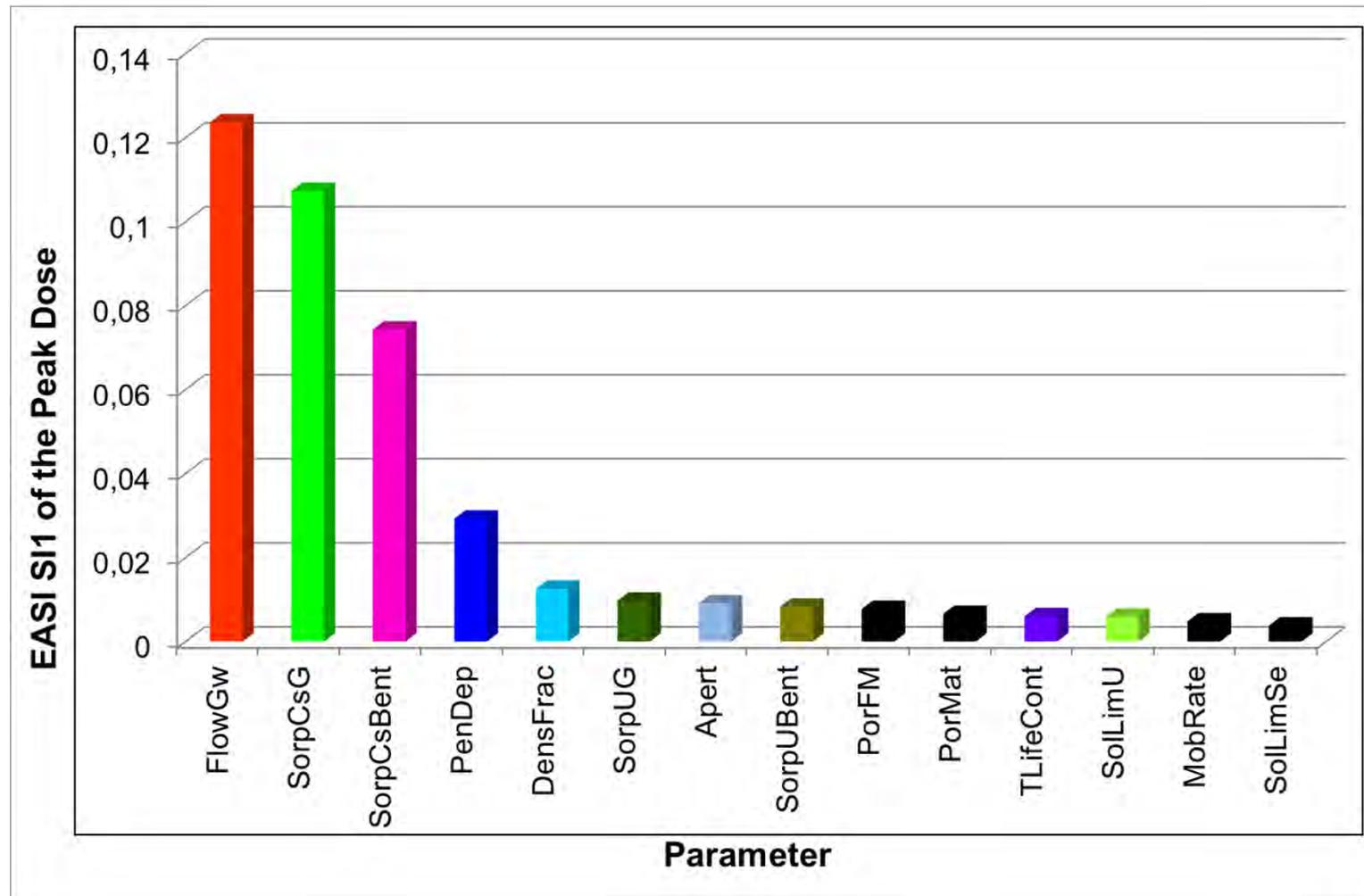
- Probabilistische Rechnungen: 2000 Simulationen
- Parameterverteilungen aus der Literatur

- Verwendung verschiedener Methoden:
 - CSM (**C**ontribution to **S**ample **M**ean)
 - SRRC (**S**tandardized **R**ank **R**egression **C**oefficients)
 - EASI (**E**ffective **A**lgorithm for estimating **S**ensitivity **I**ndices)

Sensitivitätsanalyse: SRRC



Sensitivitätsanalyse: EASI (Fourier Analyse)



Sensitive Parameter

- CSM: Groundwater flow (FlowGW),
Sorption coefficient of Cs for the gneissic rock (SorpCsG)
and bentonite (SorpCsBent)
the penetration depth (PenDep)
- SRRC: Groundwater flow (FlowGW),
sorption coefficient of Cs for the gneissic rock (SorpCsG)
the penetration depth (PenDep)
- EASI: Groundwater flow (FlowGW)
Sorption coefficient of Cs for the gneissic rock (SorpCsG)
and bentonite (SorpCsBent)

Kluftverteilung und Kluftgeometrie!
Cs-Sorption (Wirtsgestein)!

Stand des Vorhabens und Ausblick

- Anwendung und Erweiterung des sicherheitsanalytischen Instrumentariums auf Fragestellungen im Kristallin erfolgreich:
 - Laboruntersuchungen
 - Wärmeausbreitung
 - Einfluss von Erdbeben, Kaltzeiten
 - dichteabhängige Grundwasserströmung in geklüftet-porösen Medien
 - Transport in geklüftet-porösen Medien
 - Neuentwicklung des Fernfeldmoduls GEOTREND-F
 - Anforderungen aus URSEL
- Test neu implementierter Methoden zur Sensitivitätsanalyse
- Juni 2014 Zwischenbericht, 2015 Abschlussbericht URSEL
- weitere Fragestellungen für mögliche zukünftige Kooperationen identifiziert
 - Hydrologie / Hydrogeologie
 - Betriebssicherheit
 - (...)

Vielen Dank!

Gefördert durch:



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie

aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

BETREUT VOM



PTKA
Projektträger Karlsruhe
Karlsruher Institut für Technologie

unter den FKZ 02E10760 und FKZ 02E10750

Untersuchungen zur Rückholung

Wilhelm Bollingerfehr

DBE TECHNOLOGY GmbH

Eschenstraße 55

31224 Peine

11. Projektstatusgespräch

zu

BMW-geförderten FuE-Arbeiten

bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle

Karlsruhe, 25. und 26. November 2014

Inhalt

- **Warum Rückholung?**
- **Definitionen und regulatorische Vorgaben**
 - Definitionen
 - regulatorische Vorgaben
- **Auswirkung der Rückholungsanforderung auf die Endlagerauslegung**
 - Beispiel: Endlager in Salz
 - Beispiel: Endlager in Tonstein
- **Zusammenfassung und Ausblick**

Warum Rückholung?

Mögliche Vorteile(nach IAEA, 2009) :

Öffentliche Akzeptanz schaffen

- Grundsätzliche Vorbehalte gegen irreversible Entscheidungen insbesondere beim Umgang mit radioaktivem Abfall abbauen

Zukünftige Nutzung von Ressourcen

- (Uran, Plutonium,etc)

Möglichkeit erhalten, zukünftig mit neuen Verfahren und Technologien einen besseren Entsorgungsweg zu finden

Möglichkeit zu Korrekturmaßnahmen bei festgestellten Fehlern

Zukünftigen Generationen die Entscheidungsfreiheit lassen, wie mit dem radioaktiven Abfall umgegangen werden soll

Flexibilität im Entscheidungsprozess bewahren

Warum Rückholung?

Mögliche Nachteile (nach IAEA, 2009):

- Negative Auswirkungen auf Betriebssicherheit (konventionell und radiologisch)**
 - Zusätzliche Unfallrisiken und Expositionen für das Betriebspersonal bei Rückholung
- Einfluss auf Langzeit-Sicherheit :**
 - Falls signifikante Schwächung des Barrierensystems durch verzögerte Realisierung von Verfüll- und Verschlussmaßnahmen erfolgt
 - Falls zusätzliche Maßnahmen, die die Rückholung erleichtern sollen (z.B. massiver Streckenausbau) einen optimalen Verschluss des Endlagersystems verhindern oder verzögern
 - Falls das Endlager vor dem Verschluss aufgrund unstabiler, sozialer und politischer Situationen aufgegeben werden muss
- Erschwernis bei der Entwicklung eines akzeptablen Safety Case**
 - Unsicherheiten hinsichtlich des Zeitpunkts des Verschlusses des Endlagers
- Erschwernisse bei der Sicherstellung von Safeguards**
- Zusatzkosten**
 - zus. Infrastruktur, längere Betriebszeit, Wartung und Instandhaltung, Rückbaumaßnahmen

== Begriffe und Definitionen (1/2) ==

Reversibilität (reversibility):

Möglichkeit der Umkehrung eines oder mehrerer Schritte in allen Phasen des Prozesses der Endlagerentwicklung: Endlagerplanung und –auslegung, Bau und Betrieb des Endlagers bis hin zur völligen Rückabwicklung.

Rückholbarkeit (retrievability):

Im Endlagersystem implementierte konzeptionelle und technische Maßnahmen, die es ermöglichen oder erleichtern, den eingelagerten radioaktiven Abfall zurückzuholen.

nach ESK (Entsorgungskommission des BMUB) 2011

== Begriffe und Definitionen (2/2) ==

Rückholung (retrieval):

Die aktive Maßnahme der Rückholung von Abfallbehältern.

Bergung (recovery):

Die aktive Maßnahme der Bergung des Abfalls bzw. der Abfallbehälter. Hiermit ist generell die Rückholung der Abfälle zu einem fortgeschrittenen Zeitpunkt gemeint, bei der die Integrität der Abfallbehälter nicht mehr notwendigerweise gewährleistet ist.

nach ESK (Entsorgungskommission des BMUB) 2011

Regulatorische Vorgaben

Country	Legal requirements	Under consideration	Host rocks
Belgium	—	+	Clay
Canada	+		Crystalline and sedimentary
China	—	—	Crystalline
Finland	+a		Crystalline
France	+		Clay
Germany	—	—b	Salt, iron ore under clay
Hungary	+		Crystalline and claystone
Japan	—	+	Clay, crystalline
Netherlands	+		Clay, salt
Russian Federation	—	+c	Clay, crystalline
Sweden	—	+	Crystalline
Switzerland	+		Clay, crystalline
United Kingdom	—	+	Not defined
Ukraine	—	+d	Crystalline
United States of America	+		Volcanic, (YMP); salt (WIPP)

a Based on container integrity.

b Concept considered inherently retrievable.

c Law under consideration requires retrievability of SNF.

d Draft regulations include retrievability.

nach IAEA, 2009

Regulatorische Vorgaben

Country	Legal requirements	Under consideration	Host rocks
Belgium	—	+	Clay
Canada	+		Crystalline and sedimentary
China	—	—	Crystalline
Finland	+a		Crystalline
France	+		Clay
Germany	+b		Salt, Clay, Crystalline
Hungary	+		Crystalline and claystone
Japan	—	+	Clay, crystalline
Netherlands	+		Clay, salt
Russian Federation	—	+c	Clay, crystalline
Sweden	—	+	Crystalline
Switzerland	+		Clay, crystalline
United Kingdom	—	+	Not defined
Ukraine	—	+d	Crystalline
United States of America	+		Volcanic, (YMP); salt (WIPP)

a Based on container integrity.

b Retrievability as design requirement (BMU-Safety requirements as of 2010)

c Law under consideration requires retrievability of SNF.

d Draft regulations include retrievability.

modifiziert nach IAEA, 2009

== Nationale Gesetzgebung ==

Artikel 8.6 (Sicherheitsanforderungen, BMU 2010) :

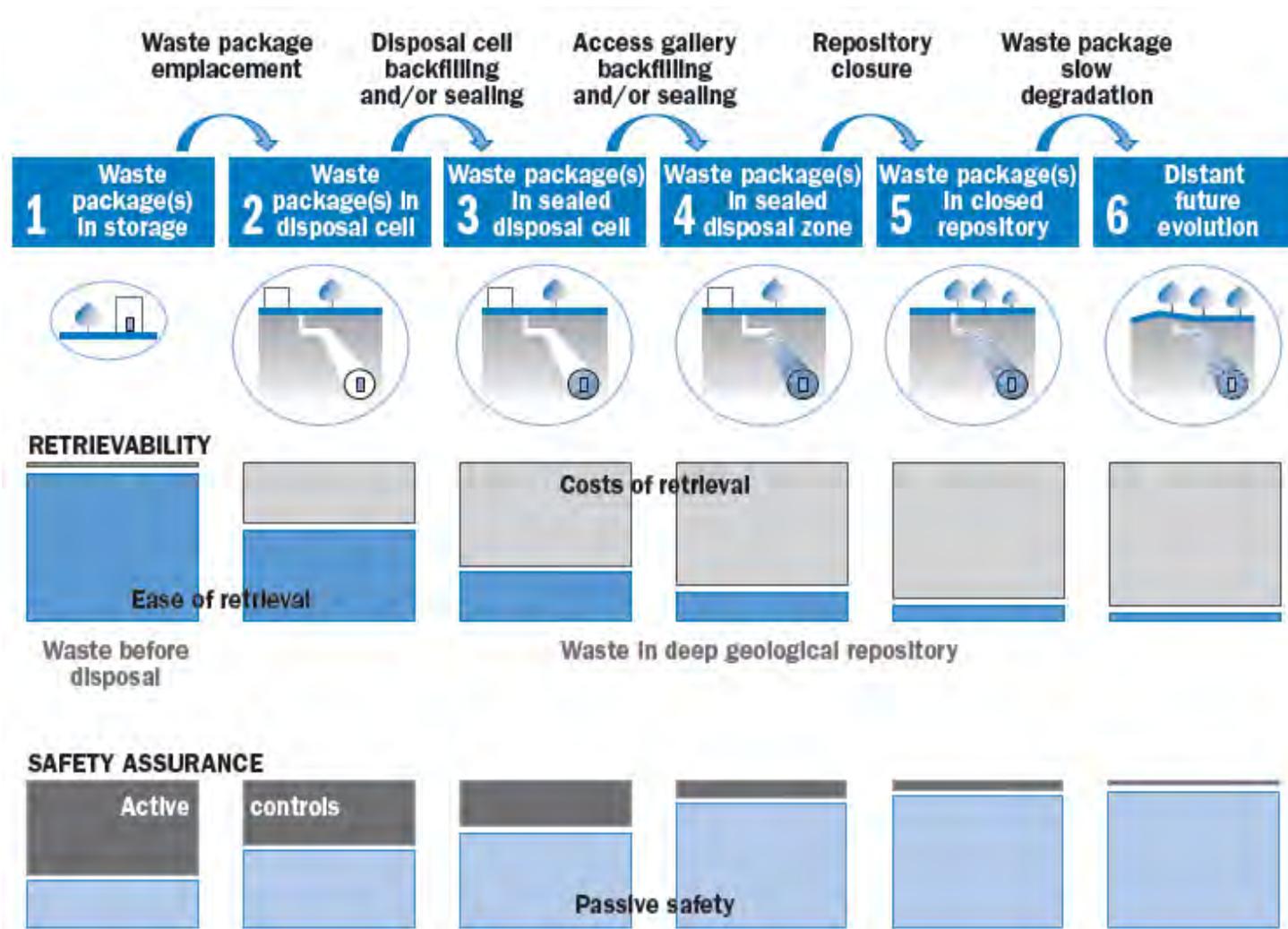
„**Abfallbehälter müssen** unter Berücksichtigung der darin verpackten Abfallprodukte und des sie umgebenden Versatzes folgende **Sicherheitsfunktionen erfüllen**:

- Für die wahrscheinlichen Entwicklungen muss eine **Handhabbarkeit der Abfallbehälter bei einer eventuellen Bergung** aus dem stillgelegten und verschlossenen Endlager **für einen Zeitraum von 500 Jahren** gegeben sein. Dabei ist die Vermeidung von Freisetzungen radioaktiver Aerosole zu beachten.
- **In der Betriebsphase bis zum Verschluss der Schächte oder Rampen muss eine Rückholung der Abfallbehälter möglich sein.**

Maßnahmen, die zur Sicherstellung der Möglichkeiten zur Rückholung oder Bergung getroffen werden, dürfen die **passiven Sicherheitsbarrieren** und damit die **Langzeitsicherheit nicht beeinträchtigen.**“

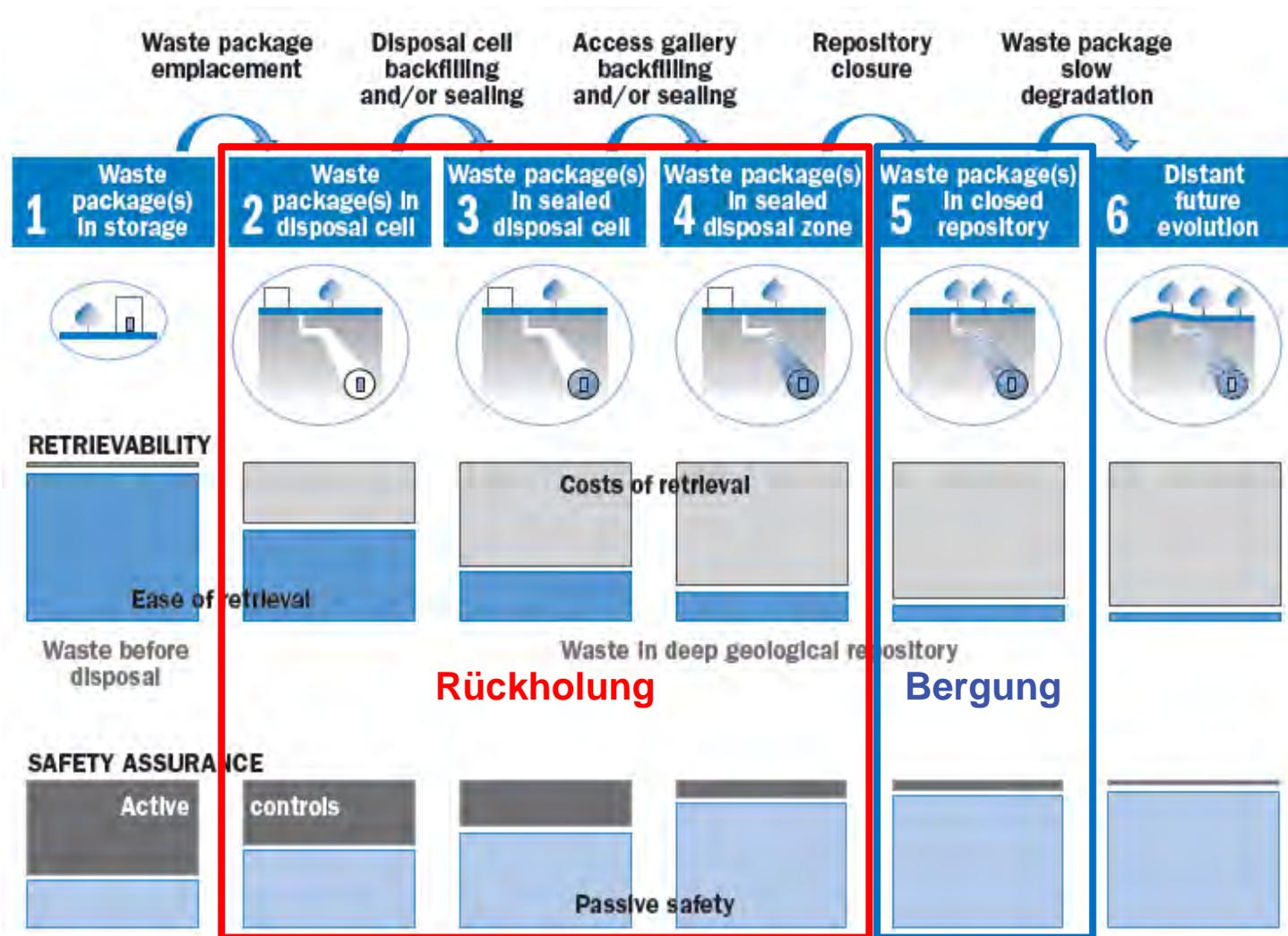
- ***d.h.: Nachweis der Möglichkeiten zur Rückholung wird Gegenstand der Genehmigung für den Bau und Betrieb des Endlagers für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle***

Zeitliche Entwicklung eines Endlagers (Phasen)



(NEA, 2011)

== Rückholung in Endlagerentwicklungsphasen ==



modifiziert nach NEA, 2011

== Rückholungsstrategie ==

Prämisse gemäß BMU-Sicherheitsanforderungen:

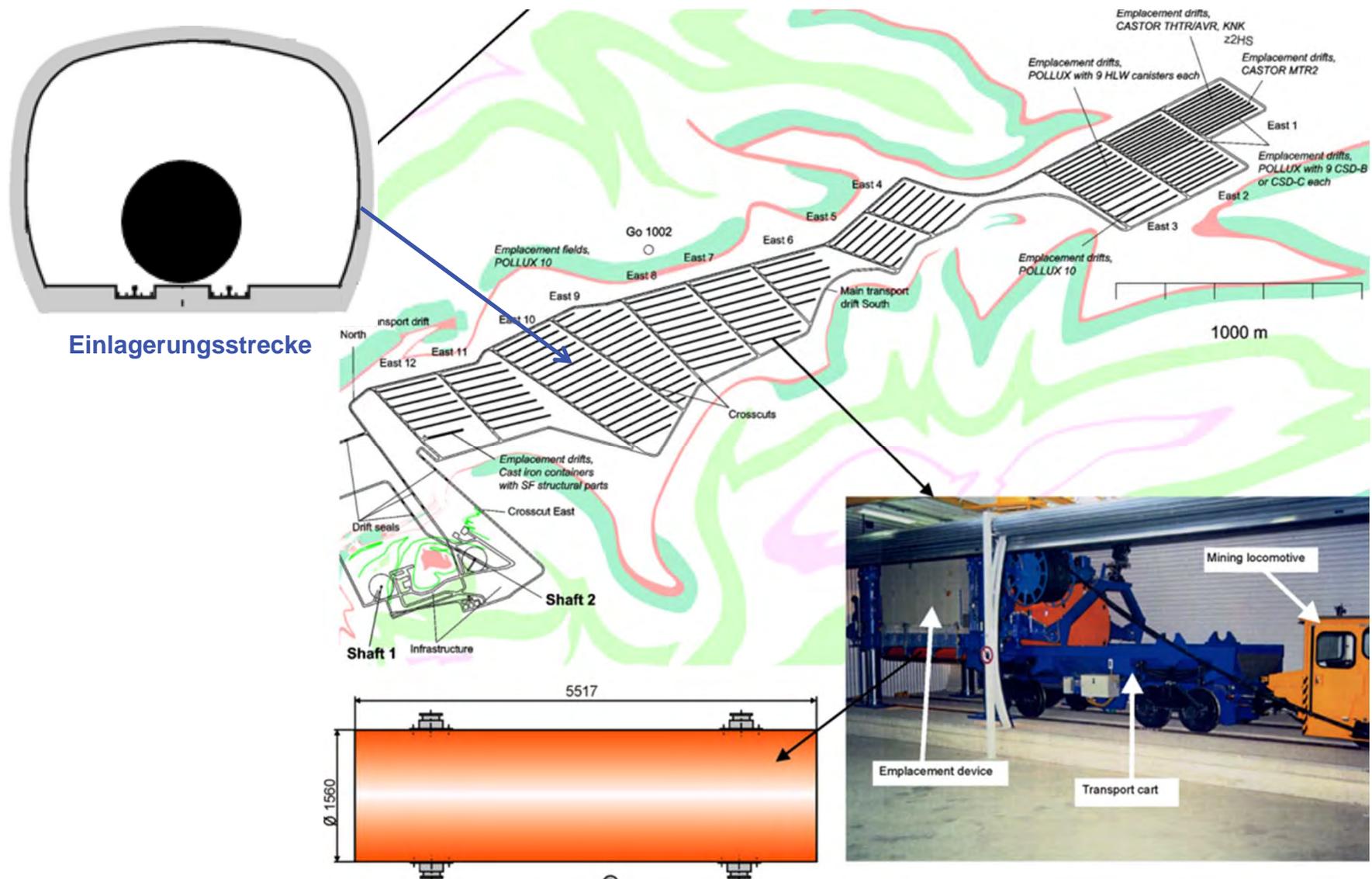
“Die Anzahl der offenen Einlagerungsbereiche ist gering zu halten. Diese sind zügig zu beladen, anschließend zu verfüllen und sicher gegen das Grubengebäude zu verschließen.”

“In der Betriebsphase bis zum Verschluss der Schächte oder Rampen muss eine Rückholung der Abfallbehälter möglich sein.”

→ “Re-mining” Strategie:

- **Einlagerung der Endlagerbehälter, Versatz der Hohlräume und Verschluss der Strecken wie geplant.**
- **Wenige konzeptionelle oder technische Anpassungen zur Erleichterung der Rückholung**
 - negative Einflüsse auf Langzeitsicherheit vermeiden
- **Im Falle einer Entscheidung zur Rückholung:**
 - Zugang zu den Endlagerbehältern durch Wiederauffahrung verfüllter Strecken
 - Freilegen der Endlagerbehälter
 - Aufnahme mit vorhandener ggf. angepasster Einlagerungstechnik
 - Transport nach über Tage

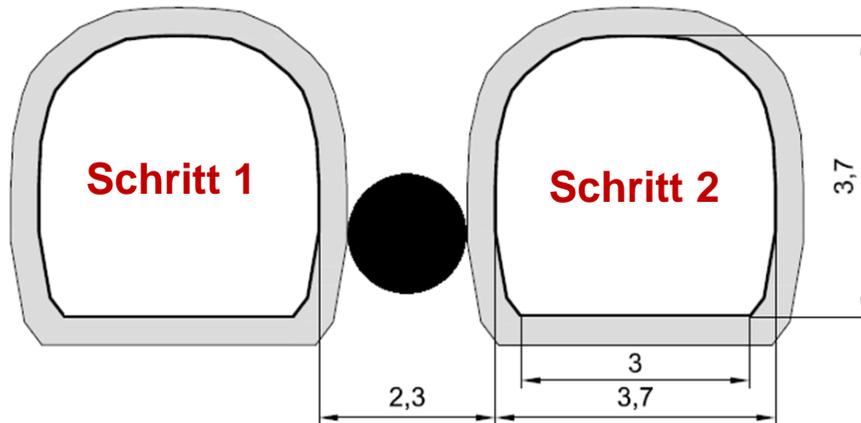
Beispiel: Streckenlagerungskonzept in Salz



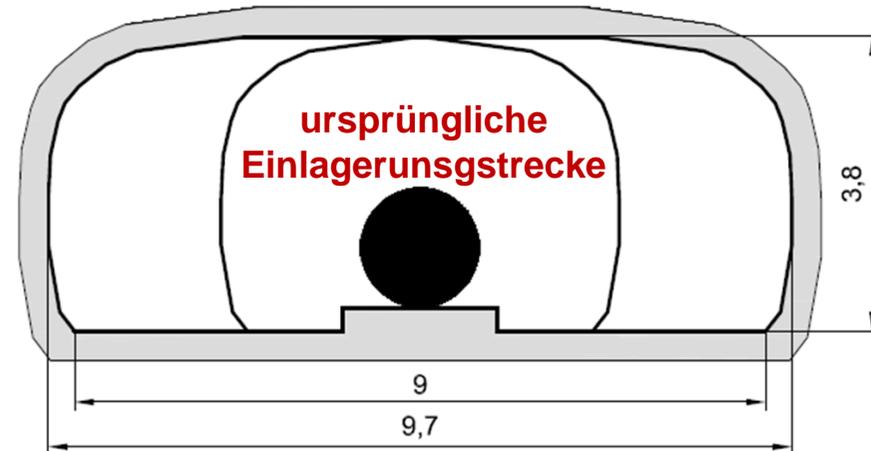
(nach VSG)

== Rückholungsstrategie – Streckenlagerungskonzept ==

Begin der Rückholung:



Endgültiger Streckenquerschnitt:



Auffahrung von zwei Strecken:

- mit Standardbergbaumaschinen
- parallel zum eingelagerten POLLUX® Behälter
- zwischen Querschlägen (Verbesserung der Bewetterungs- und Kühlungsbedingungen)

Freilegen des POLLUX® Behälters:

- Entfernen des verbleibenden Pfeilers
- Freiräumen des POLLUX® Behälters von Versatzmaterial (seitlich, oben und unten)

(nach ASTERIX)

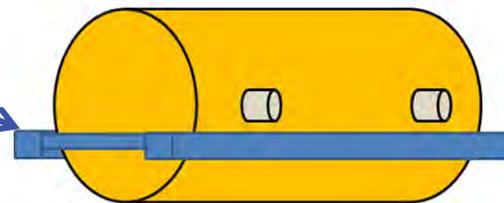
== Rückholungsstrategie – Streckenlagerungskonzept ==

Konzeptanpassungen (nach VSG)

- ✓ hinreichend große Abstände und Pfeiler zwischen Einlagerungsstrecken, Querschlägen und Einlagerungsfeldern vorsehen
- ✓ Rückbau aller infrastrukturellen Einrichtungen nach der Einlagerung (z.B. Gleise)
- ✓ hinreichende Bewetterung und ggf. Kühlung planen
- ✓ Strahlenschutz sowie Monitoring- und Kontrollsysteme planen

Anpassung der Einlagerungsvorrichtung:

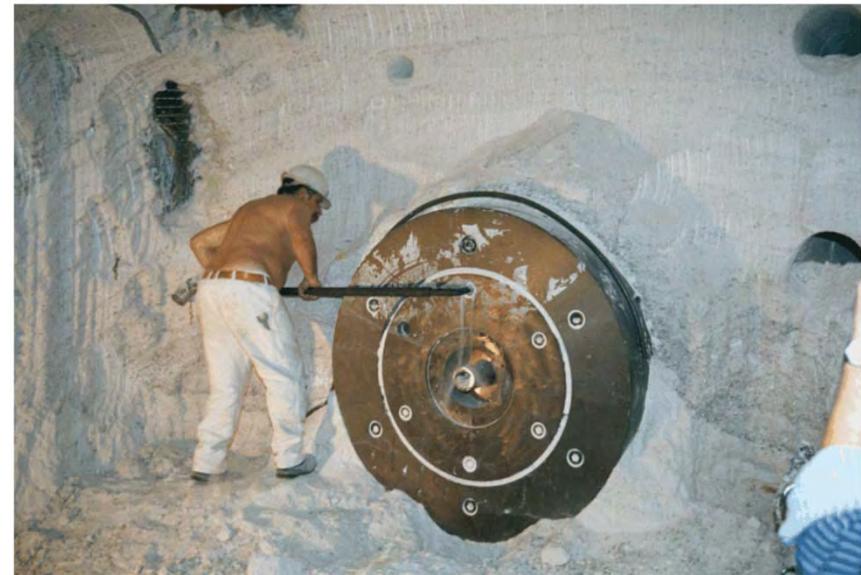
- ✓ zusätzlicher Tragrahmen
- ✓ gleisloser Transport in Einlagerungsstrecke



(nach ASTERIX)



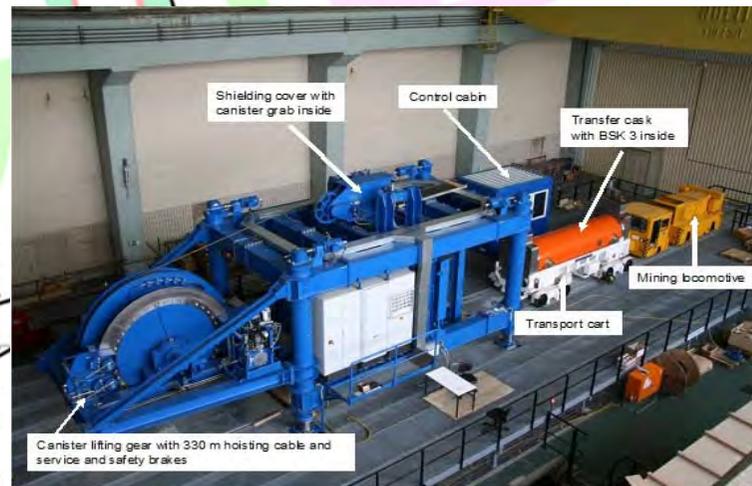
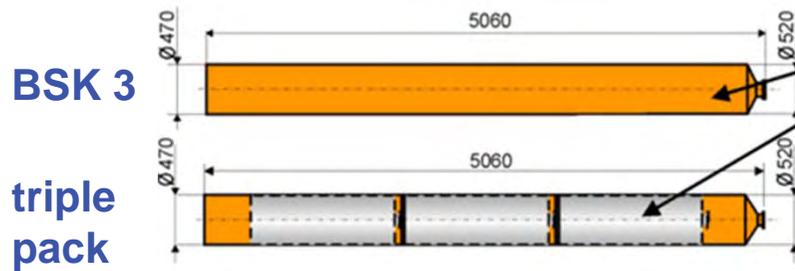
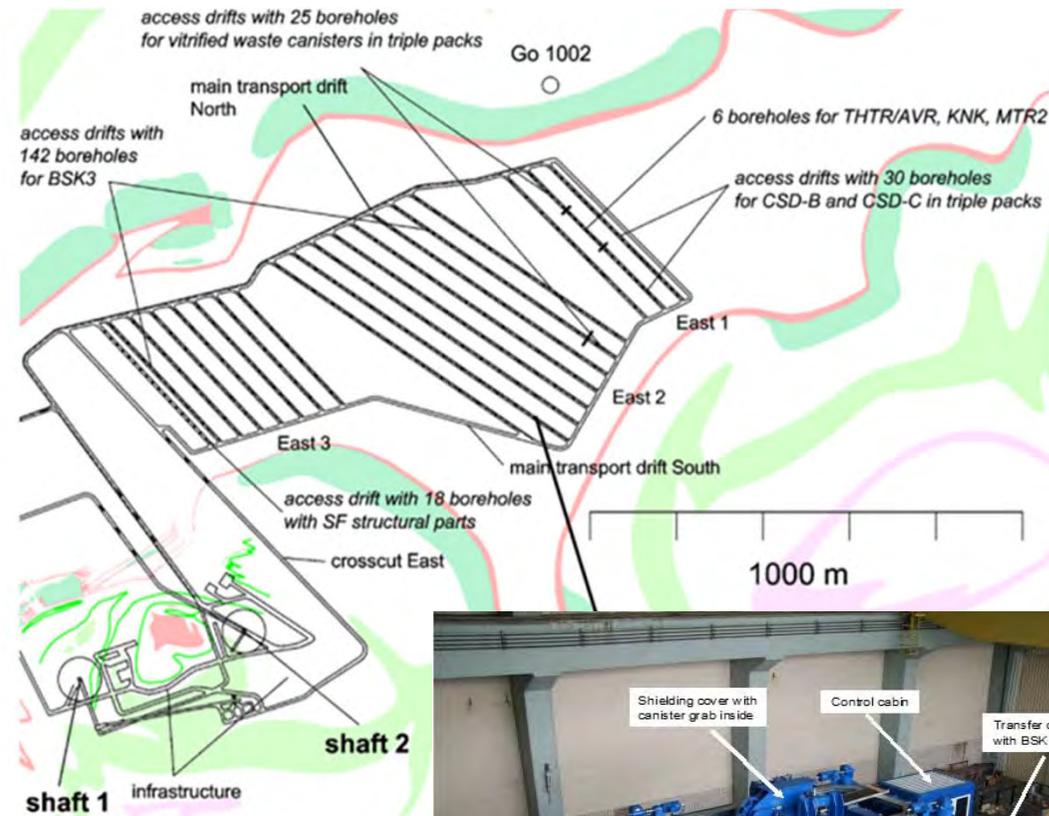
Überprüfung von Rückholungsmöglichkeiten



Möglicher Einlagerungszustand von POLLUX-Behältern in horizontalen Strecken eines Endlagerbergwerkes in Salz

hier: in-situ Versuchsfeld in der Asse mit elektr. beheizten Behältern (links: Montage Versuchsbehälter 1990 und rechts: Demontage 2001)

Beispiel: Bohrlochlagerungskonzept

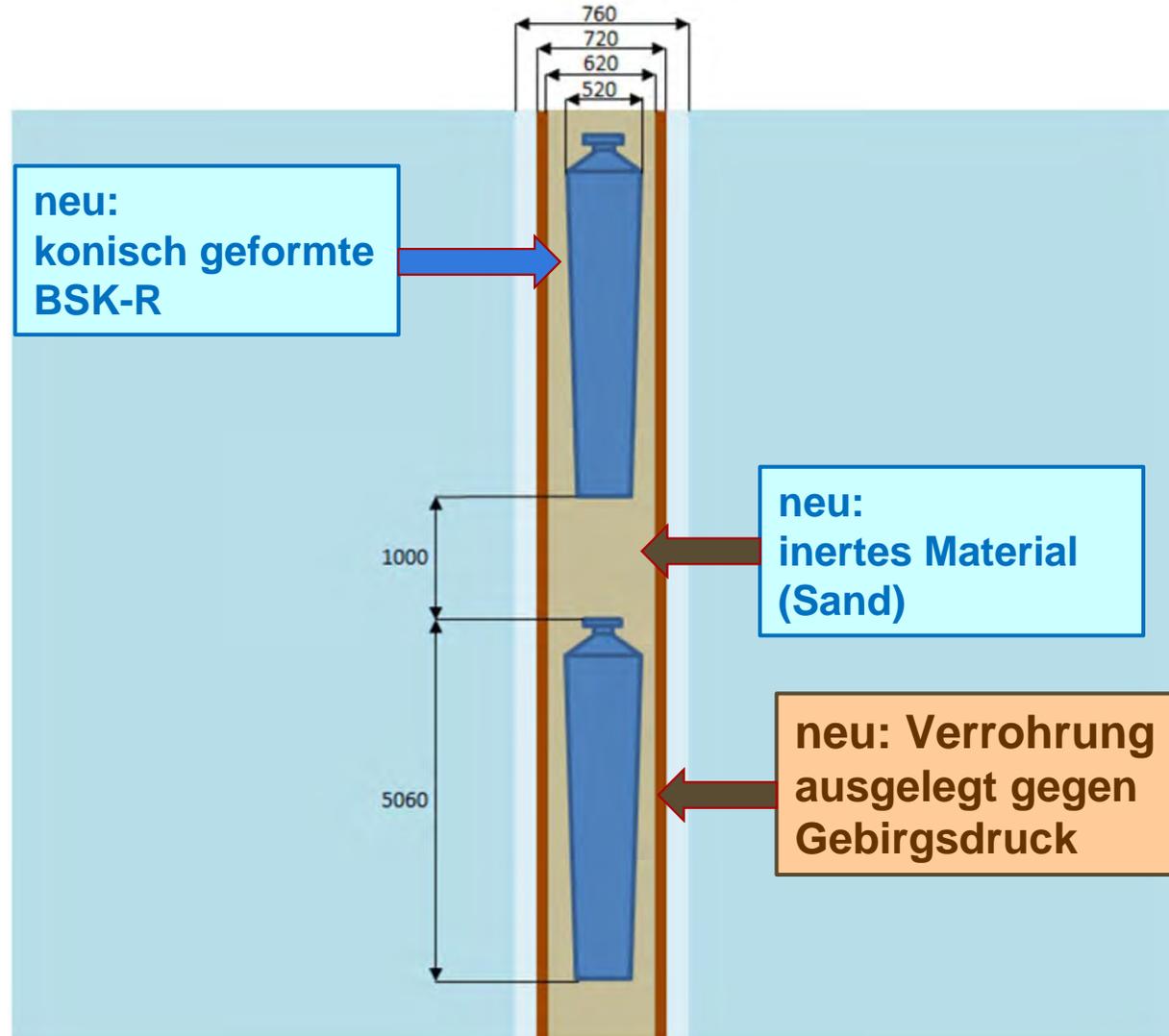


Einlagerungsmaschine (ggf. auch zur Rückholung)

(nach VSG)

Beispiel: Bohrlochlagerungskonzept

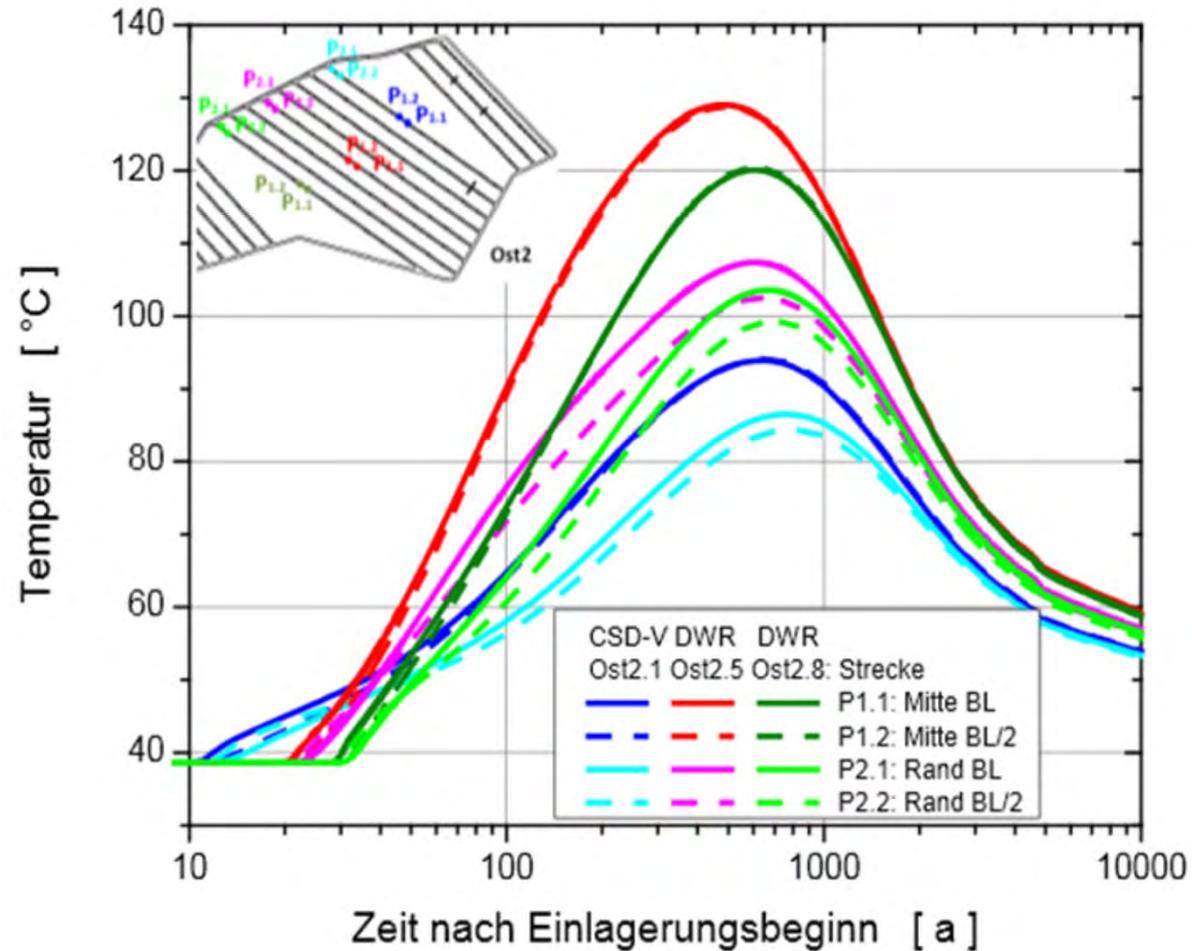
Konzeptanpassung (nach nse)



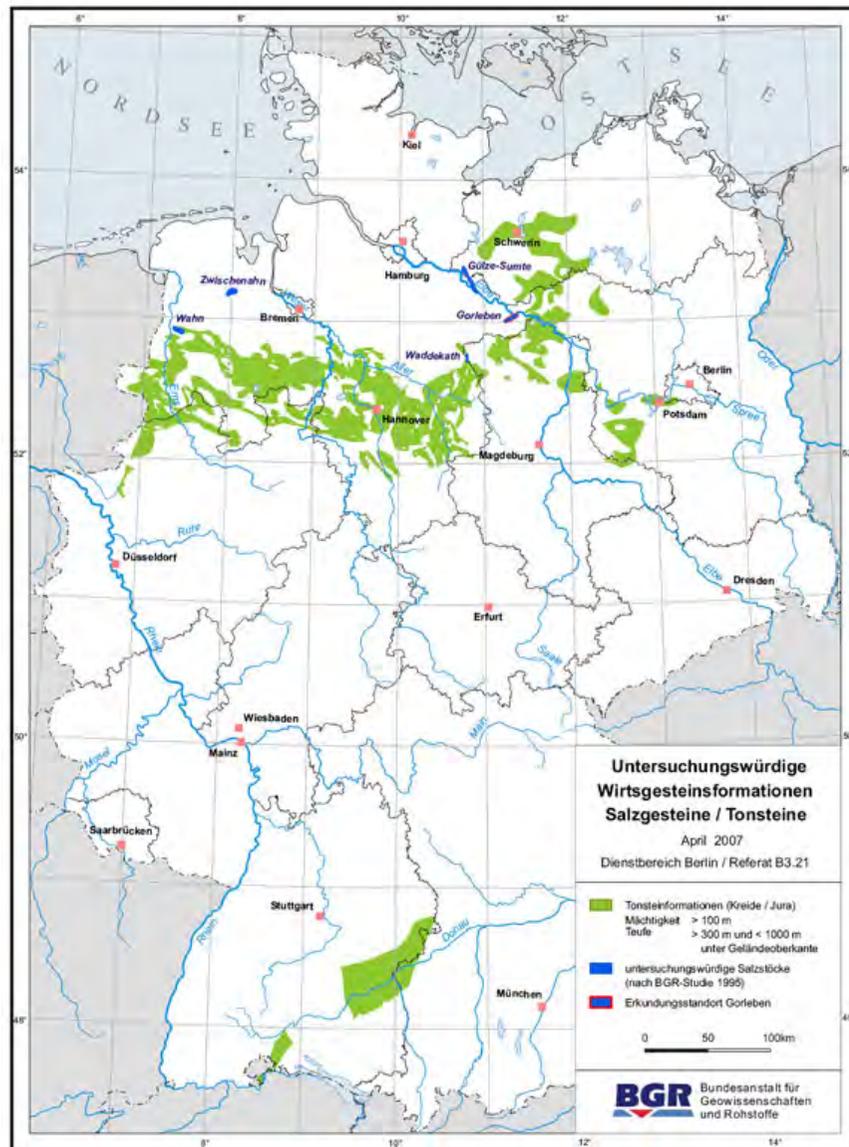
Beispiel: Bohrlochlagerungskonzept

Notwendig: Detaillierte Planung von Bewetterung und Kühlung

Grundlage:
z.B.:
Temperaturfeld-
berechnungen



Endlagerung in Tonstein in Deutschland



(BGR 2007)

Geologische Gesamtsituation:

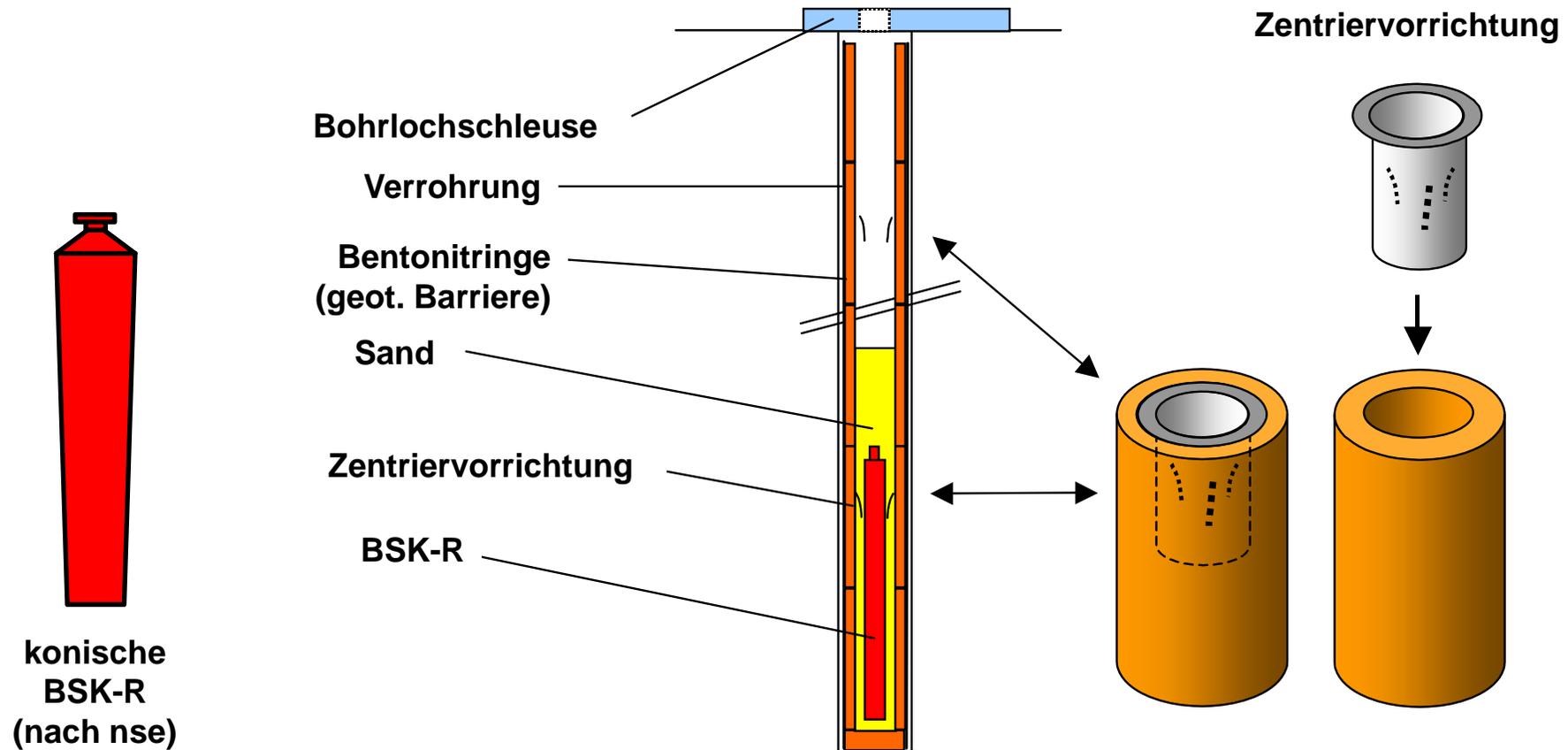
- viele Salzstrukturen in Norddeutschland
- Tonsteinformationen im Norden und Süden
- ungünstige geologische Bedingungen für Kristallingesteine
- neues Standortauswahlverfahren (StandAG)

Endlagerkonzept für Tonstein:

- bisherige Endlagerkonzepte auf Basis der Sicherheitsanforderungen von 1981 erstellt (z.B. GEIST oder ERATO)
- Rückholungsanforderung erfordert Verrohrung des Einlagerungsbohrloches
- Verrohrung hat Einfluss auf Rückholungsstrategie
- Auswirkungen auf Langzeitsicherheit?

Beispiel: Bohrlochlagerungskonzept in Ton

FuE-Vorhaben ERATO

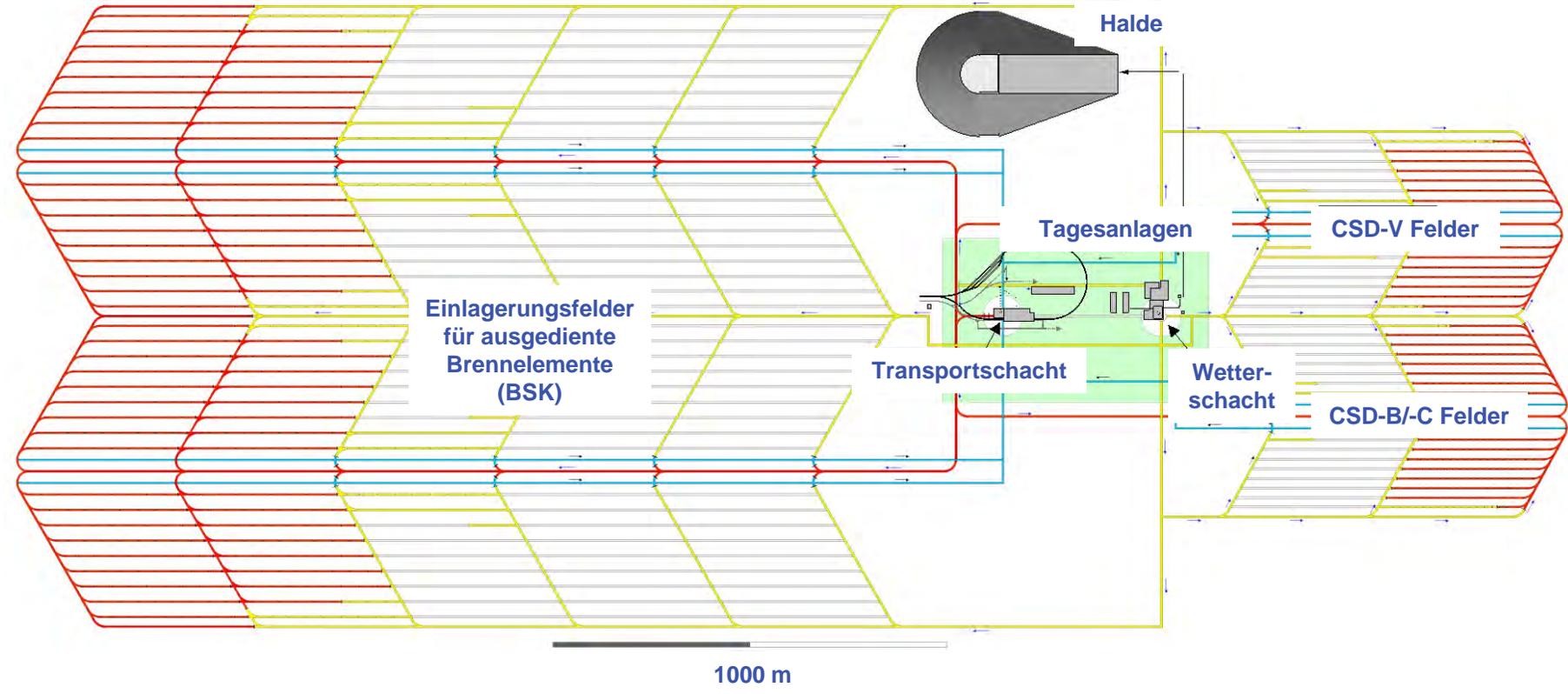


- Umsetzung der Rückholungsanforderung erfordert Einsatz eines speziellen Behälters (BSK-R)
- BSK-R für das Endlagerkonzept in Salz entwickelt (nse im Rahmen VSG, 2012)
- Weiterentwicklung des Bohrlochlagerungskonzeptes i. R. des FuE-Vorhabens ANSICHT

Beispiel: Bohrlochlagerungskonzept in Ton

Grubengebäudeauslegung – Konzept Bohrlochlagerung

(im Rahmen des FuE-Vorhabens ERATO entwickelt)

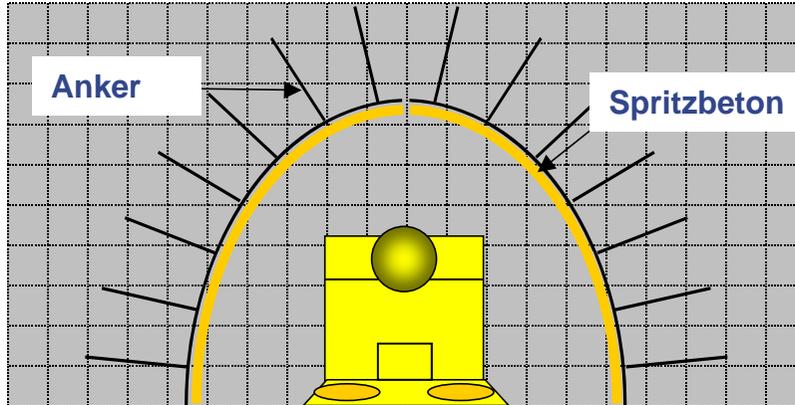


Flächenbedarf: ca. 3.8 km²;
Gesamtlänge der Strecken: ca. 100 km

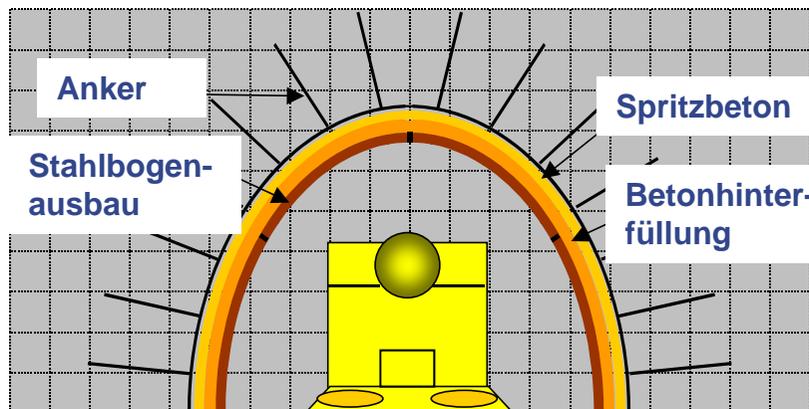
Beispiel: Bohrlochlagerungskonzept in Ton

Ausbaumaßnahmen für Grubenbaue:

Einlagerungstrecken: Anker-Spritzbetonausbau

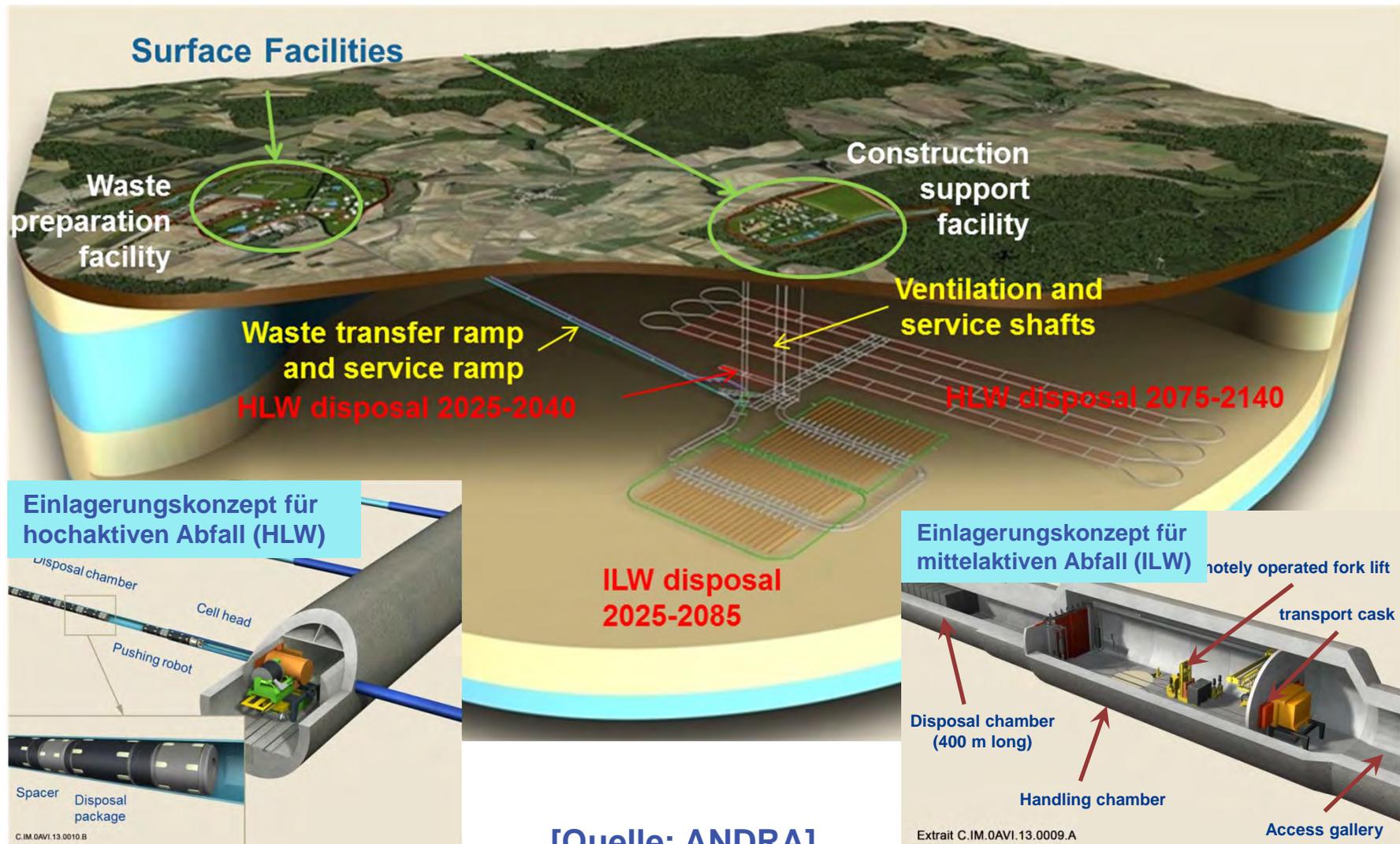


Transportstrecken: Anker-Spritzbetonausbau mit Maschendrahtverzug und Betonhinterfüllung

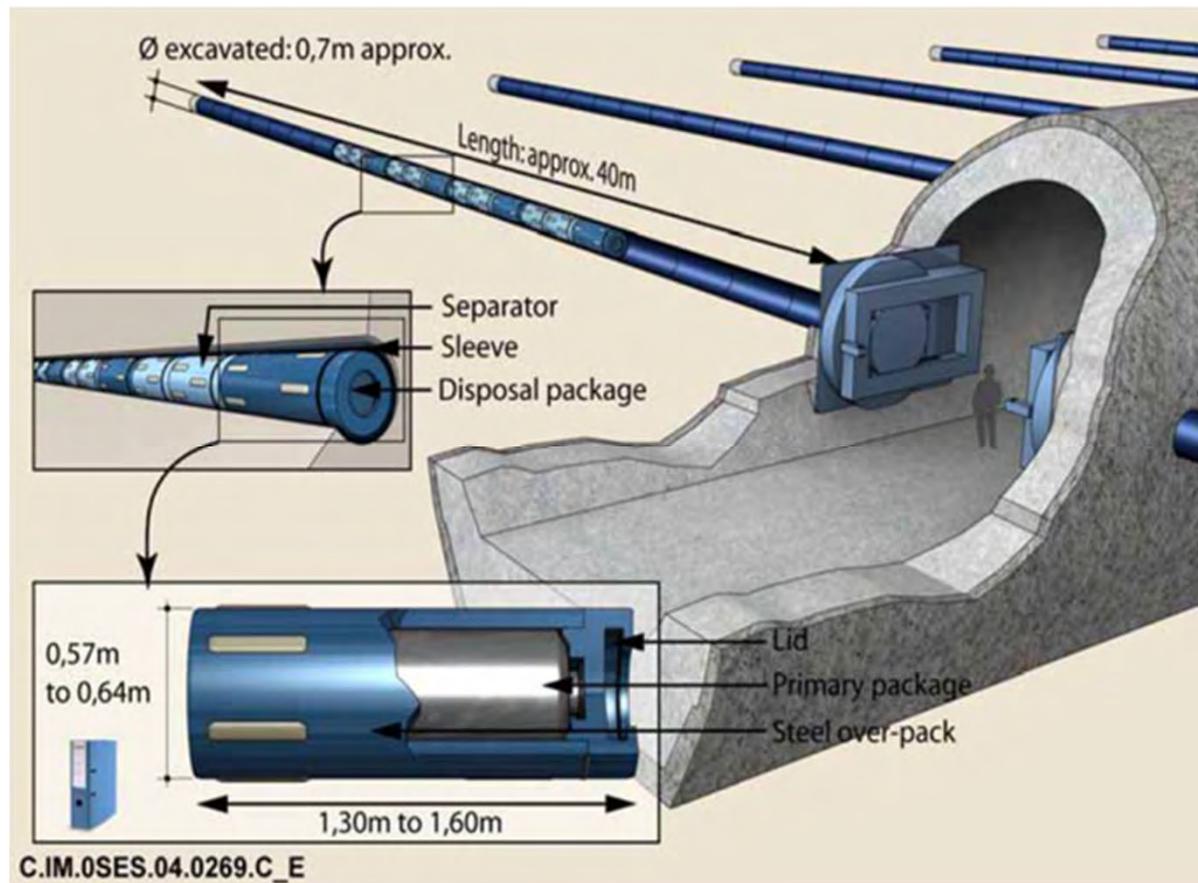


== Cigéo (Frankreichs HAW-Endlagerprojekt in Ton) ==

Konzeptdarstellung



== Cigéo (Frankreichs HAW-Endlagerprojekt in Ton) ==



(ANDRA)

Konzept:

- Reversible Einlagerung von Endlagerbehältern
- Einlagerungstechnik = Rückholungstechnik
- Offenhaltung der Zugangsstrecken

== Zusammenfassung ==

- Einführung von Rückholbarkeit hat Vor- und Nachteile**
- Rückholbarkeit nicht im Widerspruch zum Sicherheitskonzept eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle in einem Salzstock**
- Technische Machbarkeit der Rückholbarkeit von selbstabschirmenden Behältern aus Endlager in Salz wurde planerisch gezeigt (u.a. DEAB 1995, VSG)**
- Technische Anpassungen zur Ermöglichung einer Rückholung von eingelagerten Endlagerbehältern sowohl für Strecken- als auch für Bohrlochlagerung aufgezeigt**
- Anforderung der Rückholbarkeit ändert die Randbedingungen für die Optimierung des Endlagerkonzeptes (Langzeitsicherheit)**

== **Zusammenfassung** ==

□ Folgen/Konsequenzen einer Umsetzung von Rückholung:

- ✓ Bereitstellung von Zwischenlagern für sehr lange Zeiträume**
- ✓ Bereitstellung von Behältern für sehr lange Zwischenlagerung**
- ✓ Neue kerntechnische Anlagen (Konditionierungsanlage)**
- ✓ Entwicklung einer alternativen Entsorgungsstrategie!?**

□ FuE-Bedarf :

- Konzeptentwicklung und Sicherheitsnachweise insbesondere für Endlager (einschließlich Rückholungsmöglichkeit) in nicht salinaren Wirtsgesteinen**
- Entwicklung von Rückholungstechniken und -verfahren**
- Demonstrationsversuche zur Überprüfung der Sicherheit und Zuverlässigkeit der Rückholungstechniken (neuer Stand der Technik)**

Ausblick

Ergebnisse des FuE-Vorhabens ASTERIX:

- ✓ Grundlagen und Randbedingungen für Rückholung
- ✓ Rückholungsstrategie für Endlager in Salz
- ✓ Ansätze für Rückholungsstrategien für Endlager in Ton

Arbeitsschwerpunkte im FuE-Vorhaben ERNESTA (8/14 bis 01/17):

- Konzeptübergreifende Fragestellungen (z.B. Strahlenschutz, Bewetterung, Kühlungsmaßnahmen, Lagerung zurückgeholter Behälter/Abfälle etc.)
- Vertiefte Planung von Rückholungskonzepten für die Streckenlagerung, Bohrlochlagerung, TLB (Transport- und Lagerbehälter) -Lagerung in Salz
- Planung eines Rückholungskonzeptes bei der Endlagerung im Tongestein
- Umsetzungsplan zur Durchführung möglicher Demonstrationsversuche

== Danksagung ==

Vielen Dank!

- **meinen Kollegen:**

- ✓ **Niklas Bertrams**
- ✓ **Wolfgang Filbert**
- ✓ **Philipp Herold**
- ✓ **Sabine Dörr**
- ✓ **Eric Simo**

für ihre Arbeiten/Beiträge zum Thema Rückholung

- **dem BMWi und dem Projektträger PTKA für die Förderung der FuE-Vorhaben zur Rückholung (ASTERIX und ERNESTA)**



**Vielen Dank
für Ihre Aufmerksamkeit.**



TECHNISCHE UNIVERSITÄT
BERGAKADEMIE FREIBERG
Die Ressourcenuniversität. Seit 1765.



Forschungsvorhaben ELSA 2 – Halbtechnische Versuche zur Verdichtung von Salzgrus und Schachtverschlusskonzepte im Tonstein und Salz

Prof. Dr.-Ing. W. **Kudla** (TU Bergakademie Freiberg)

Dipl.-Geophys. M. **Jobmann**, Dipl.-Ing. P. **Herold** (DBE-Tec, Peine)

**11. Projektstatusgespräch zu BMWi-geförderten FuE Projekten
bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle
Karlsruhe 25./26.11.2014**

ELSA (= Endlagerschachtverschlüsse) =
Schachtverschlüsse für Endlager für hoch radioaktive
Abfälle

Teil 2: Konzeptentwicklung von Schachtverschlüssen
und Test von Funktionselementen

Generelles Ziel:

Standortunabhängige Entwicklung und
Weiterentwicklung von Konzepten und Komponenten
für Schachtverschlüsse für ein Endlager für
hochradioaktive Abfälle (im Salinar und im Tonstein)

Themenkomplex Schachtverschlüsse ist ein
Förderschwerpunkt im BMWi-Förderkonzept
**„Schwerpunkte zukünftiger FuE-Arbeiten bei der
Endlagerung radioaktiver Abfälle“ (2011-2014)**

Abschnitt **„6.1 Endlagersystem“** –
Unterabschnitt: „Geotechnische Barrieren“

Abschnitt **„6.2 Systemverhalten und Systembeschreibung“**
Unterabschnitt: „Verhalten der technischen und
geotechnischen Barrieren“

Organisatorisches

Projektleitung:

- TU Bergakademie Freiberg, Institut für Bergbau und Spezialtiefbau

im Verbund mit

- DBE Technology, Peine

Nachauftragnehmer:

- TU Bergakademie Freiberg, Institut für anorganische Chemie
- Institut für Gebirgsmechanik (IfG), Leipzig
- IBeWa Ingenieurgesellschaft mbH, Freiberg
- KIT-CMM Kompetenzzentrum für Materialfeuchte, Karlsruhe

Bergmännische Arbeiten:

- TS-Bau , Niederlassung Jena
- Glückauf Sondershausen Entwicklungs- und Sicherungsgesellschaft (GSES)

Beteiligte:

Dipl.-Ing. **Glaubach**, Dr.-Ing. **Gruner**,
Dipl.-Ing. **Hofmann**, Prof. Dr.-Ing. **Kudla**
(TU Bergakademie Freiberg, Institut für Bergbau und Spezialtiefbau)

Dipl.-Geophys. **Jobmann**, Dipl.-Ing. **Herold**
(DBE Technology, Peine)

Dr. rer. nat. **Freyer**
(TU Bergakademie Freiberg, Institut für anorganische Chemie)

Dr. rer. nat. **Popp**, Dipl.-Ing. **Rölke**
(Institut für Gebirgsmechanik Leipzig Leipzig)

Dr.-Ing. **Wilsnack**, Dr. rer. nat. **Grafe**
(IBEWA Ingenieurgesellschaft, Freiberg)

Dr.-Ing. **Schuhmann**, Dr. **Emmerich**, Dipl.-Ing. **Königer**
(KIT-Competenzzentrum für Materialfeuchte)

Projektlaufzeit:

**(ELSA 1: 1/2011 – 1 /2013
abgeschlossen am 19.09.2012 mit Kolloquium in Peine)**

ELSA 2: 5/2013 bis 12/2015

AP1 Konzeptplanung für Schachtverschlüsse im Salz und im Tonstein

1. Anforderungen an Schachtverschlüsse (siehe ELSA1))
2. Auswahlkriterien für Funktionselemente und Baustoffe
3. Eventuell Auswahl und Begründung zusätzlicher Funktionselemente unter Berücksichtigung des Wirtsgesteins
4. Maßnahmen in der Auflockerungszone und Kontaktzone (vor allem im Bereich der Dichtelemente)
5. Gesamtkonzeptentwicklung und Entwurf (je ein Konzept für Salz und Tonstein), modular, standortunabhängig

AP2 – AP3 – AP4

Planung - Laborversuche - halbtechnische Versuche

1. Füllsäulen aus verdichtetem Steinsalz
2. Kalotten aus Basaltsteinen als Zusatzelement in setzungsstabilen Schottersäulen
3. Elemente aus MgO-Beton in Ortbetonbauweise
4. Weiterentwickelte Vergütung durch Injektionen
5. Weiterentwicklung Asphaltichtung
6. Untersuchungen zum Bentonitdichtelement (im Tonstein)

AP5 Modellierung

1. Simulation der Tragwirkung einer aus Formsteinen bestehenden Kalotte in einem Schacht
2. Simulation einer Erdbebenbeanspruchung auf einen Schachtverschluss (insbesondere der Setzung von ungebundenen Schüttmaterialien)
3. Simulation von Bauzuständen beim Einbau von Bitumendichtelementen in einem Schacht
4. Hydraulische Modellierung in Bezug zu den Untersuchungen im Bentonitelement

AP6 Bericht

1.

Untersuchungen zur Verdichtung von Salzgrus – Laborversuche und Technikumsversuche

2.

Schachtverschlusskonzepte im Salz und im Tonstein

Ziel:

Verdichtung von Salzgrus im Schacht in der Weise, dass ein Dichtelement

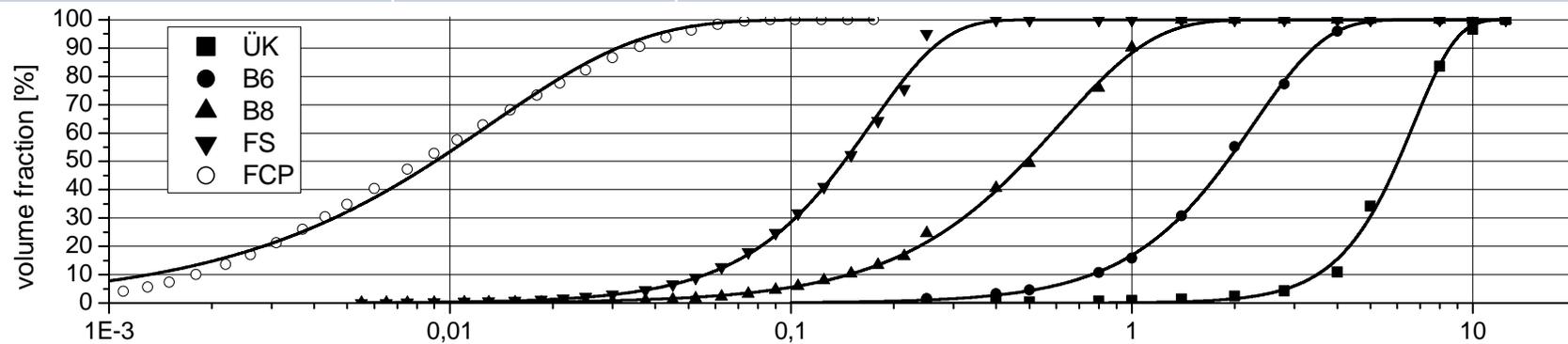
- a) mit sehr geringer Permeabilität entsteht (und das damit äußerst geringen Porenanteil besitzt),
- b) und relativ hohe Steifigkeit besitzt (und damit beim Auflaufen des Gebirges im Salz schnell die Permeabilität der Kontaktzone verringert wird)

Warum Salzgrus als Dichtelement:

Arteigenes Material, langzeitstabil, keine Temperaturprobleme
kein Schrumpfen / Schwinden und kein Quellen

Entwicklung eines optimalen Salzgrus/Ton-Gemisches

Fraktionen der GSES Aufbereitung	Friedländer Ton (FCP)	Feinsalz (FS)	Band 8 (B8)	Band 6 (B6)	Überkorn (ÜK)
Verteilung $d_5 - d_{95}$ [mm]	0,001 – 0,04	0,04 – 0,3	0,1 – 1,2	0,4 - 4	3 - 10
d_{50} [mm]	0,009	0,14	0,49	1,90	6,03
Korndichte [g/cm ³]	2,655	2,198			



Verdichtung verschiedener **Salzgrusfraktionen und Friedländer Ton und Wasser.**

Etwa 160 Verdichtungsversuche im Marshall-Prüfgerät mit Variation

- der Verdichtungsenergie
- verschiedenen Salzgrusfraktionen
- des Tongehaltes (Friedländer Ton)
- des Wassergehaltes

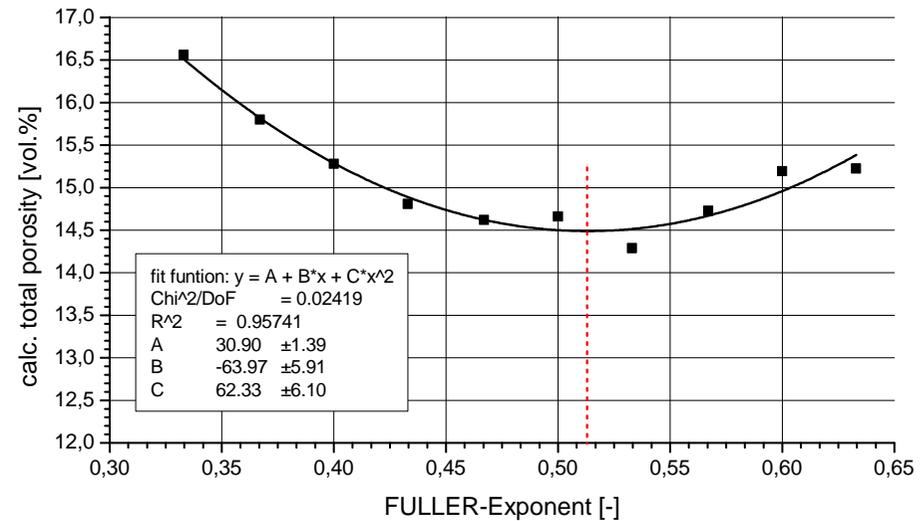
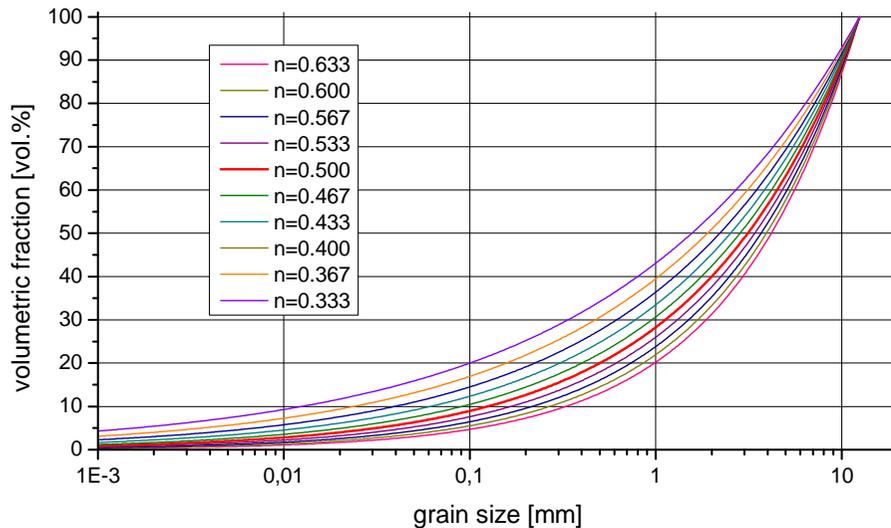
Optimierung der Kornverteilung des Salzgrus

- FULLER-Verteilung als erster Ansatz

$$F_F(d) = 100\% \left(\frac{d}{d_{\max}} \right)^n$$

d Korndurchmesser
 d_{\max} Größtkorndurchmesser
 F_F FULLER volumetrische Korngrößenverteilung
n Fuller-Exponent

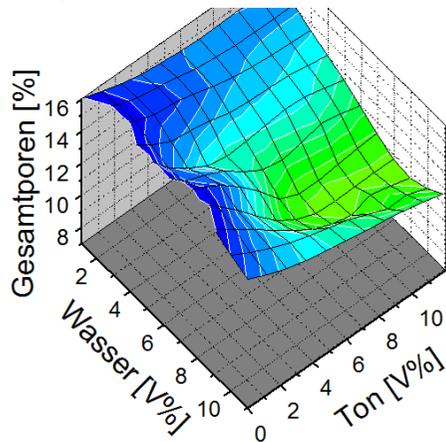
- Verdichtungsversuche bei 6 MJ/m³ mit einer schlagenden Marshallverdichtung an verschiedenen FULLER-verteilten Mischungen
- **Minimale Porosität bei einem FULLER-Exponent von n~0,51**



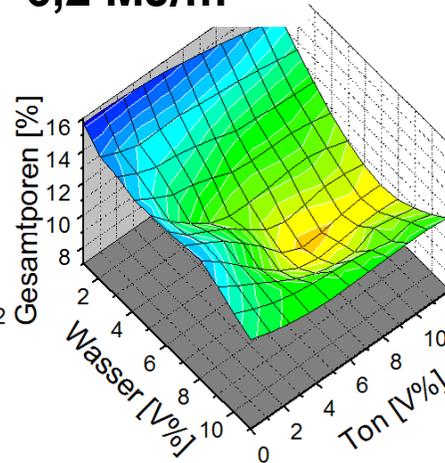
Optimierung des Wasser- und Tongehaltes in Bezug auf die spezifische Verdichtungsenergie

- Optimaler Tongehalt 7,8 Vol% (im Trockengemisch)
- Optimaler Wassergehalt ist abhängig von der Verdichtungsenergie
- für Verdichtungsenergien $> 10 \text{ MJ/m}^3$ beträgt die optimale Wasserzugabe 6,2 Vol% (mischungsspezifisch $\sim 2,8 \text{ M\%}$)
- **geringste erreichte Porosität 7,7 Vol.% bei $15,4 \text{ MJ/m}^3$**

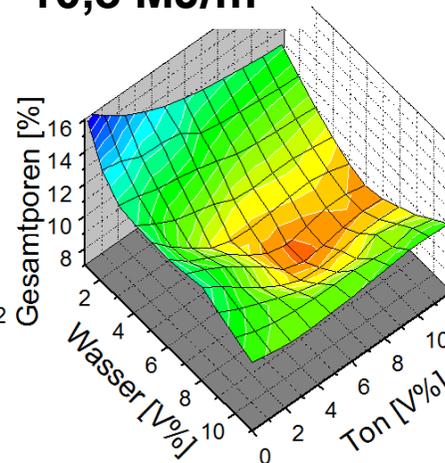
$W_v = 3 \text{ MJ/m}^3$



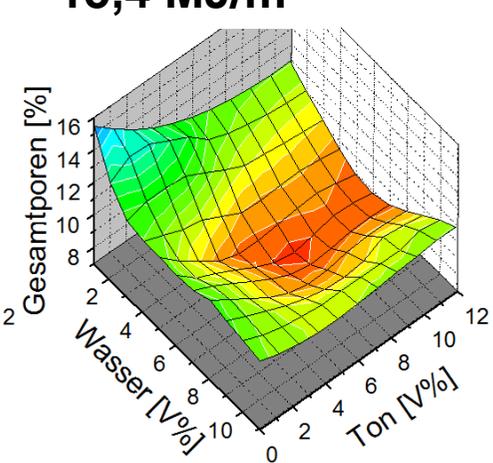
$6,2 \text{ MJ/m}^3$

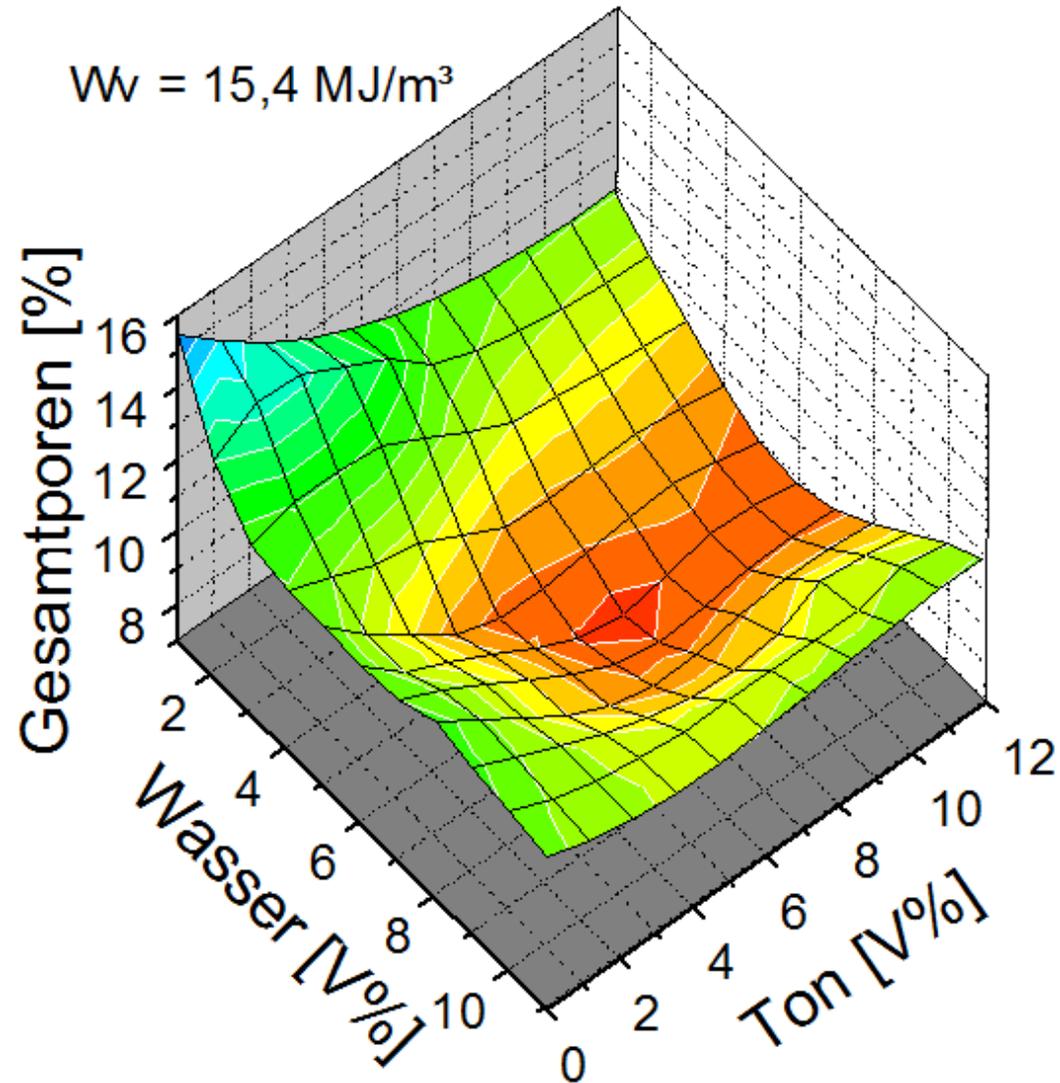


$10,8 \text{ MJ/m}^3$



$15,4 \text{ MJ/m}^3$





Gaspermeabilität der
Laborproben etwa:
<10E-20 m²

Mittels Optimierungsprogramm (hinsichtlich Stoffanteilen) und Versuchen entwickelte „derzeit beste Rezeptur“:

Überkorn	46,7 M.-%
Band 6	19,2 M.-%
Band 8	10,6 M.-%
Feinsalz	13,0 M.-%
Friedländer Ton	7,8 M.-%
Wasser	2,7 M.-%

Porosität: 7,7%

Entscheidende Frage:

Sind die sehr guten Laborversuchsergebnisse hinsichtlich Porosität und Permeabilität auch großtechnisch umsetzbar (Upscaling-Effekt)?

Weitere Untersuchungen zu:

1. Optimale Mischreihenfolge der Fraktionen
2. Einfluss des Mischwerkzeuges auf die Korngrößenverteilung
3. Optimalem Zeitpunkt zu Wasserzugabe
4. Entmischungerscheinungen bei großtechnischem Einsatz

Feldversuche

- 1. Feldversuch** im Herbst 2013 in Österreich mittels Impulsverdichtung mit Terra-Mix-Verdichtungsstampfer (Stahlrohrversuch) (abgeschlossen)
- 2. Feldversuch** 5-6/2014 im Bergwerk Sonderhausen (Muldenersuche) (abgeschlossen)
- 3. Feldversuch** (geplant 1/2015) in Steinbruch

Verdichtungsversuch mit Impulsverdichtung



Impulsverdichtung der Firma Terra-Mix

Masse des Fallgewichts 9 t

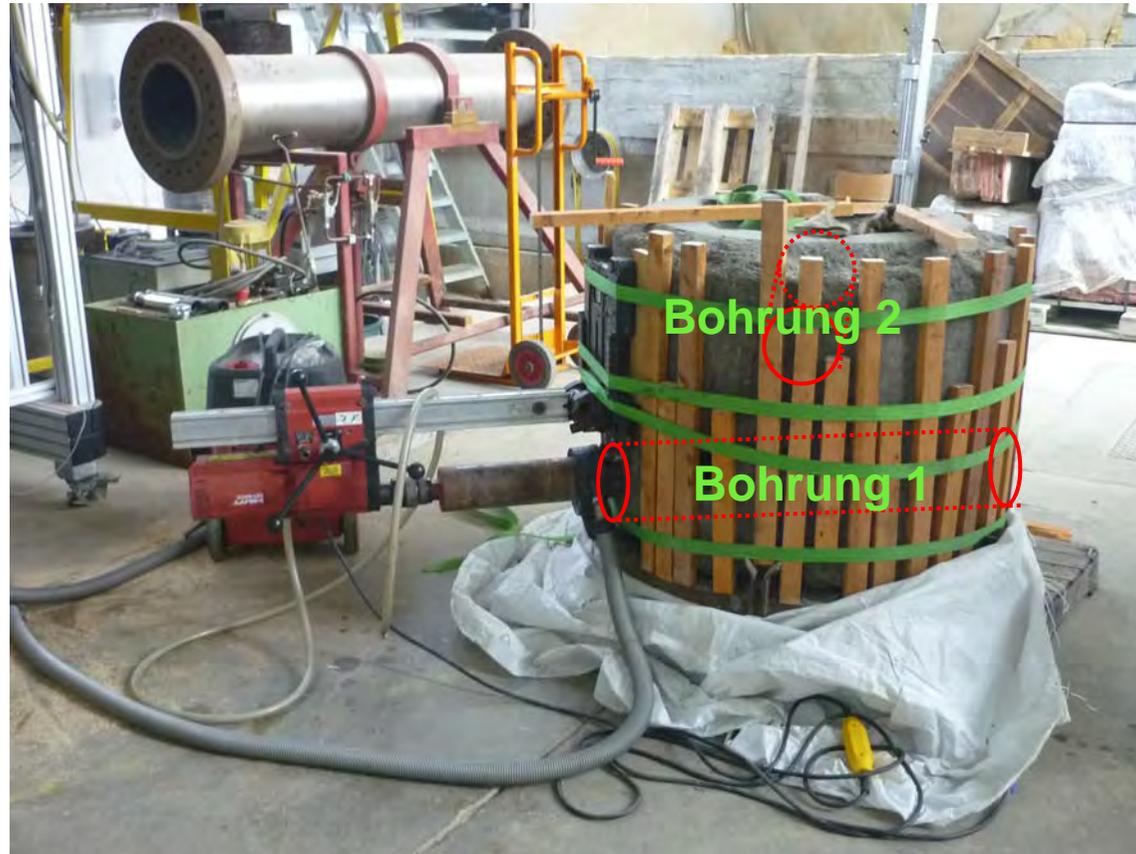
Verdichtungsenergie bis zu 144 kJ / Schlag

Behälter $\varnothing \sim 1\text{m}$, Höhe 1,35 m

Versuch konnte nicht zu Ende geführt werden da die Schrauben abgesichert sind

Verdichtungsversuch mit Impulsverdichtung

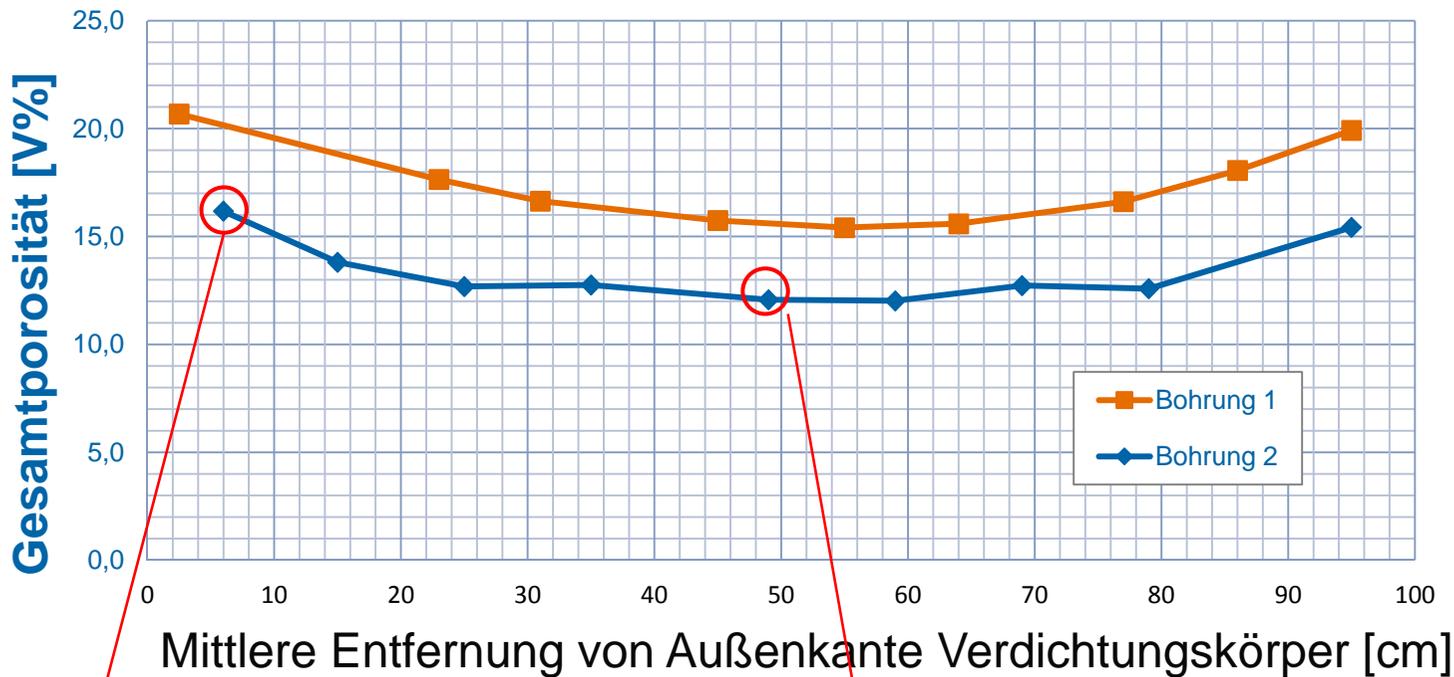
Trotz der unvollendeten Verdichtung konnte ein Probekörper gewonnen werden.



Der Probekörper wurde in Freiberg durch Kernbohrungen (\varnothing 100 mm) beprobt.

Verdichtungsversuch mit Impulsverdichtung

Verteilung Porosität im Probekörper



n=16%
Gaspermeabilität $2,4 \cdot 10^{-14} \text{ m}^2$

n=12%
Gaspermeabilität $1 \cdot 10^{-16} \text{ m}^2$



2. Feldversuch in 2 Mulden im Bergwerk der GSES in Sondershausen

Ziel:

Überprüfung, welche Verdichtung mittels herkömmlicher Verdichtungstechnik aus dem Erdbau mit dem entwickelten Salzgrusgemisch erreicht werden kann.

Mulde 1: 3 x 2,2 x 0,6 m³



Mulde 2: 4 x 2,2 x 0,6 m³

2. Feldversuch in Sondershausen



links: Betonmischer
rechts: Grabenwalze
Wacker-Neuson RT
82-SC (~1450kg)



Leichte Vibrationsplatte
(~100kg)

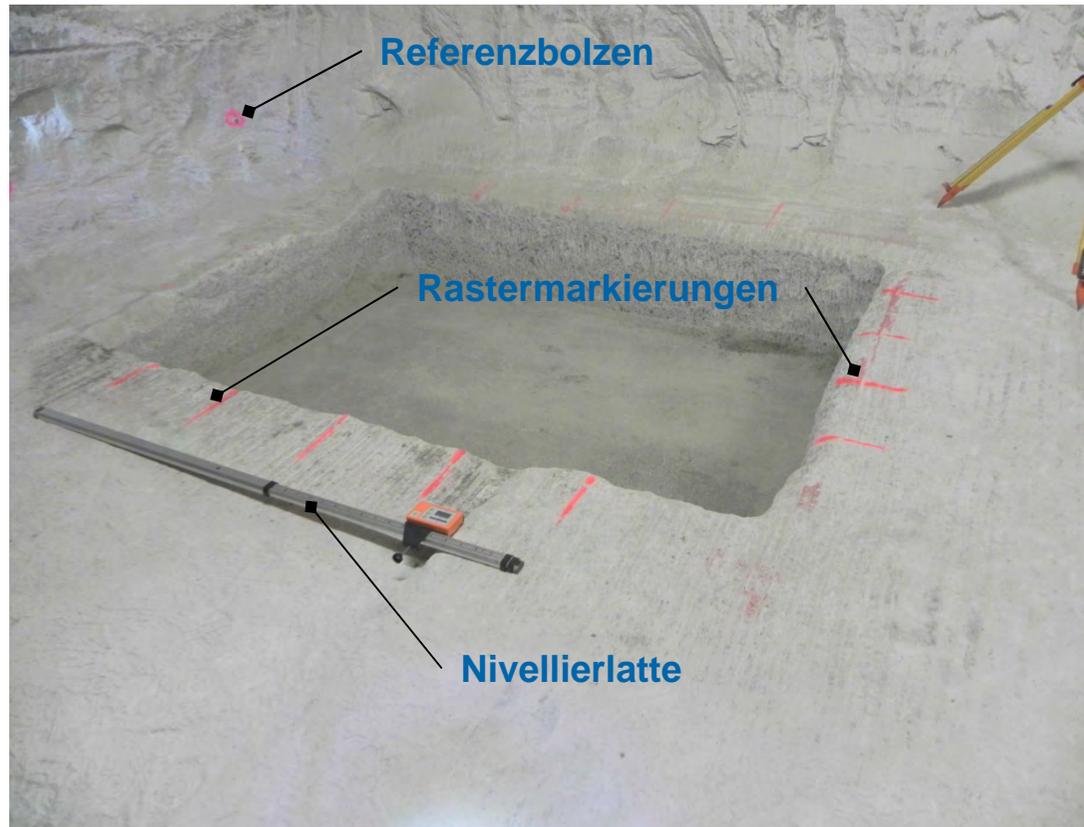


Wacker Neuson DPU 6055
(~470kg)



Bomag BPR 100/80 D
(~720kg)

2. Feldversuch in Sondershausen



Messpunkteraster

Mulde 1: 20 (4 x 5) – 30 (5 x 6) Messpunkte

Mulde 2: 32 (5 x 8) – 64 (10 x 8) Messpunkte



3D-Laserscan + Nivellement

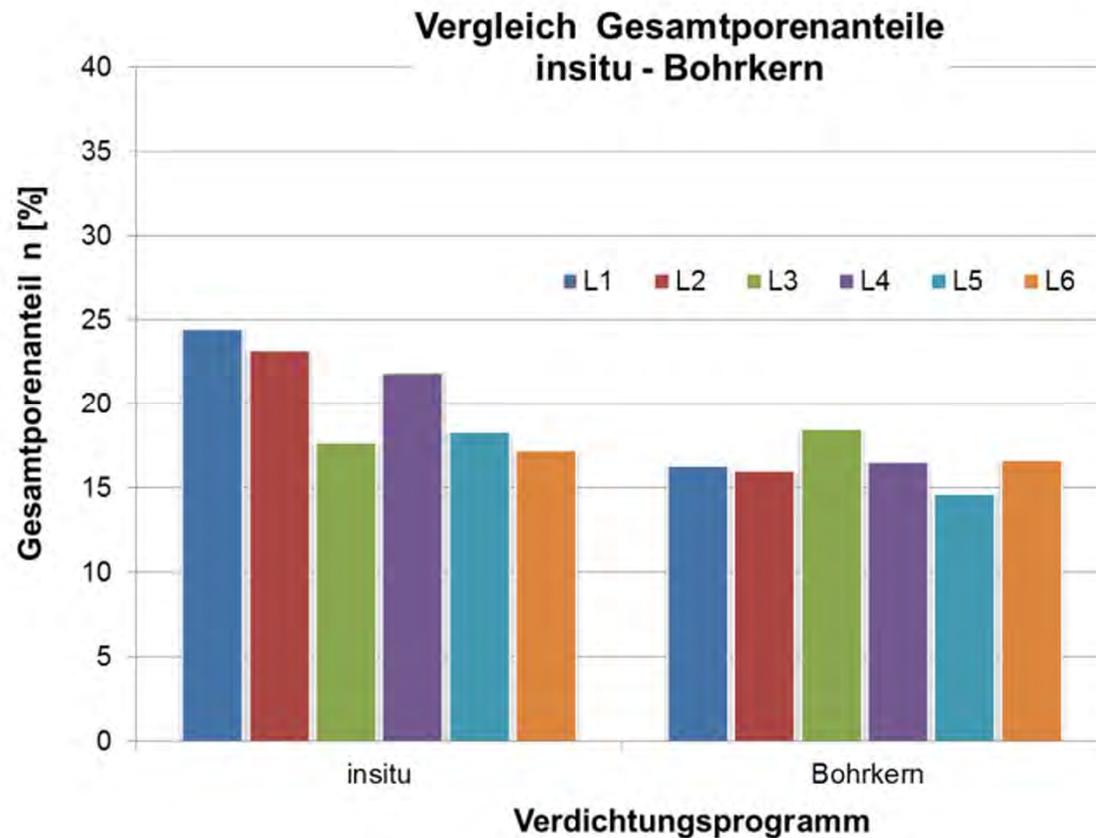


Untersuchungen zu

1. Einfluss der optimalen Reihenfolge der verschiedenen Verdichtungsgeräte
2. Einfluss der verschiedenen Verdichtungsverfahren (statische Verdichtung, dynamische Verdichtung, Glattmantelbandage, Schafffußbandage, Rüttelplatte, Vibrationswalze usw.)

Vergleich Gesamtporenanteile in situ- / Bohrkernproben

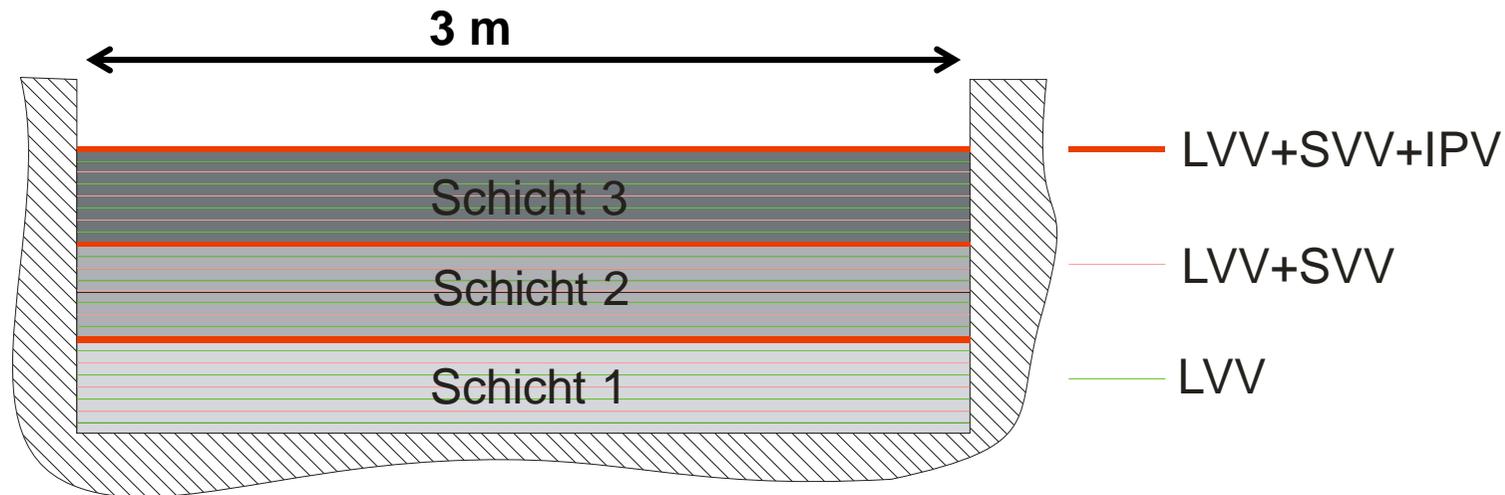
Mulde 2



- Porenanteil, festgestellt an Bohrkernen: 14%-18%
- Porenanteil, festgestellt durch Vermessung der Mulde: 17% bis 24 %
- Permeabilitätsuntersuchungen laufen noch
- **Fazit:**
Mit herkömmlicher, aus dem Erdbau bekannter Verdichtungstechnik sind die angestrebten geringen Porenanteile nicht erreichbar.

3. Feldversuch (geplant Anfang 2015) in Steinbruch

Ziel: Verdichtung eines Salzgrusgemisches in einer Festgesteinsmulde mit 3 m Durchmesser mit Terra-Mix-Impulsverdichtung

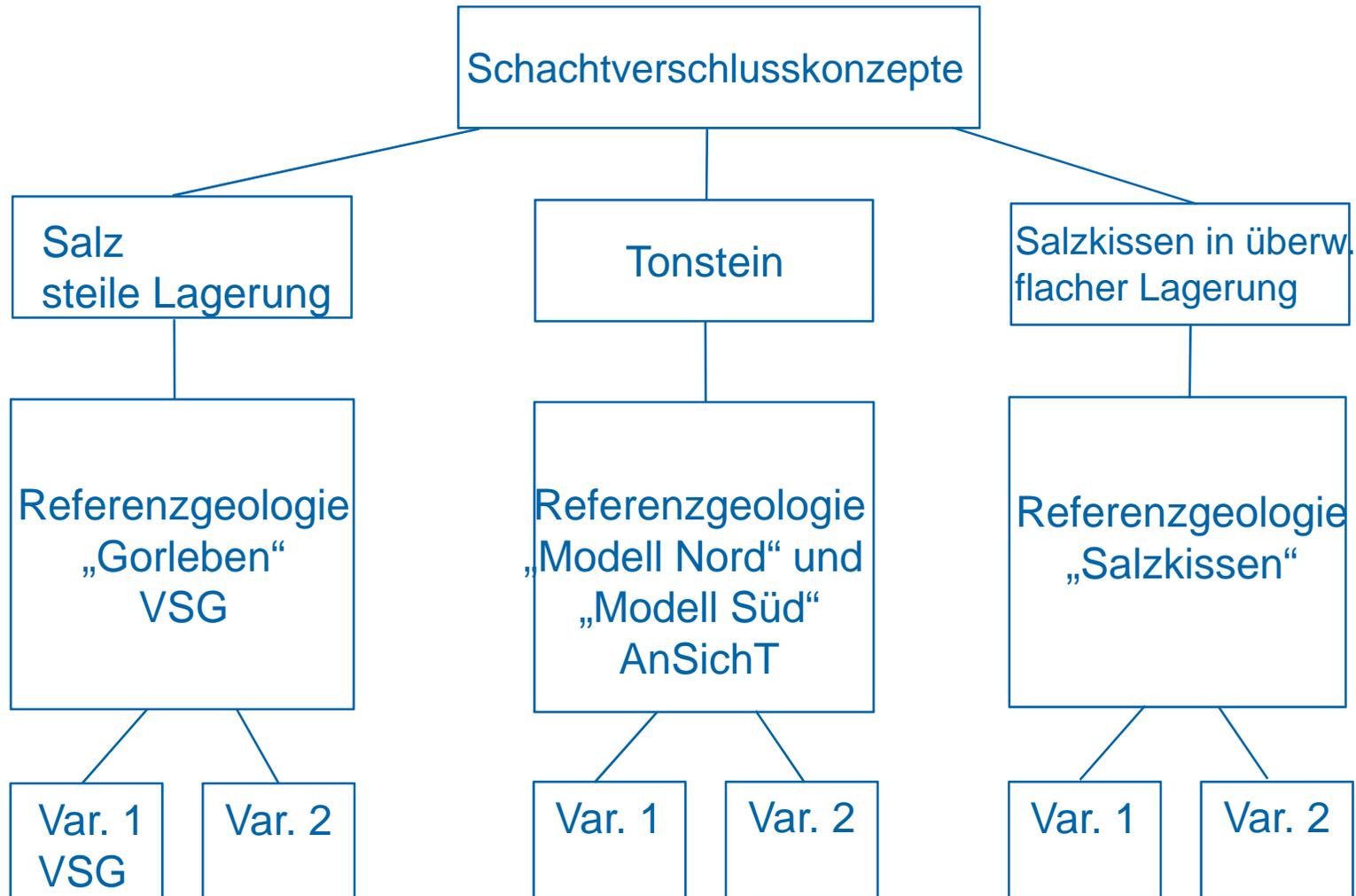




Verantwortung
für Generationen
Responsibility
for Generations

DBE-TEC
DBE TECHNOLOGY GmbH

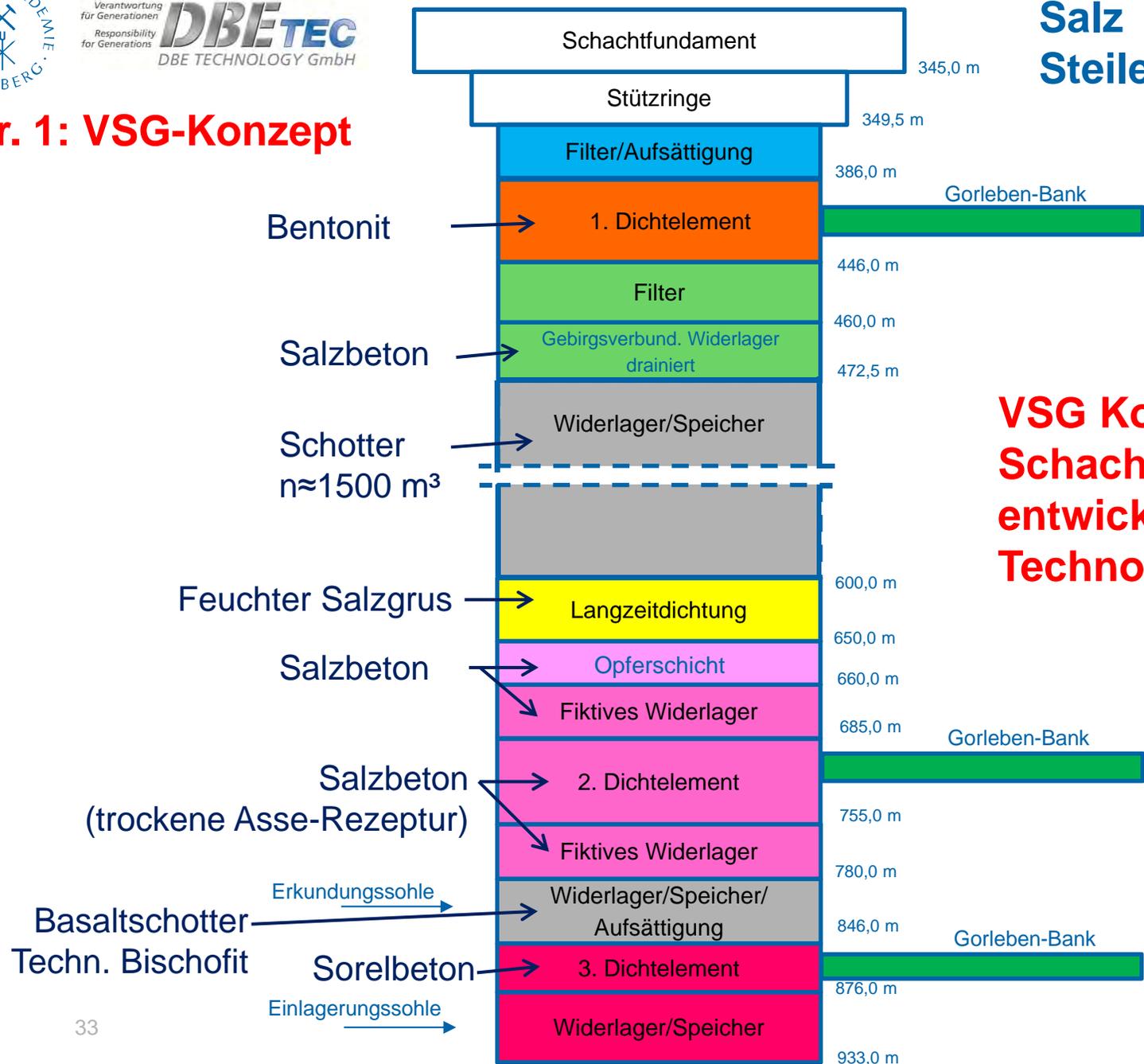
Schachtverschlusskonzepte im Salz und im Tonstein



Ziele bei Variantenentwicklung:

- a) Verwendung von Baustoffen, die möglichst keine große Temperaturerhöhung beim Abbinden erfahren. Damit werden Schwierigkeiten auf Grund von Temperaturdehnung und Schwinden des Materials reduziert.
- b) Verwendung von möglichst inertem, arteigenen Baustoffen

Var. 1: VSG-Konzept



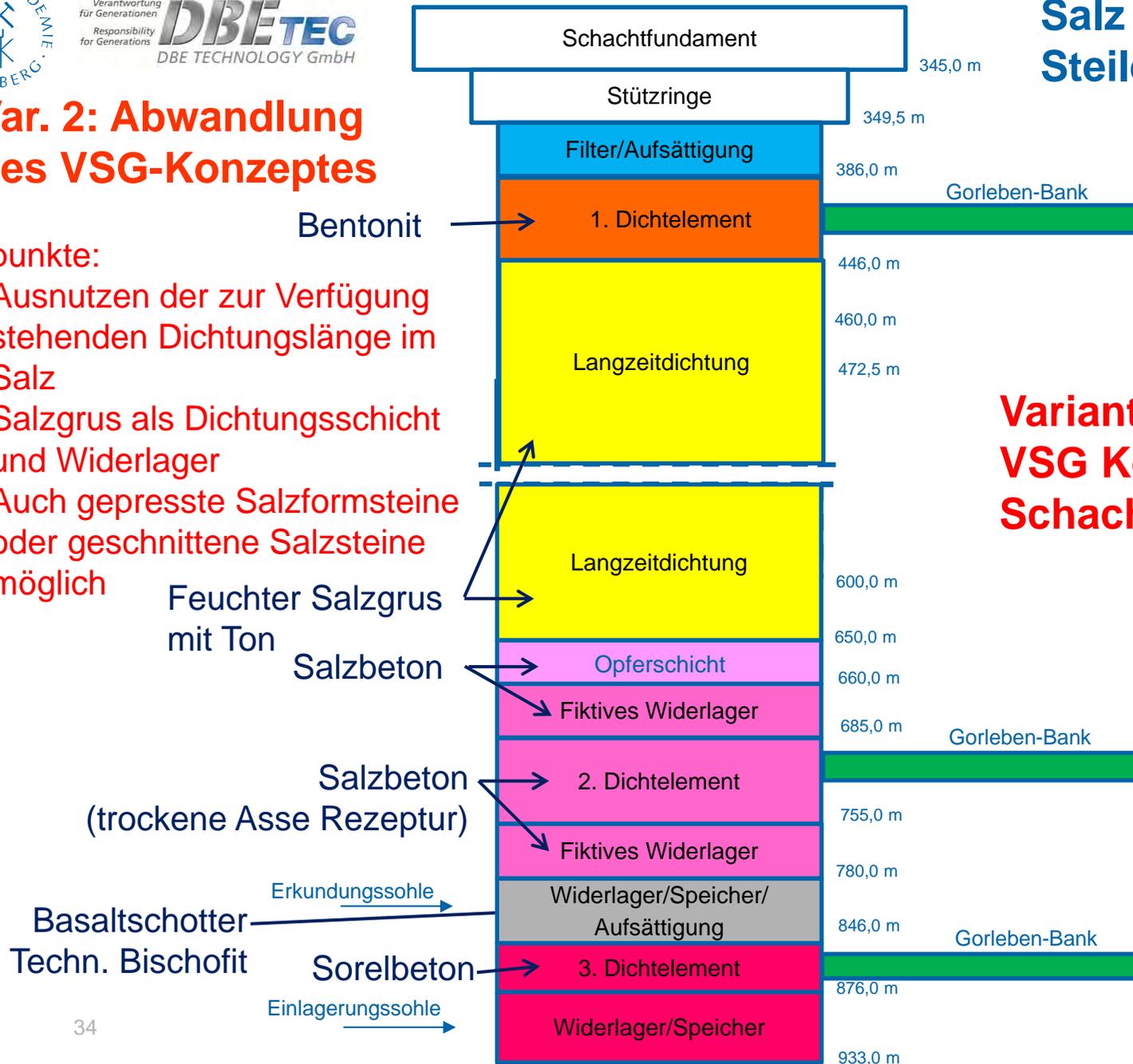
Salz Steile Lagerung

VSG Konzept für Schachtverschluss, entwickelt von DBE-Technology

Var. 2: Abwandlung des VSG-Konzeptes

Eckpunkte:

- a) Ausnutzen der zur Verfügung stehenden Dichtungslänge im Salz
- b) Salzgrus als Dichtungsschicht und Widerlager
- c) Auch gepresste Salzformsteine oder geschnittene Salzsteine möglich

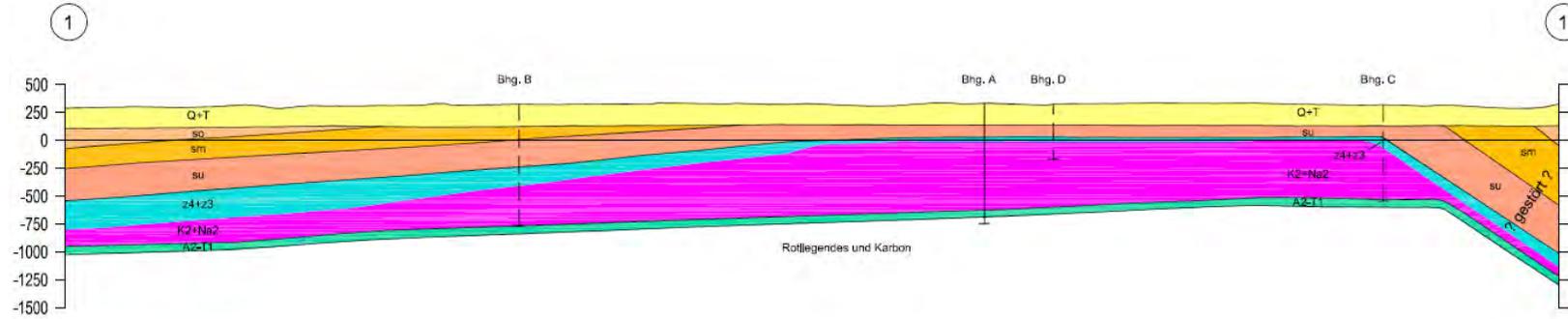


**Salz
Steile Lagerung**

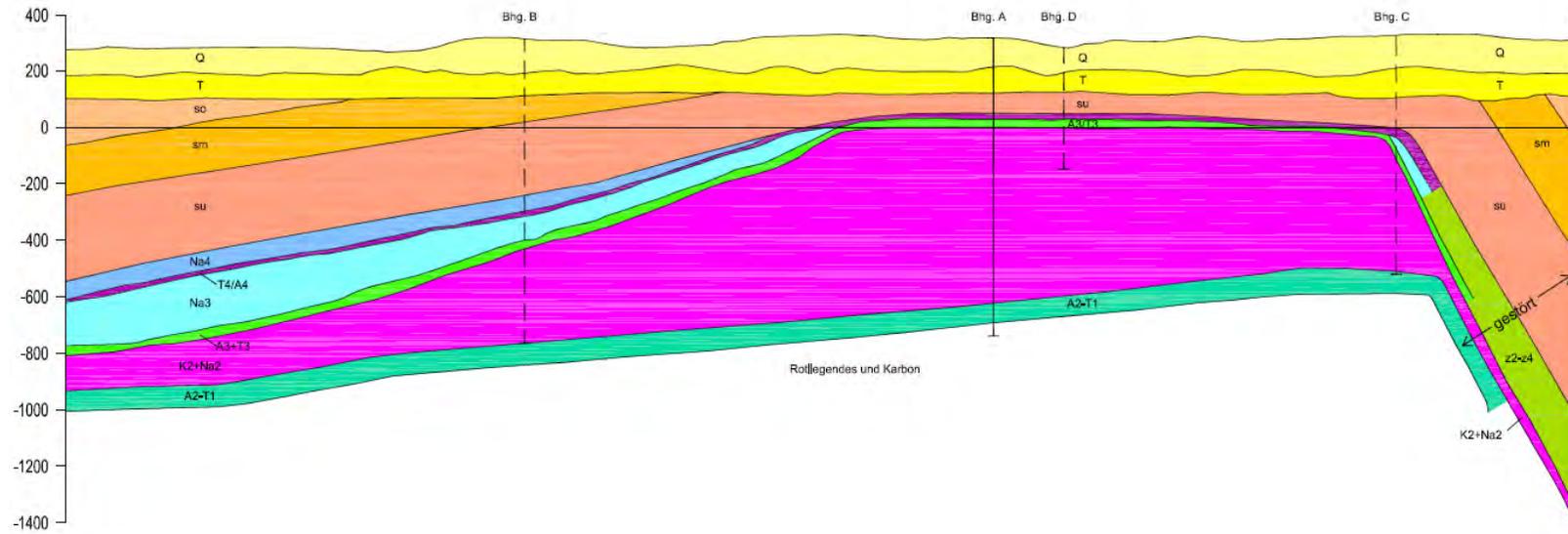
**Variante zu
VSG Konzept für
Schachtverschluss**

Salzkissen

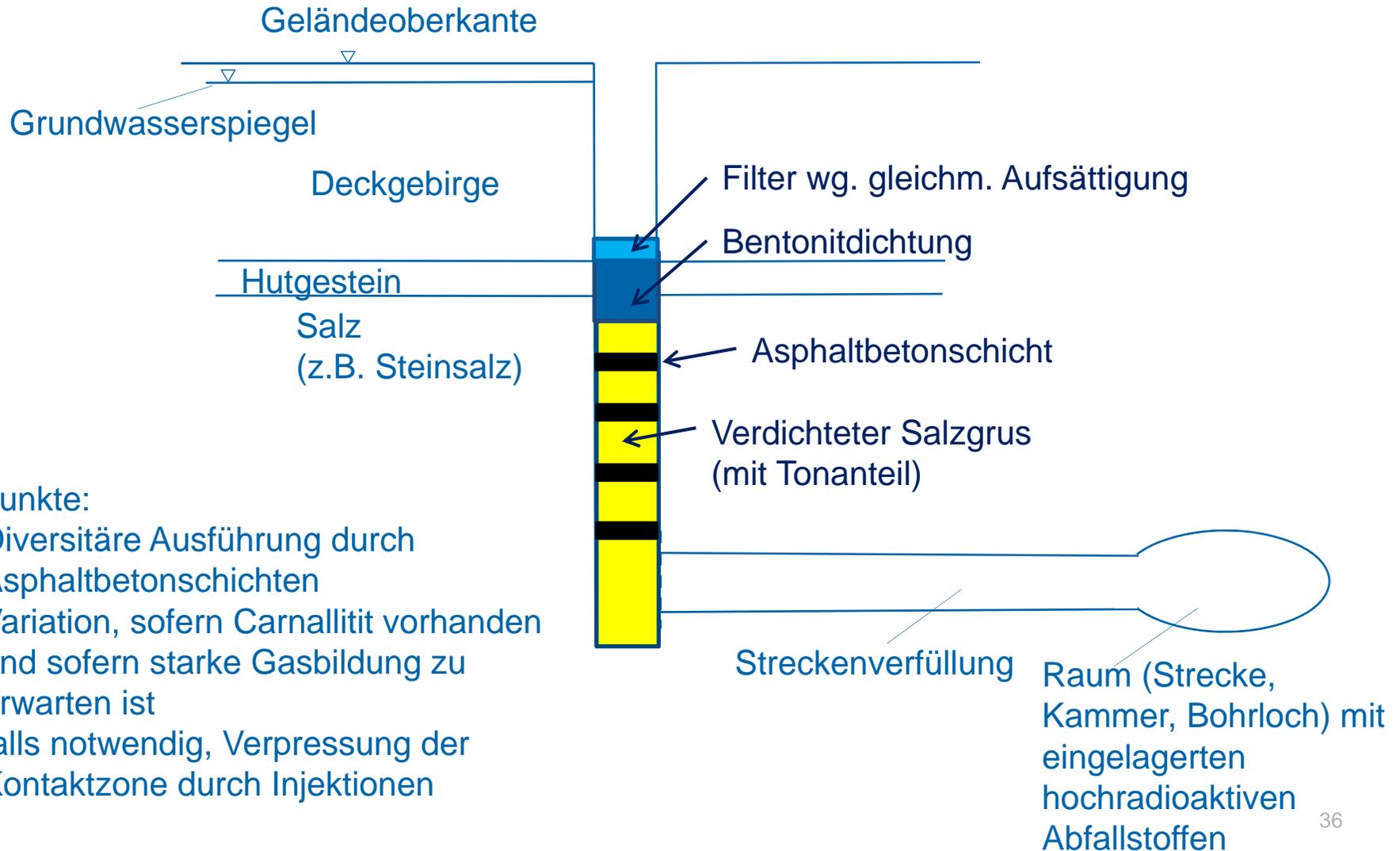
a)



b)



Variante für Salz in „Steiler Lagerung“ und „Salzkissen“



Eckpunkte:

- Diversitäre Ausführung durch Asphaltbetonschichten
- Variation, sofern Carnallit vorhanden und sofern starke Gasbildung zu erwarten ist
- falls notwendig, Verpressung der Kontaktzone durch Injektionen

Zu Schachtverschlüssen im Salz:

1. Schachtverschlusskonzepte für „Steile Lagerung“ und „Salzkissen“ sind prinzipiell ähnlich, deshalb ist letztlich keine Unterscheidung in „Steile Lagerung“ und „Salzkissen“ notwendig.
2. Varianten werden weiter fortentwickelt und beschrieben.
3. Module zu einzelnen „Besonderheiten“ (z.B. Anhydritbänke im Salz; Carnallitbereiche) werden noch ausgearbeitet.



Verantwortung
für Generationen
Responsibility
for Generations

DBE-TEC
DBE TECHNOLOGY GmbH

Schachtverschlussvarianten im Tonstein

Geologie für Tonsteininformationen :

1. Es werden Endlagerstandortmodelle und lithologische Profile, die im Forschungsvorhaben AnSichT (bearbeitet von DBE-Tec) für die Modellregionen Norddeutschland und Süddeutschland erarbeitet wurden, verwendet.
2. Die entwickelten Schachtverschlusskonzepte sollen dann umgekehrt als Referenzkonzepte für die Schachtverschlüsse im AnSichT-Vorhaben (Entwicklung einer Sicherheits- und Nachweismethodik für ein Endlager im Tonstein) weiter verwendet.

Standortmodell Norddeutschland Unterkreideformation

Quartär

Albium (Ton- und Mergelsteinwechselfolge)

Hilssandstein

Aptium (Tonstein und Mergelsteine)

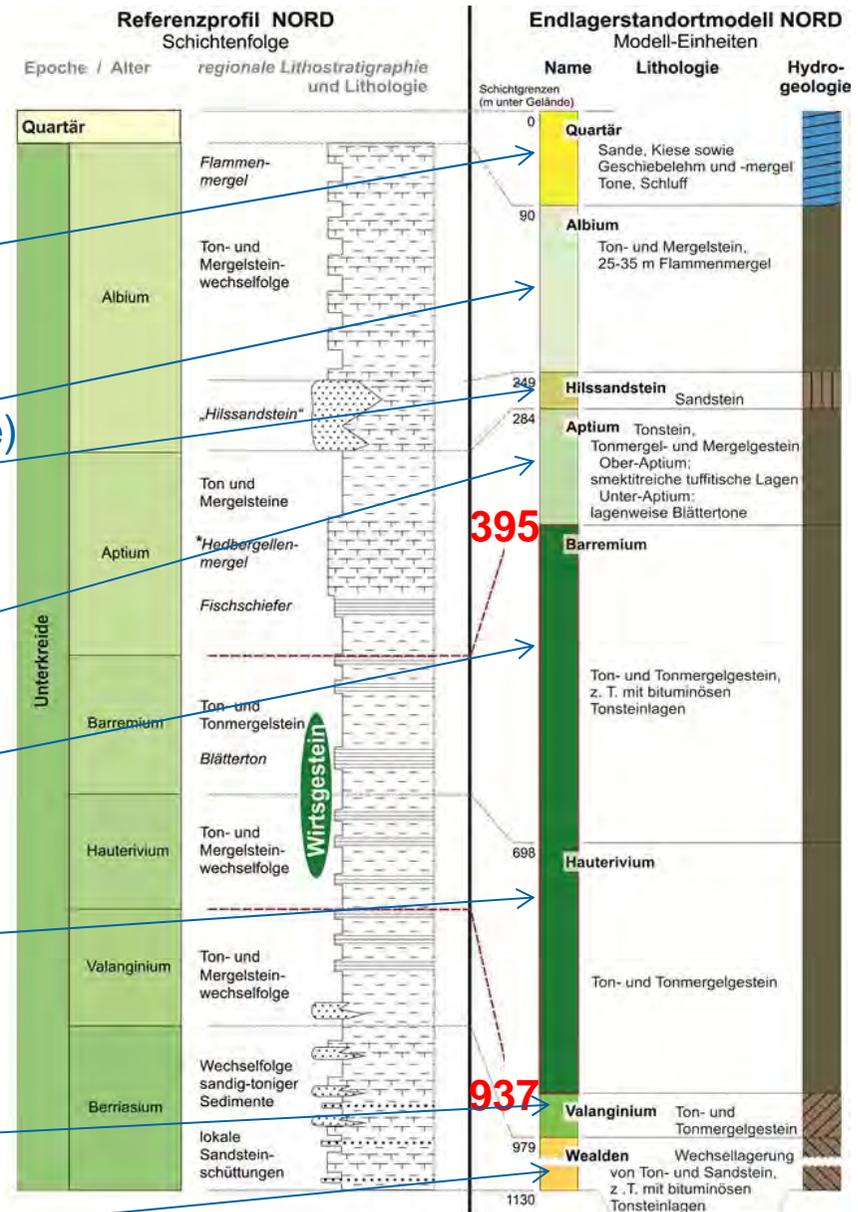
Barrenmium (Ton- und Tonmergelsteine, **Wirtsgestein**)

Hauterivium (Ton- und Mergelsteinwechselfolge, **Wirtsgestein**)

(Endlager in 600-800 m Tiefe, Mineralisation und Salinität entscheidend)

Valanginium

Wealden



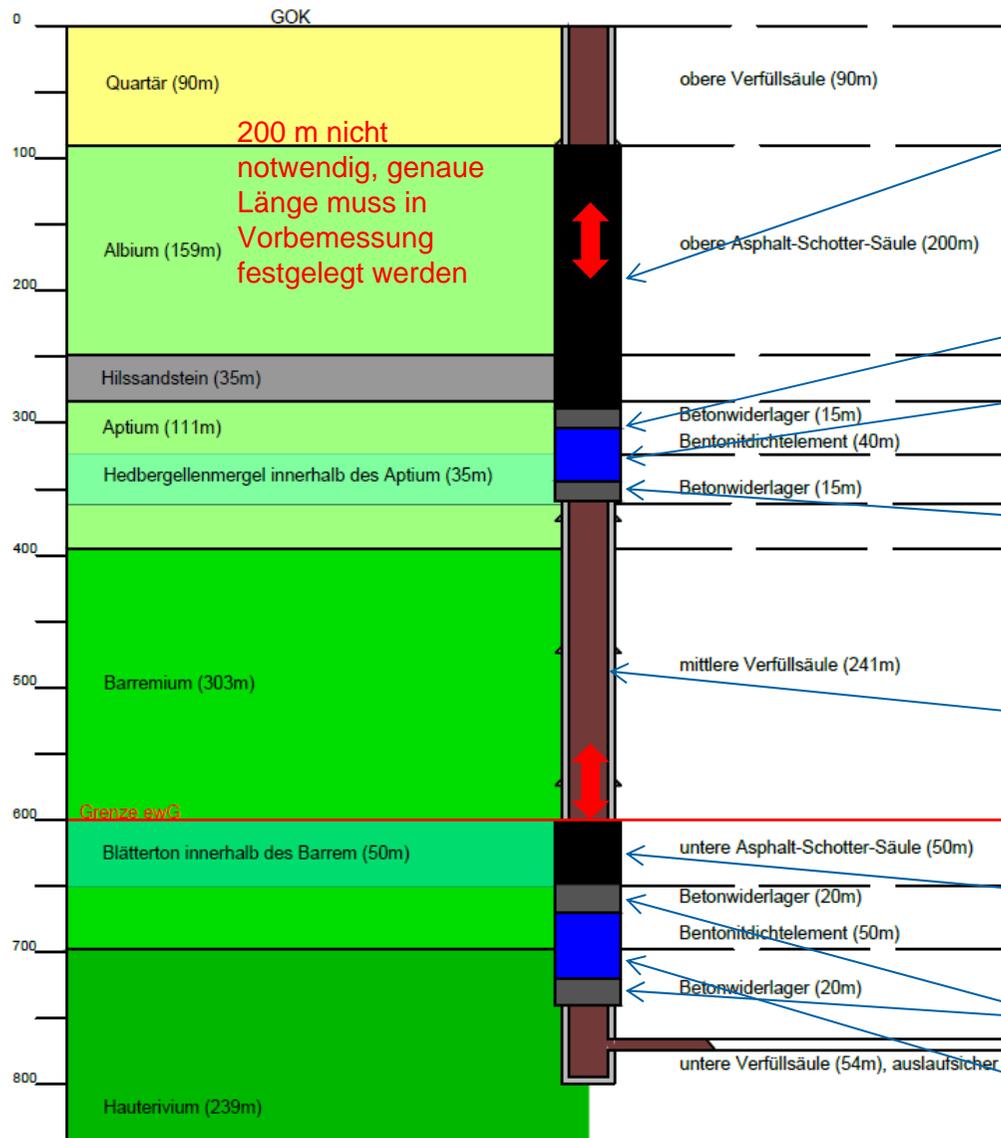
Grundsignaturen der Lithologie

---	Tonstein	—	bituminöse Tonsteinlagen
—	Mergelstein		
...	Sandstein		

* erhöhte Gesteinsfestigkeit gegenüber den Ton- und Tonmergelsteinen

Hydraulische Eigenschaften

	Grundwasserleiter				Grundwassergeringleiter			
Durchlässigkeit	mäßig	gering	sehr gering	äußerst gering				
k _r -Wert	>10 ⁻⁵ · 10 ⁻⁴	>10 ⁻⁷ · 10 ⁻⁵	>10 ⁻⁹ · 10 ⁻⁷	>10 ⁻¹⁰ · 10 ⁻⁹				
Grenzen (m/s)								



Verschlusskonzept Unterkreideformation

Dichtelement als Schottersäule mit Bitumenverfüllung

Oberes Betonwiderlager

Bentonitdichtung liegt unterhalb des Sandsteins

Unteres Widerlager im H-Mergel wegen erhöhter Festigkeit

Schotterverfüllung

Asphalt-Schotter-Säule im Blätterton (bituminös)

Widerlager

Bentonitdichtung im Übergangsbereich Barremium/Hauterivium

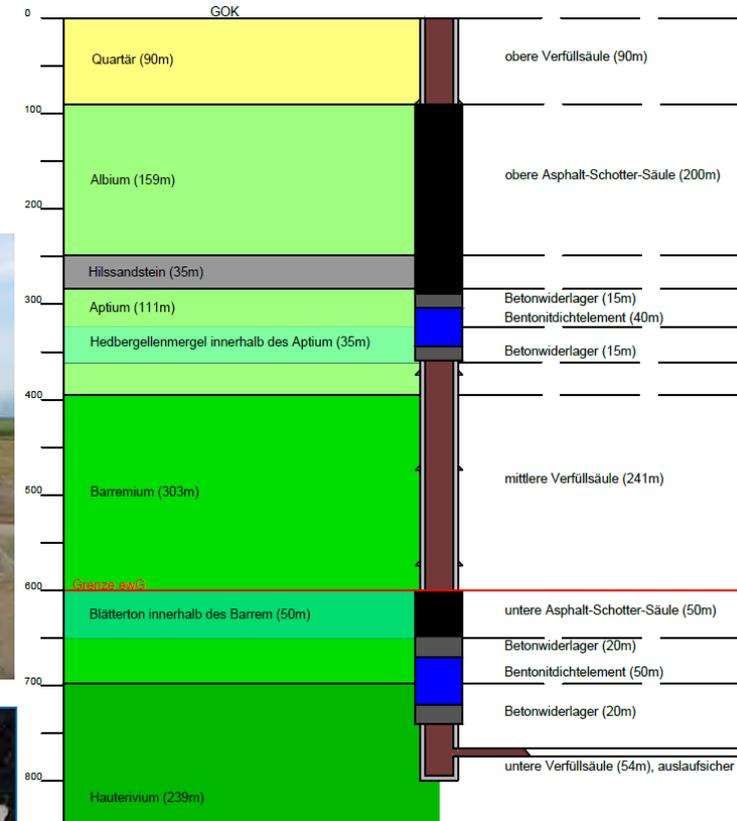
Zu Schachtverschlüssen im Tonstein:

1. Schachtverschlusskonzept für Standort Süd im Tonstein ebenfalls erarbeitet.
2. Auch im Tonstein weitere Varianten in Bearbeitung (z.B. Entfall des oberen Widerlagers bei darüber liegender setzungsstabiler Bitumen verfüllter Schottersäule).
3. Entscheidend im Tonstein ist die erheblich größere Auflockerungszone im Vergleich zu Salz !
4. Schachtausbau abschnittsweise entfernen?
5. Bentonit Auswahl in Abhängigkeit des umgebenden Tonsteins, keine Festlegung auf Ca-Bentonit.
6. Gasbildung und Druckaufbau aus Endlager noch offen.
7. Thermische Beeinflussung des Tonsteins bei Heißeinbau Bitumen offen?
8. Zementkorrosion im Tonstein?

Zusammenfassung und Ausblick:

1. Schachtverschlusskonzepte für Salz und Tonstein in Bearbeitung
2. Weitere Verdichtungsversuche zur Salzgrusverdichtung im Technikumsmaßstab
3. MgO-Betonversuch (3-1-8-Phase) in Großbohrloch (Durchmesser 1m) laufend
4. Bitumenbohrlochversuche („harte Schale-weicher Kern“) in Vorbereitung.
5. Großversuch mit Äquipotentialsegmenten ebenfalls laufend.
6. Modellierung (AP5) in Bearbeitung.

Vielen Dank für Ihre Aufmerksamkeit



Möglichkeiten und Grenzen der Demonstration ausgewählter Verschlusseigenschaften im Labor und ihre Auswirkungen auf die Modellierung (Projekt DOPAS)

11. Projektstatusgespräch, Karlsruhe
25.-26. November 2014

Oliver Czaikowski, Thorsten Meyer, Kyra Jantschik

FuE-Vorhaben mit Bezug zu zementösen Verschlussbaustoffen im Salinar

Ziele:

- Bereitstellung von Labordaten für die modelltheoretische Analyse des Langzeitdichtvermögens von zementösen Verschlussmaterialien im Zusammenwirken mit dem Salzgebirge
- Entwicklung eines konsistenten Datensatzes für THMC-Modellierungen zum Langzeitverhalten von Beton-Dichtbauwerken in Schacht- und Streckenverschlüssen

BMWi-geförderte Vorhaben

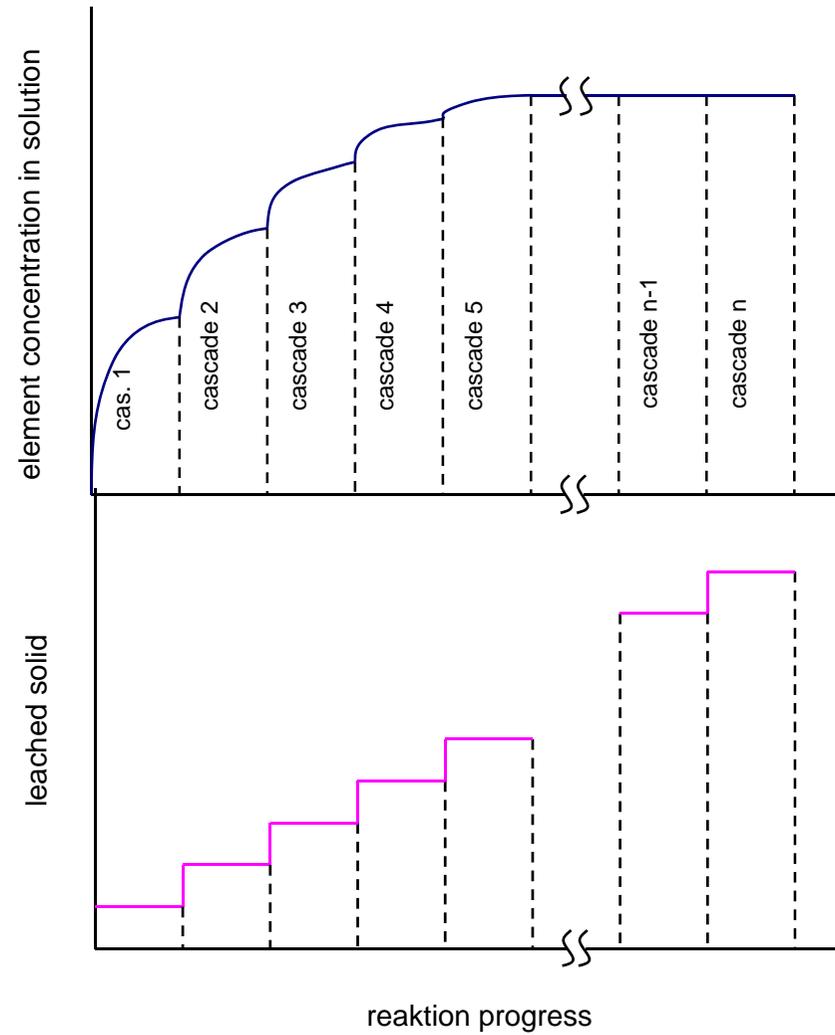
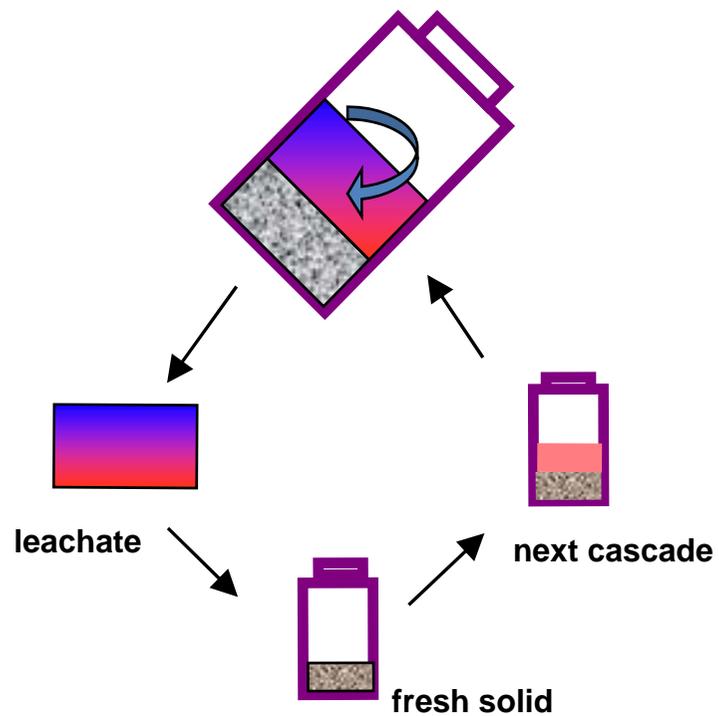
- Entwicklung chemisch-hydraulischer Modelle für die Prognose des Langzeitverhaltens von Sorelbeton in Salzformationen – LAVA (02E11122):
 - Modellierung von Korrosionsprozessen
 - Thermodynamisches Gleichgewicht (C, T)
 - Lösungs- und Ausfällungsprozesse (CH, T)
- Langzeitsicherer Schachtverschluss im Salinar – LASA (02E11132)
 - Modellierung von Deformationsprozessen
 - Spannungsinduziertes Rekompaktionsverhalten (M, T)
 - Lösungsinduziertes Rekompaktionsverhalten (HM, T)

EU-gefördertes Vorhaben

- Full Scale Demonstration of Plugs and Seals – DOPAS (FP7)

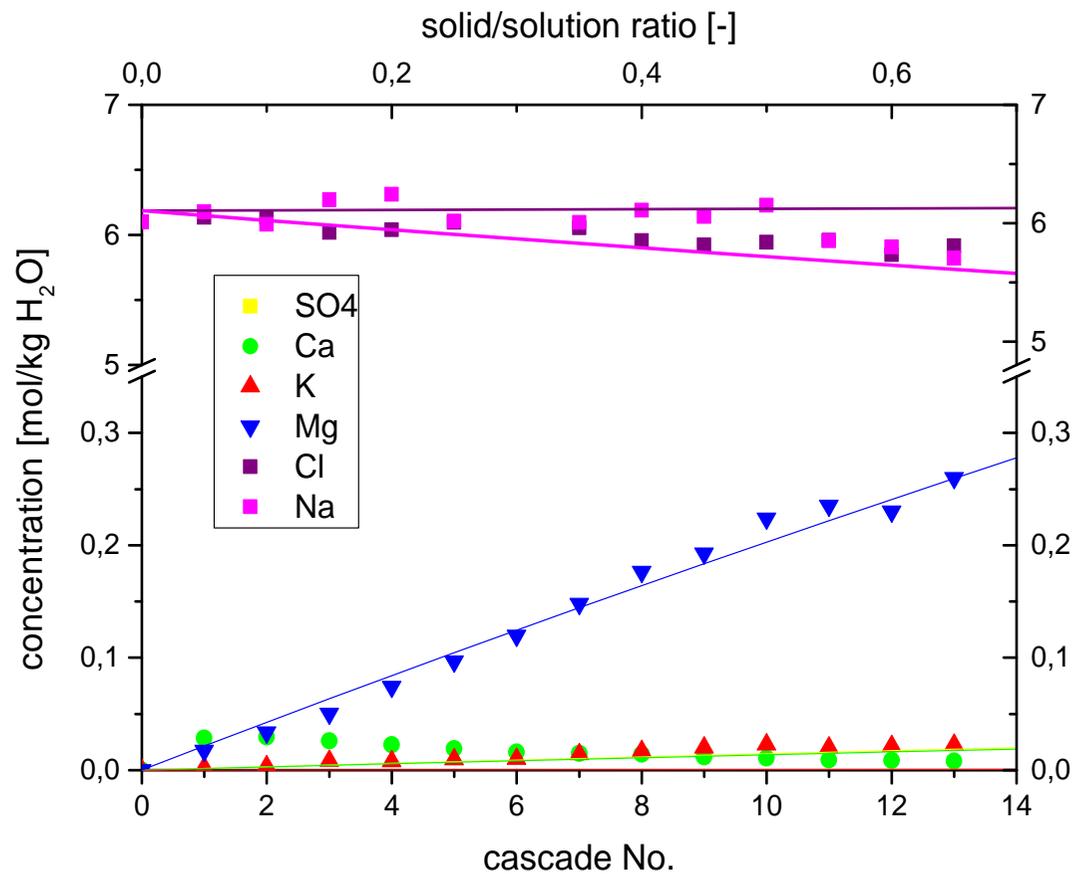
LAVA – Vorläufige Ergebnisse

Kaskaden Experimente - Vorgehen



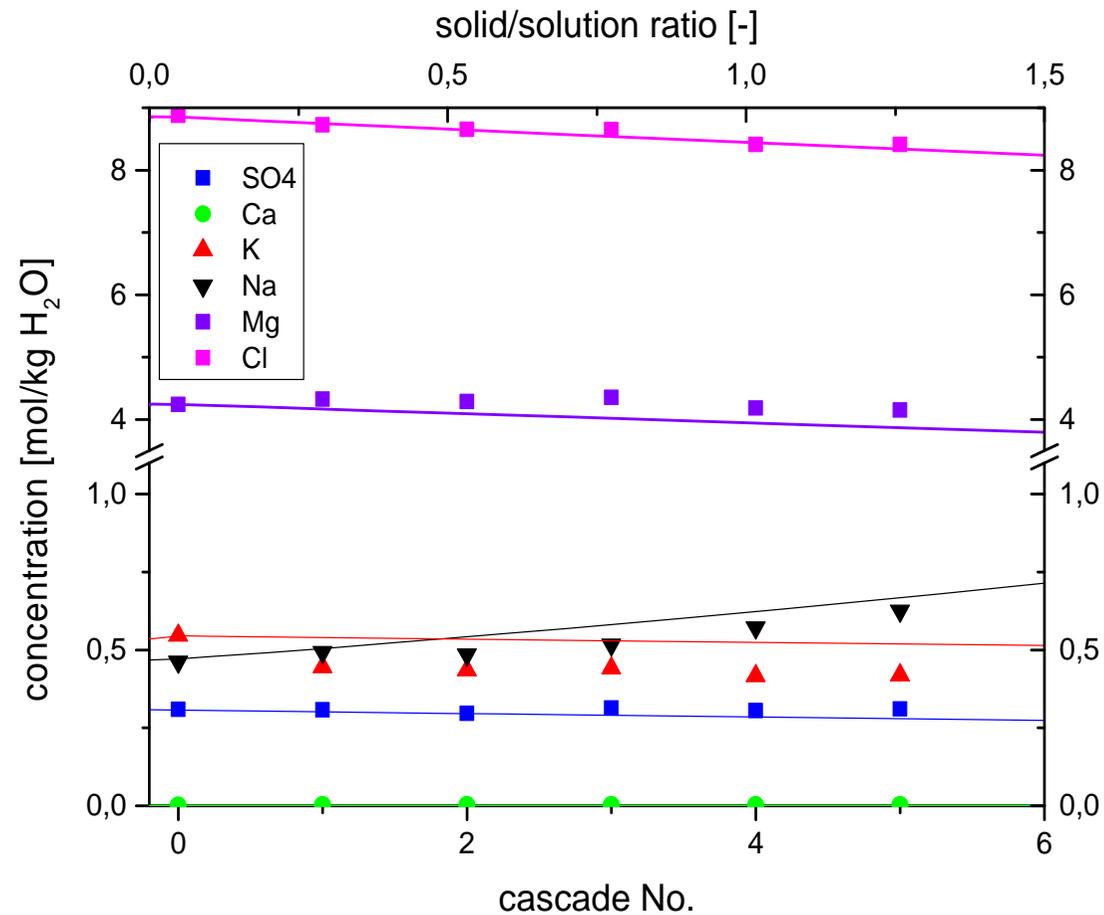
Kaskaden Experimente

Sorelbeton A1 im Kontakt mit NaCl-Lösung



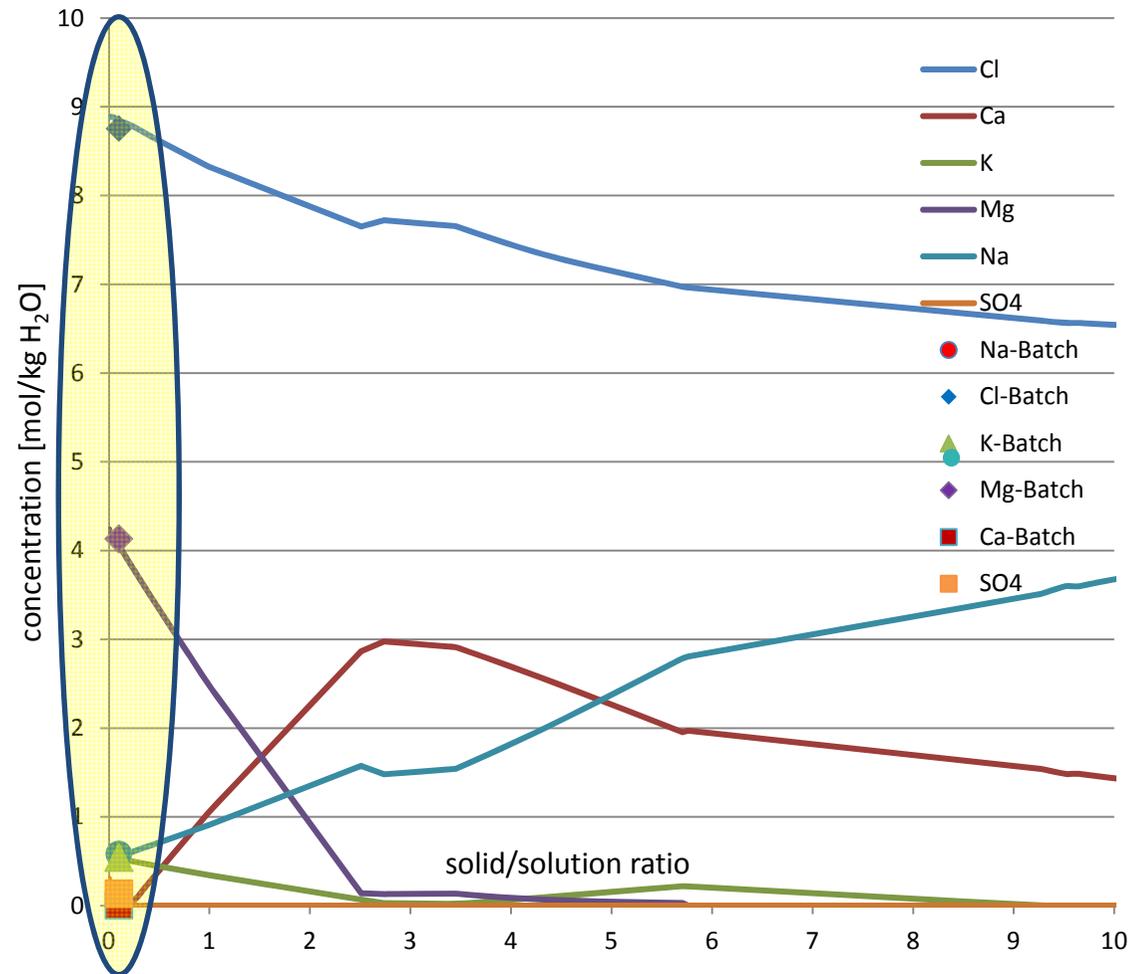
mol/kg H ₂ O	NaCl _{mes}	NaCl _{ber, 2009}
Na	6.104	6.100
K	0.000	0.000
Ca	0.000	0.000
Mg	0.000	0.000
Cl	6.102	6.100
SO ₄	0.000	0.000
Density [g/cm ³]	1.200	-

Kaskaden Experimente Sorelbeton A1 im Kontakt mit IP21-Lösung



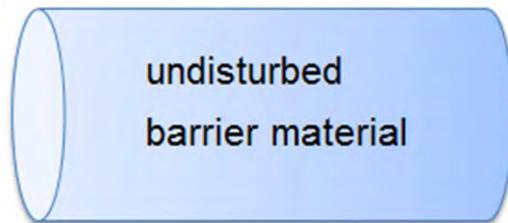
mol/kg H ₂ O	IP21 _{mes}	IP21 _{ber, 2009}
Na	0,467	0,463
K	0,543	0,556
Ca	0,001	0,001
Mg	4,18	4,249
Cl	8,68	8,892
SO ₄	0,280	0,314
Density [g/cm ³]	1,291	-

Kaskaden Experimente Salzbeton M2 im Kontakt mit IP21-Lösung

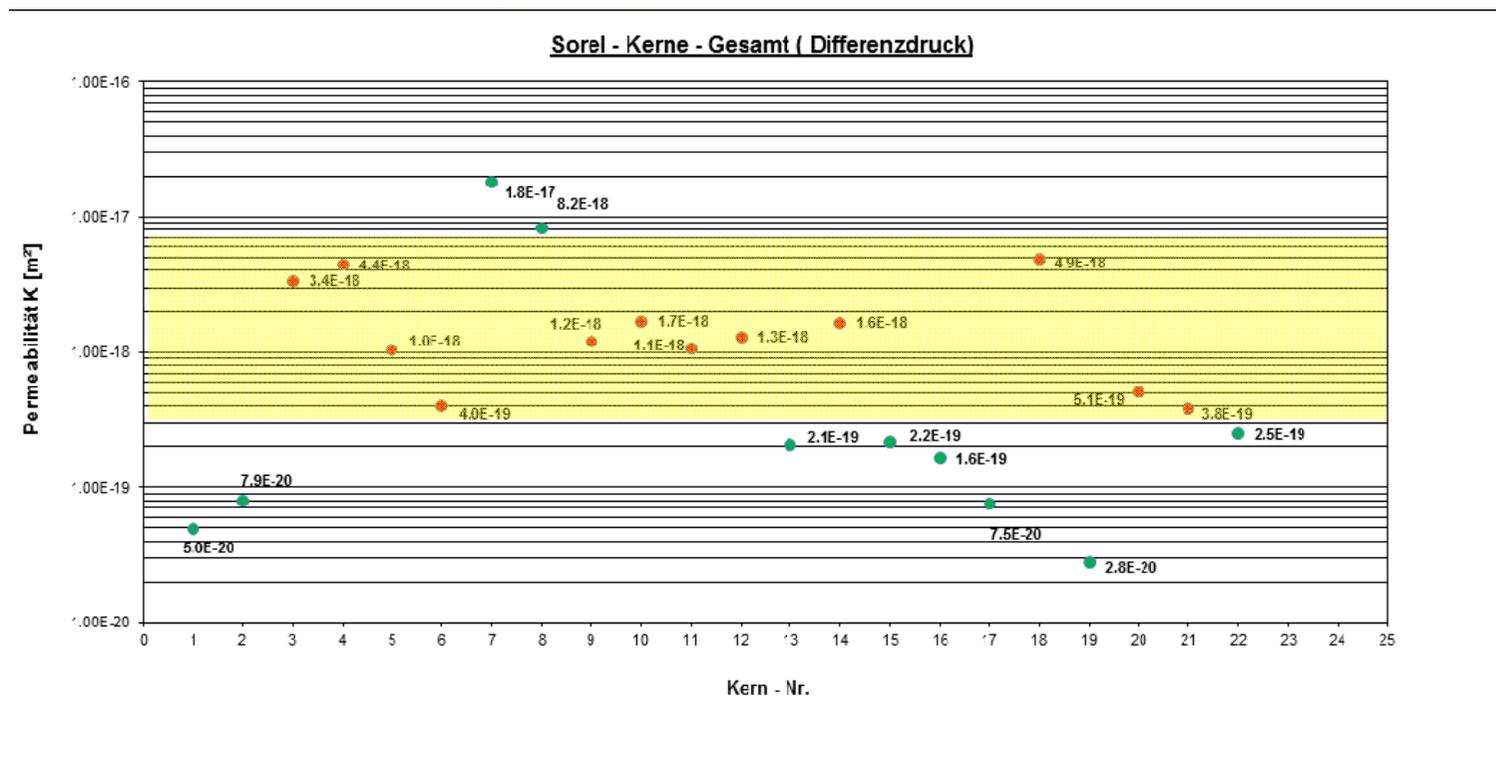


elements	mol / kg H ₂ O
Na	8,837
K	0,189
Ca	0,440
Mg	1,547
Cl	8,853
SO ₄	0,122
Al	1,130
Si	2,259
H	14,858
O	16,082

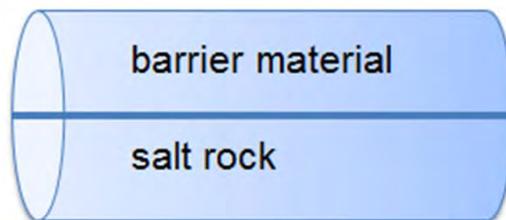
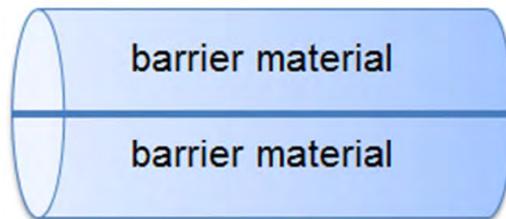
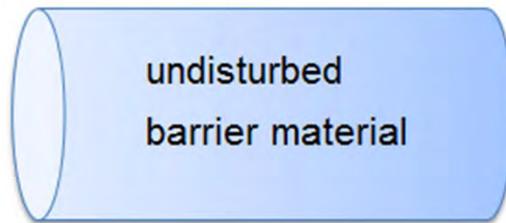
Perkolationsexperimente Salzbeton im Kontakt mit salinaren Lösung



- Bestimmung der Matrix Korrosion:
 - Diffusionsexperimente
 - Advektionsexperimente
- Kriterium zur Probenauswahl
 - initiale Gasdurchlässigkeit



Perkolationsexperimente Salzbeton im Kontakt mit salinaren Lösung



- Bestimmung der Matrix Korrosion:
 - Diffusionsexperimente
 - Advektionsexperimente

- Bestimmung der Korrosion auf Schnittflächen
 - Erhöhte Durchlässigkeit
 - Einsatz von Füllmaterial

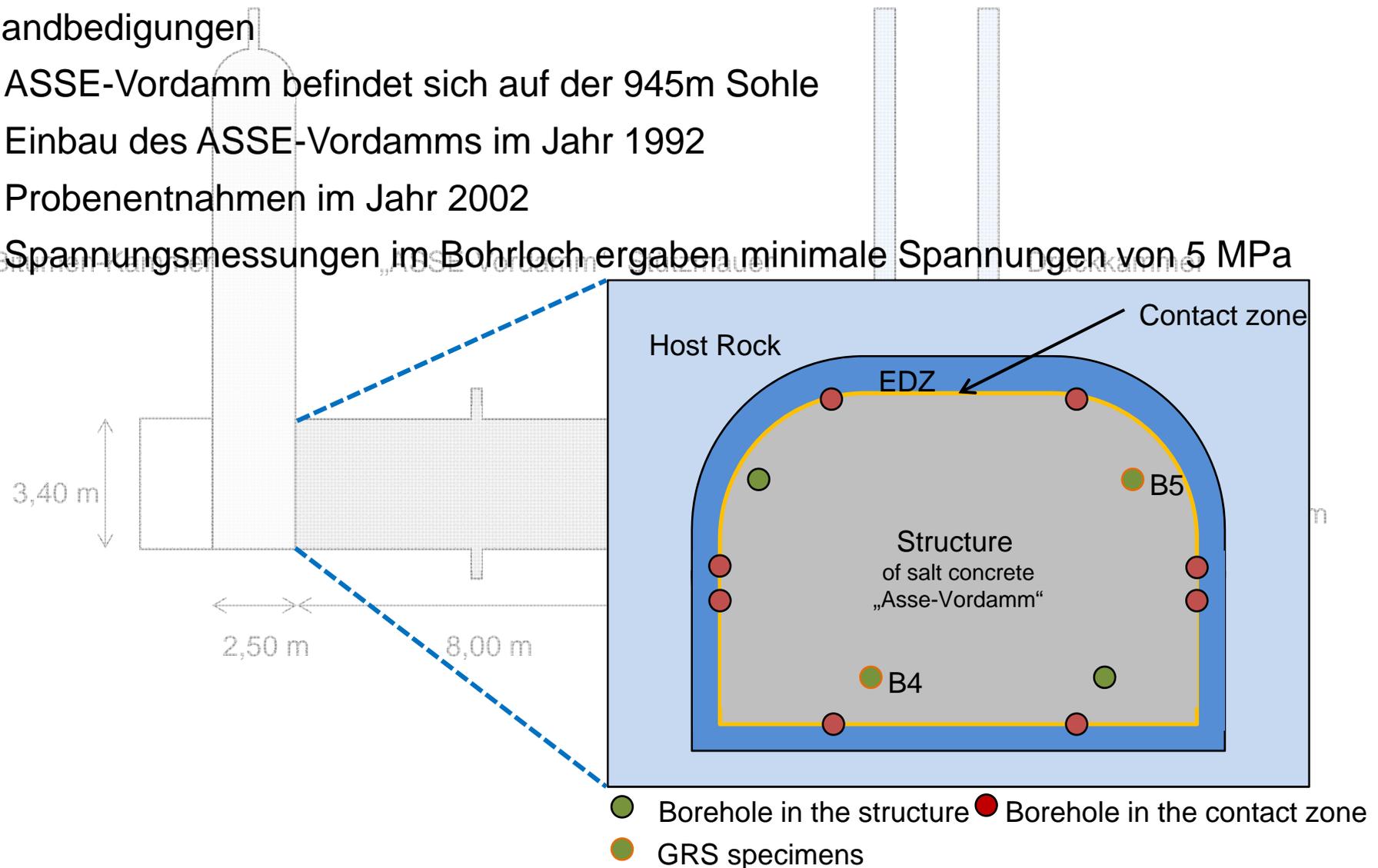
- Bestimmung der Korrosion auf Kontaktflächen
 - Systemdurchlässigkeit bestimmt von ALZ
 - Mechanische Rekompaktion

LASA – Vorläufige Ergebnisse

Herkunft des Probenmaterials

Randbedingungen

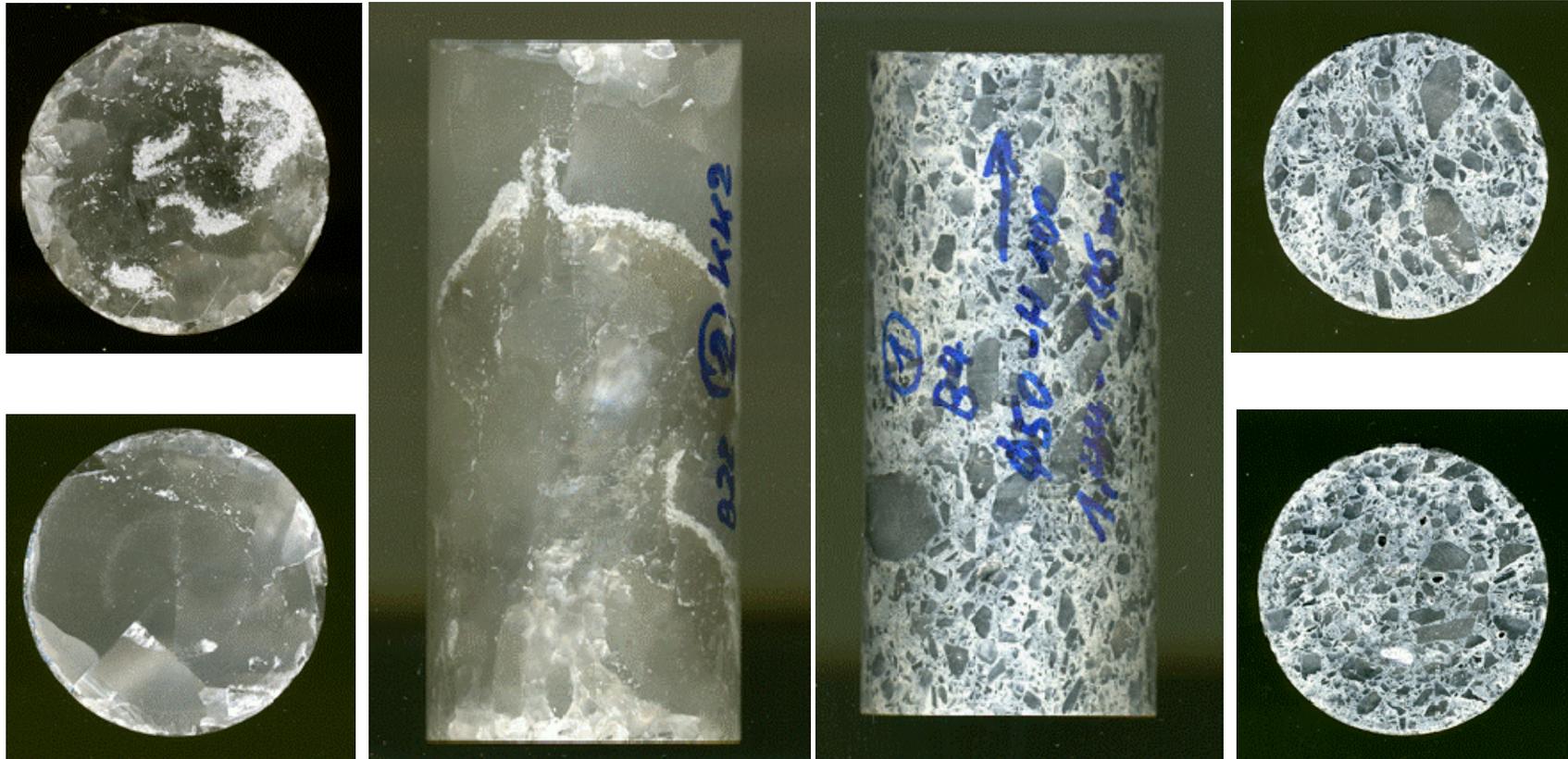
- ASSE-Vordamm befindet sich auf der 945m Sohle
- Einbau des ASSE-Vordamms im Jahr 1992
- Probenentnahmen im Jahr 2002
- Spannungsmessungen im Bohrloch ergaben minimale Spannungen von 5 MPa



Herkunft des Probenmaterials

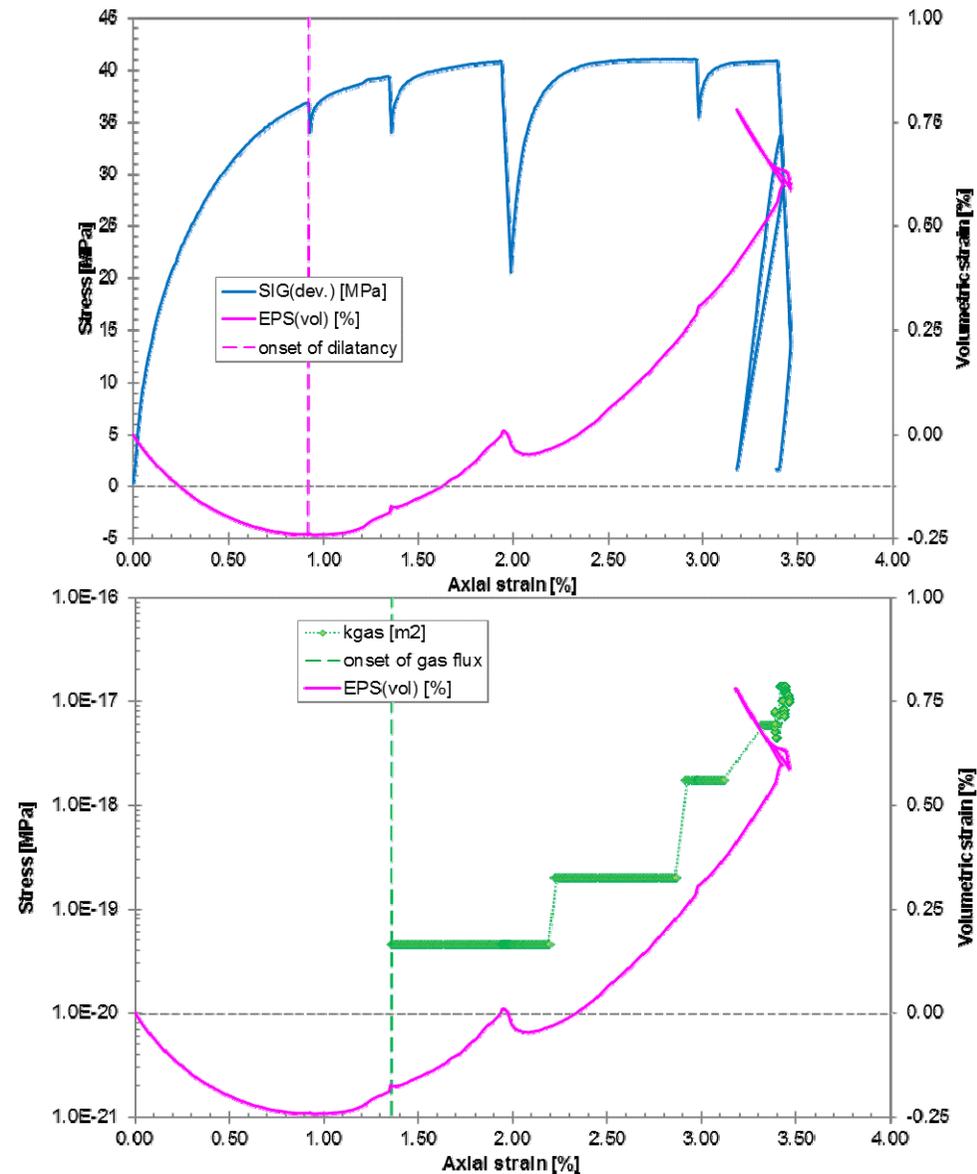
Zusammensetzung Salzbeton

- 18 % Hochofenzement 25
- 10 % NaCl-Lauge
- 72 % Salzgrus
- Wassergehalt ~2 %
- Korndichte 2,17 – 2,2 g/cm³
- Porosität ~6 %



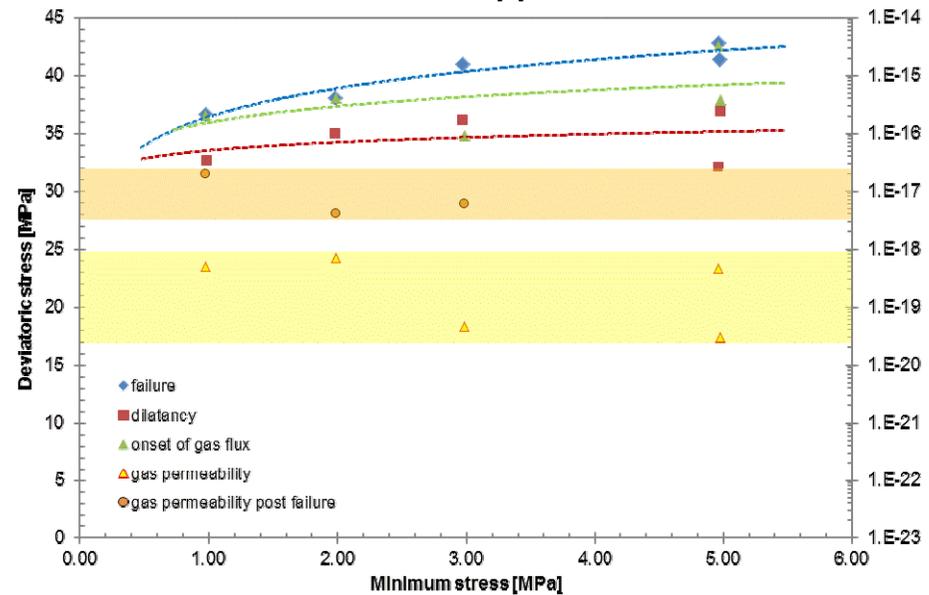
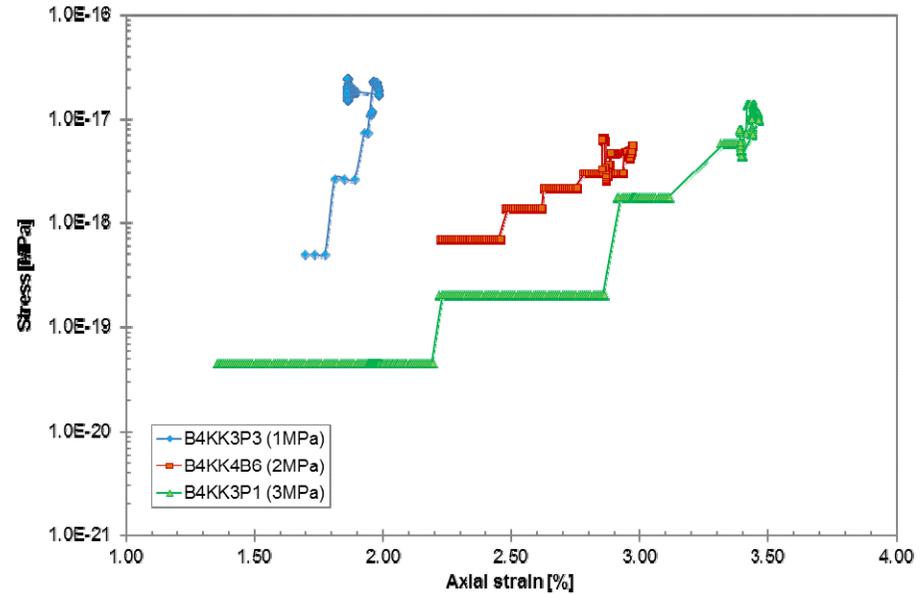
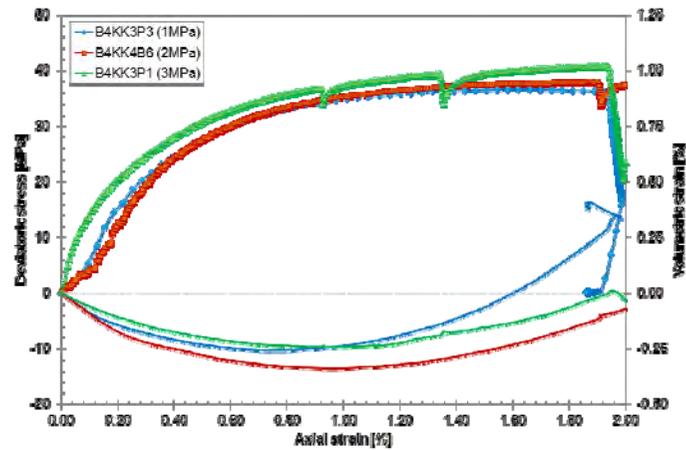
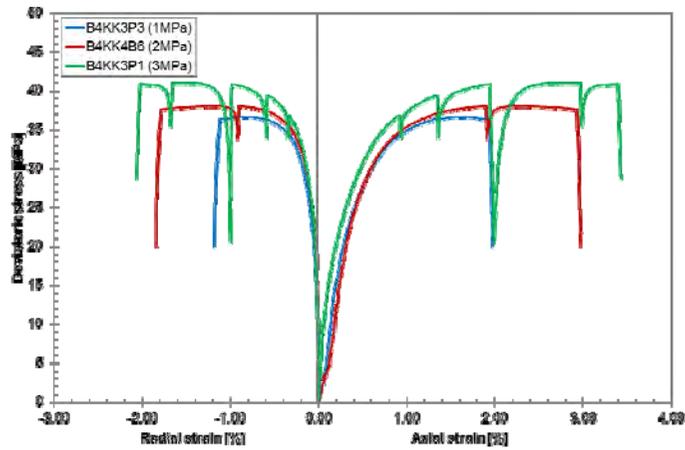
Festigkeits- und Deformationsverhalten

TC-Versuchsergebnisse

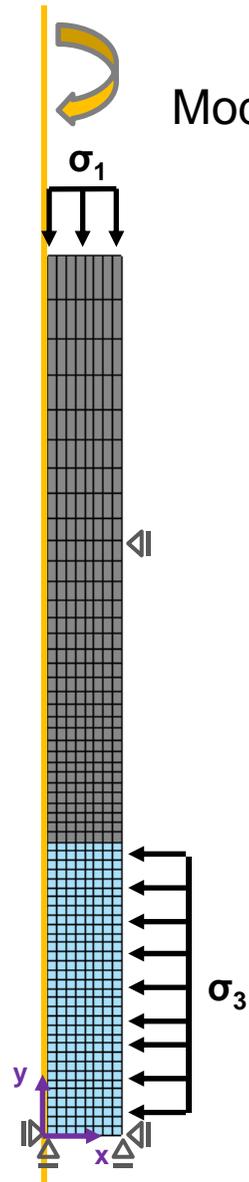


Festigkeits- und Deformationsverhalten

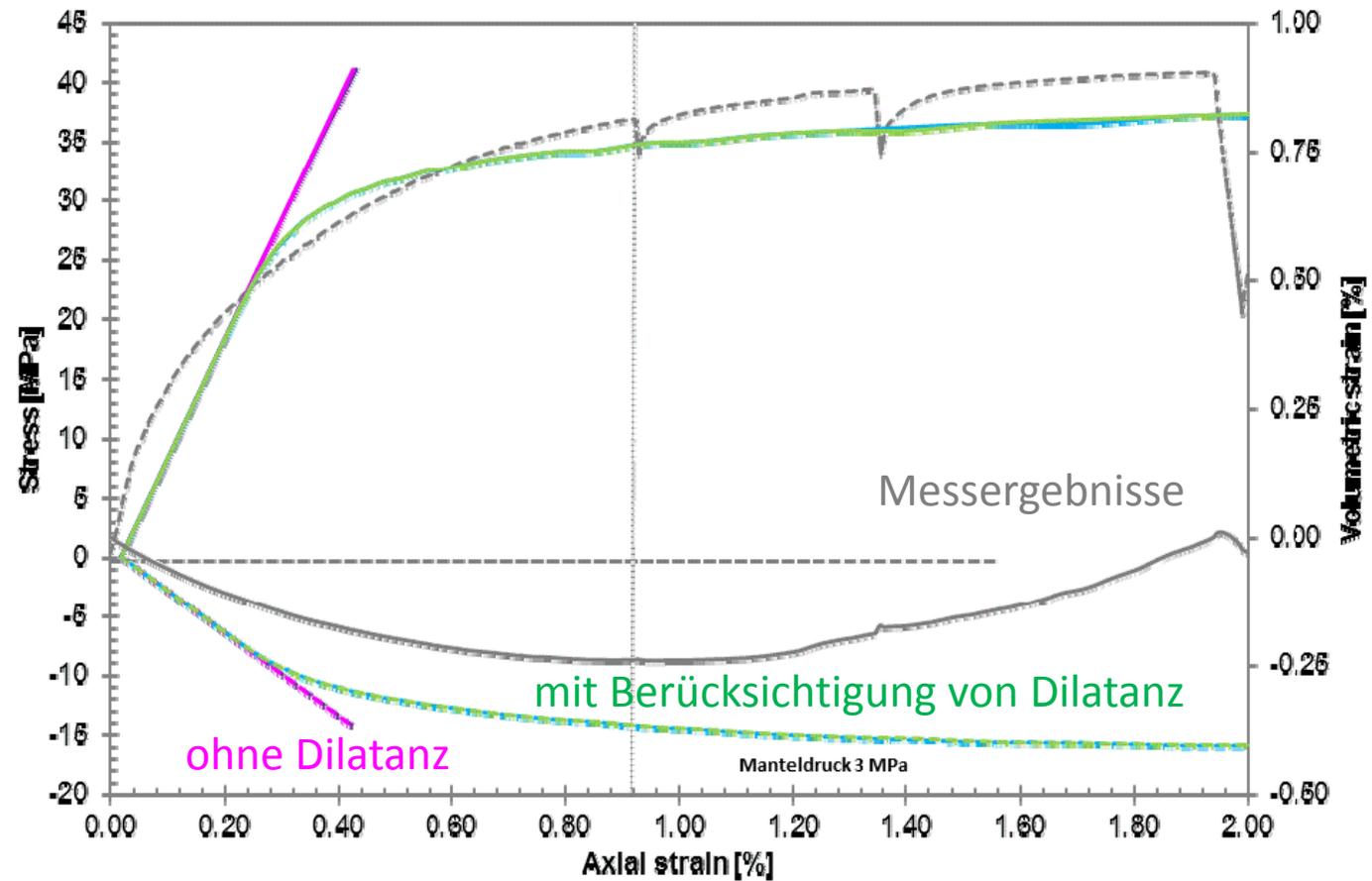
TC-Versuchsergebnisse



Festigkeits- und Deformationsverhalten

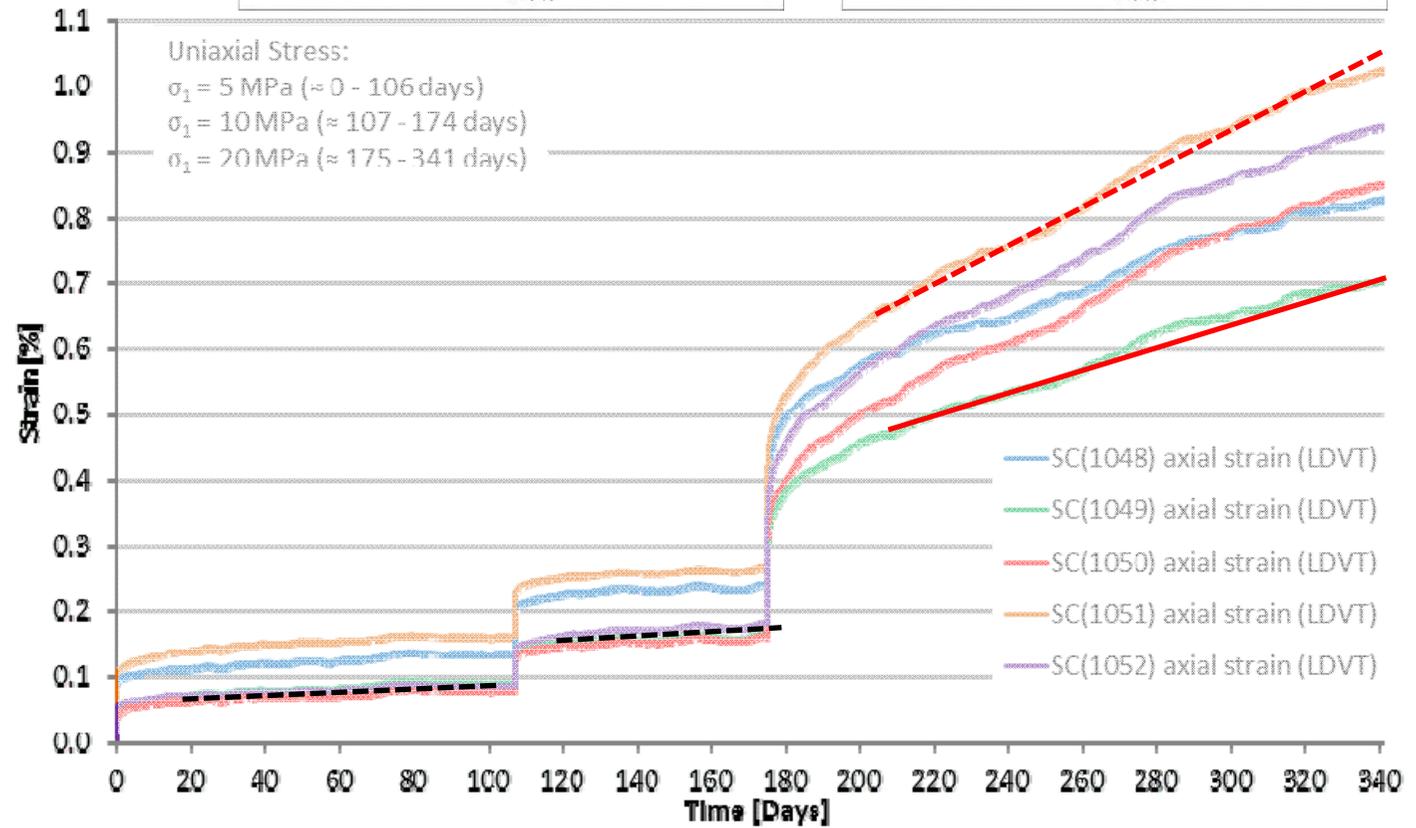
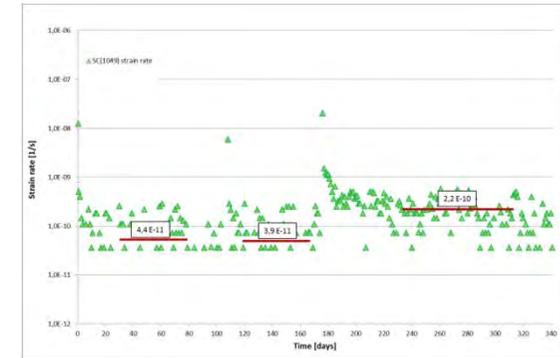
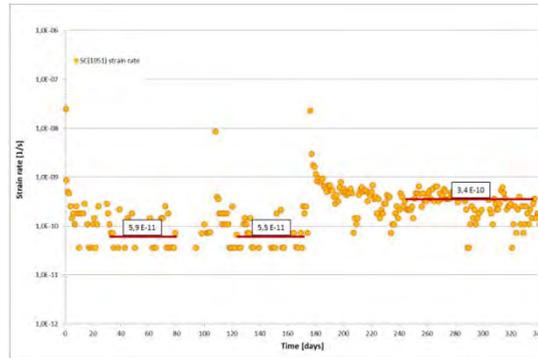


Modellierungsergebnisse

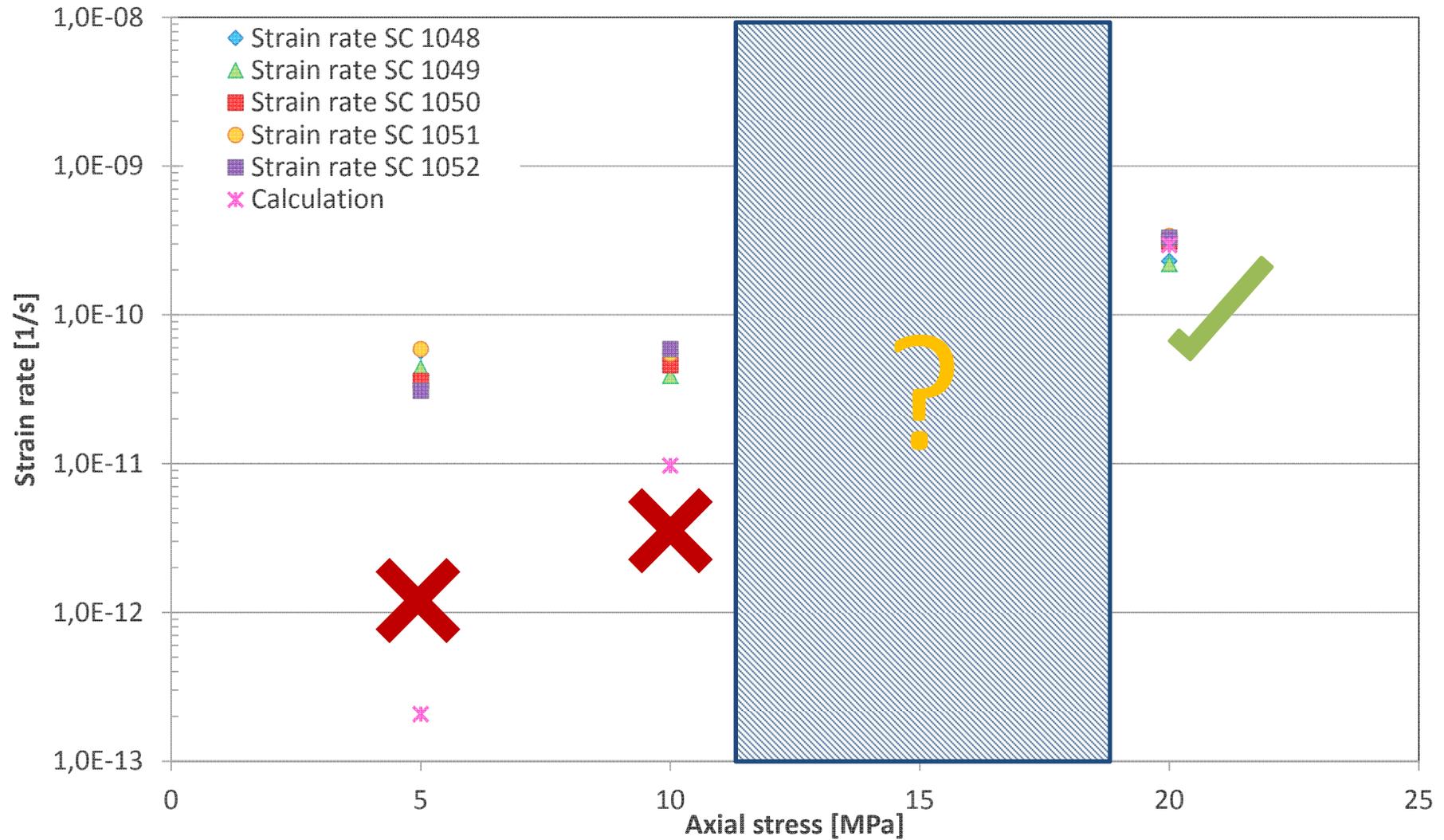


Kriechverhalten

UCc-Versuchsergebnisse

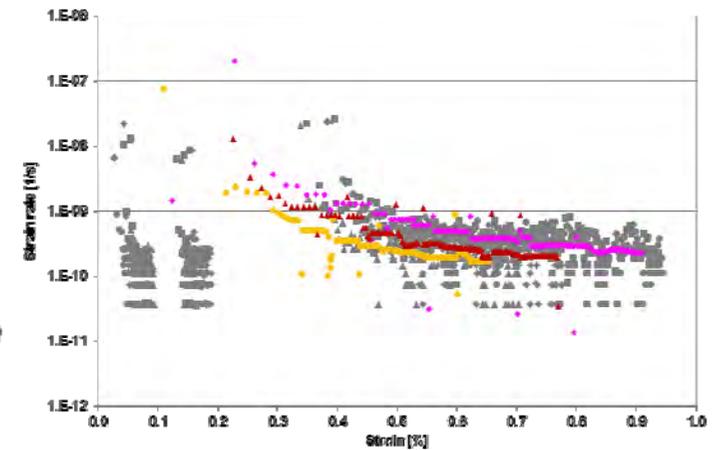
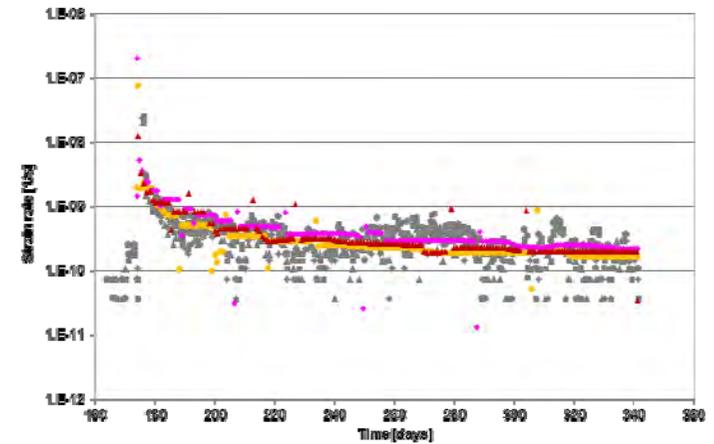
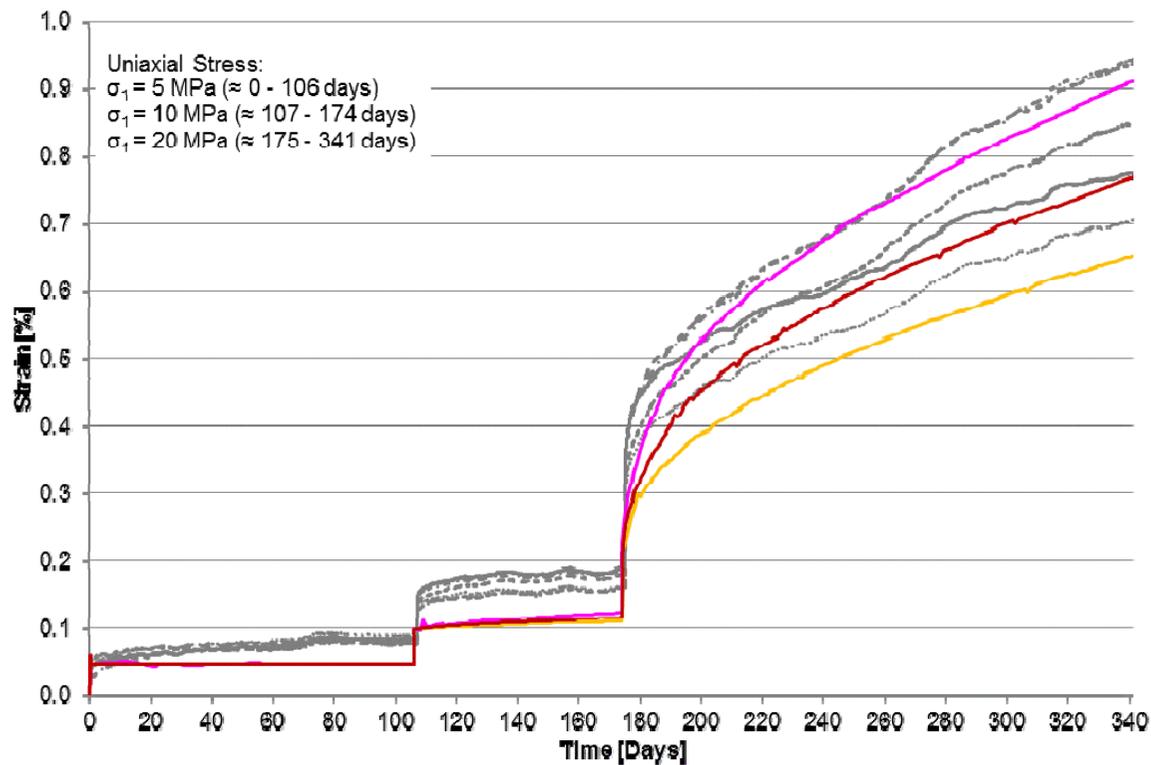


Vergleich der Kriechraten



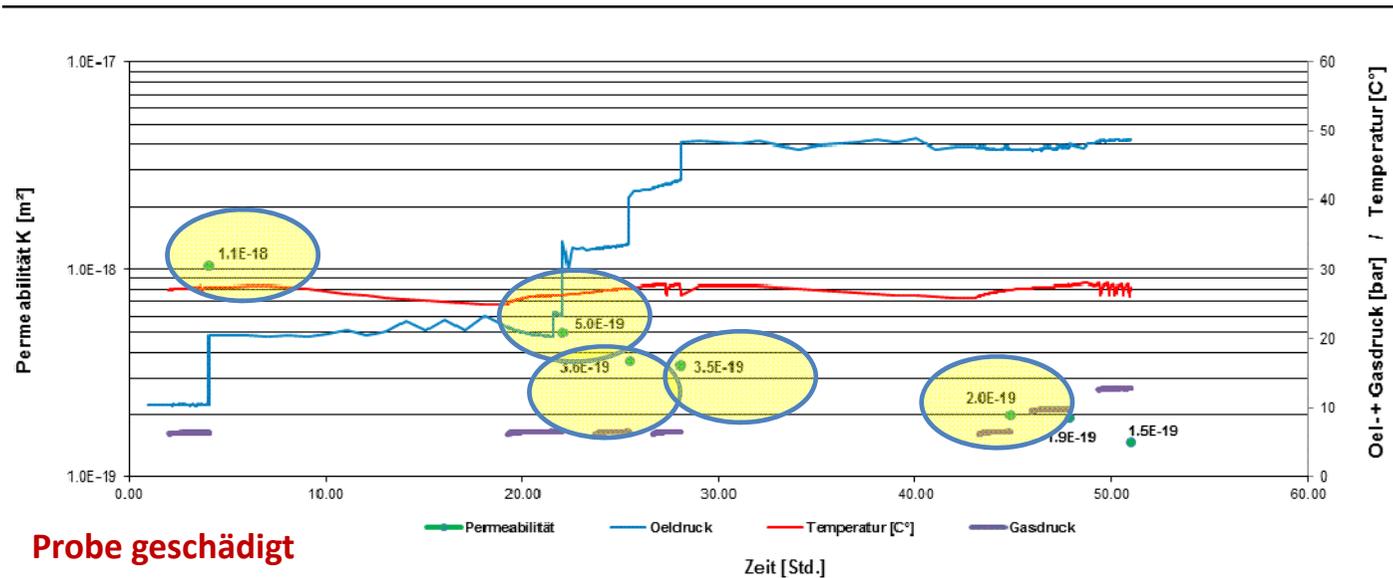
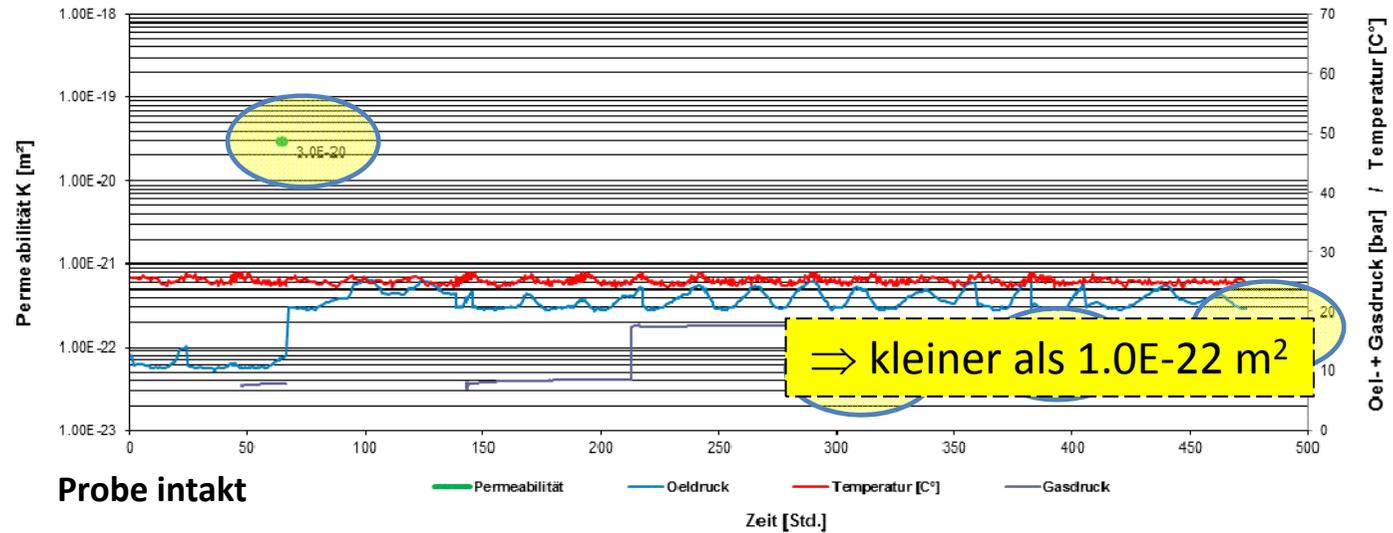
Kriechverhalten

Modellierungsergebnisse



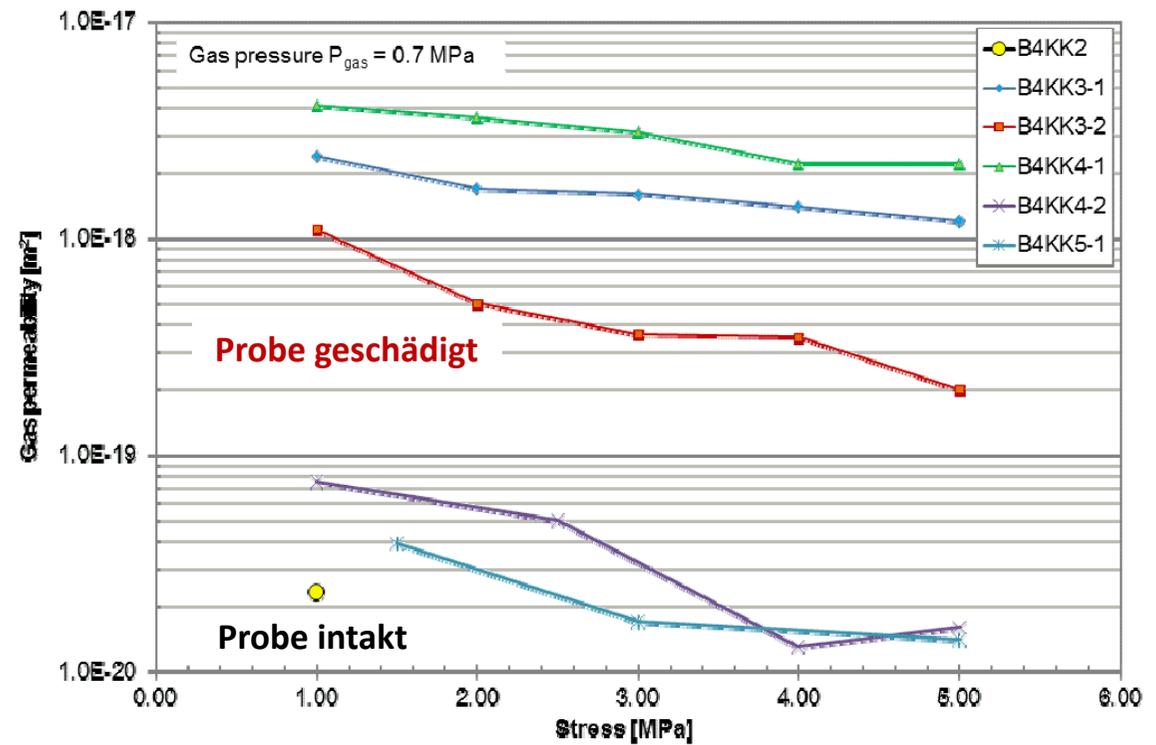
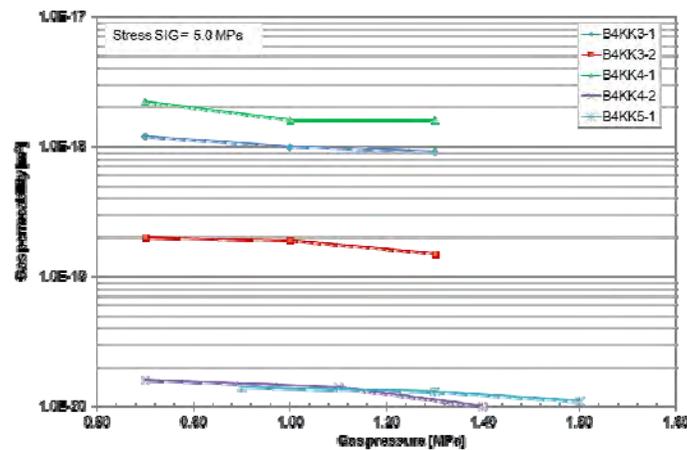
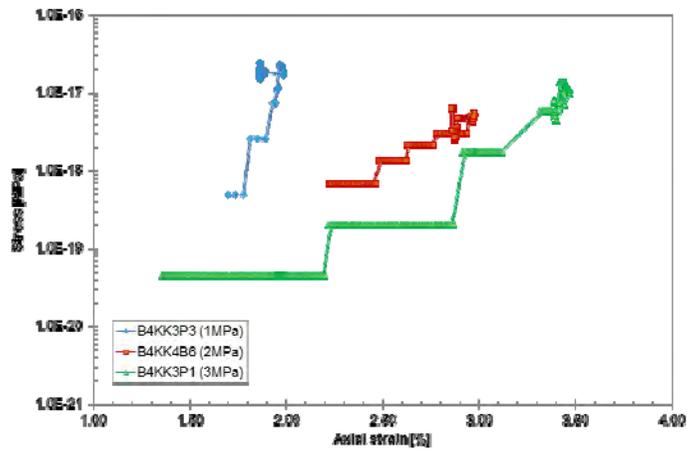
Rekompaktionsverhalten

Autoklav



Rekompaktionsverhalten

Autoklav

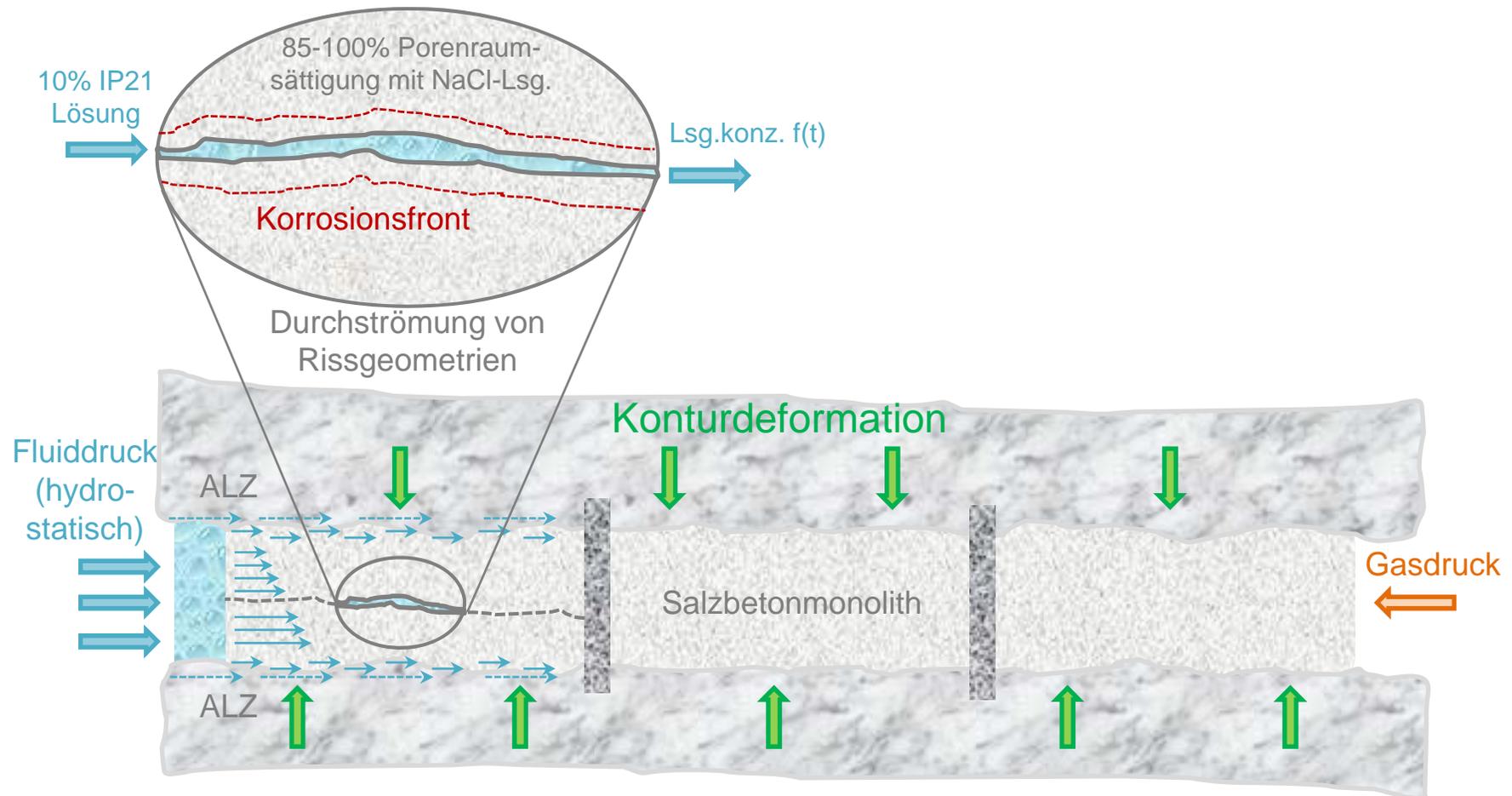


⇒ Modellierungsergebnisse stehen noch aus

Ausblick

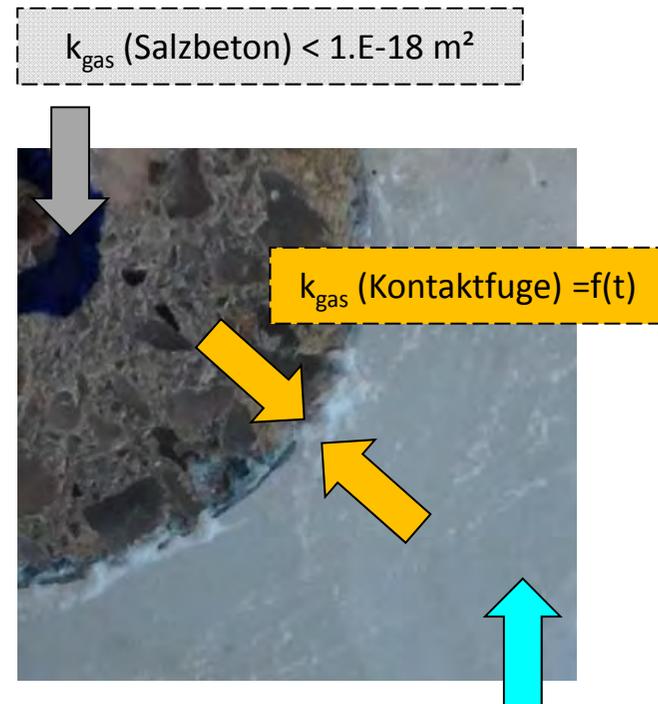
Systemverständnis

Korrosionspfade im Bauwerk (Streckenabdichtung)



Rekompaktionsverhalten der Kontaktfuge

Experimentelles Vorgehen



Lösungspermeabilität $k_{\text{fluid}} = f(\text{Zeit, Minimalspannung})$



Lösungspermeabilität $k_{\text{fluid}} = f(\text{Korrosion})$

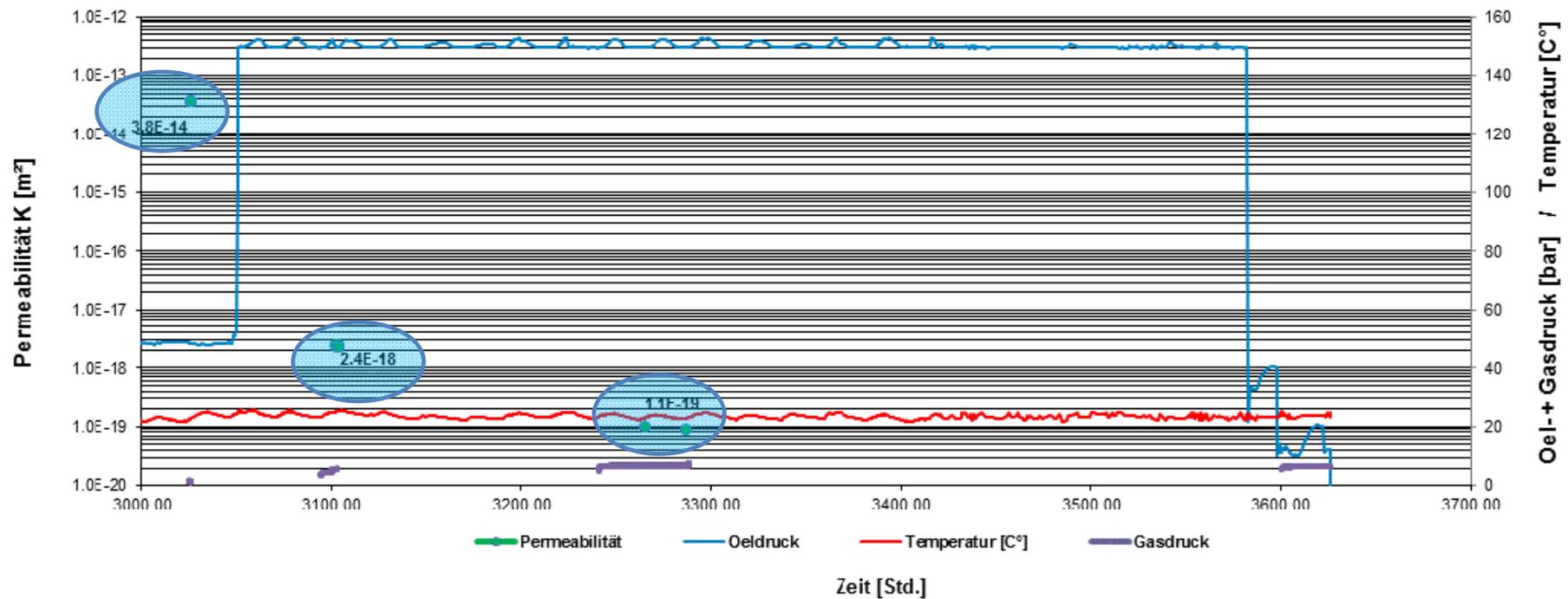
$k_{\text{gas}}(\text{ALZ}) < 1.E-22 \text{ m}^2$

Rekompaktionsverhalten der Kontaktfuge

Vorlä



Kern Salzbeton in Salz 70mm (Differenzdruck)



Resümee

Vorläufige Ergebnisse

LAVA

- Validation geochemischer Modellrechnungen mittels experimenteller Methoden - Kaskadenversuch
- Bestimmung des chemischen Reaktionspfades von Sorelbeton A1 in Kontakt mit NaCl-Lösung → der Mg^{2+} -Konzentration in Lösung → Auflösung der Magnesiumhydroxychlorid Phase (Sorelphase) ⇒ Baustoff wird durch NaCl-Lösung korrodiert
- Bestimmung des chemischen Reaktionspfades von Sorelbeton A1 in Kontakt mit IP21-Lösung → geringfügige Veränderung der Mg^{2+} -Konzentration in Lösung → keine Änderung des Phasenensembles ⇒ Baustoff ist gegenüber IP21-Lösung korrosionsbeständig
- Vorgehensweise wird auf Salzbeton in Kontakt mit IP21-Lösung angewendet (LAVA II)

LASA

- Salzbetonproben sind im Ausgangszustand gasdicht $k < 10^{-22} \text{ m}^2$ (nach Einbau & 10a Aufkriechen des Salzgebirges) ⇒ kein Laugenfluss messbar
- Vernetzte Wegsamkeiten liegen erst mit Überschreitung der Bruchfestigkeit vor, obwohl Dilatanzfestigkeit bei 90% der Bruchfestigkeit liegt
- Deviatorische Beanspruchung führt zu Kriechdeformationen (vergleichbar mit Steinsalz mit moderaten Kriecheigenschaften) ⇒ abhängig von Beanspruchungszustand
- Ermittelte Gaspermeabilitäten an geschädigten Proben von $K \approx 10^{-17} \text{ m}^2$ sind erfolgshöflich ⇒ Ermittlung von Laugenpermeabilitäten vielversprechend

Vielen Dank!

Gefördert durch:



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie



BETREUT VOM



PTKA
Projektträger Karlsruhe
Karlsruher Institut für Technologie

aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

unter den FKZ 02E11122 und FKZ 02E11132

Verbundprojekt III zum Stoffgesetzvergleich für Steinsalz: Aktuelle Arbeiten zur Modellierung der Verheilung

Dr. Andreas Hampel, Mainz

Kurzfassung

Im Jahre 2004 haben sechs deutsche Institutionen eine Verbundprojektserie zum Vergleich von Stoffgesetzen für das thermo-mechanische Verhalten von Steinsalz mit den folgenden Zielen begonnen: 1) Untersuchung und Überprüfung der Fähigkeiten der fortschrittlichen Stoffgesetze der beteiligten Partner zur korrekten und zuverlässigen Beschreibung relevanter thermo-mechanischer Verformungsphänomene im Steinsalz und ihrer Abhängigkeiten von einer Vielzahl in situ relevanter Randbedingungen, 2) Überprüfung und Vergleich der Verfahren zur Bestimmung salztypspezifischer Kennwerte für die Modellparameter und 3) Vergleich der Verfahren zur Durchführung numerischer Simulationsberechnungen zum Steinsalz in der Umgebung untertägiger Hohlräume. Zuverlässige Stoffgesetze und Verfahrensweisen werden für Berechnungen u.a. zur Planung, zur Standsicherheit und zur Bewertung und zum Nachweis der Langzeitsicherheit von Untertagedeponien für radioaktive Abfälle im Steinsalz benötigt.

Das laufende dritte Projekt (2010-2016) besteht aus einer Kooperation der folgenden Partner:

Aus Deutschland:

- Dr. Andreas Hampel (AH), Hampel Consulting, Mainz
- Institut für Gebirgsmechanik GmbH (IfG), Leipzig
- Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Karlsruhe
- Leibniz Universität Hannover (LUH), Hannover
- Technische Universität Braunschweig (TUBS), Braunschweig
- Technische Universität Clausthal (TUC), Clausthal-Zellerfeld

Aus den USA:

- Sandia National Laboratories (SNL), Albuquerque, New Mexico

In diesem Vorhaben werden ausgewählte Berechnungen durchgeführt zur Überprüfung der Fähigkeiten der Stoffgesetze zur korrekten Beschreibung 1) des Temperatureinflusses auf die Verformung und 2) des Schädigungs- und Dilatanrückgangs und der Verheilung von Steinsalz. Über Teil 1 wurde auf dem 10. PSG berichtet, diese Präsentation stellt Arbeiten aus dem zweiten Teil vor.

Zunächst hat jeder Partner für seine Stoffgesetzparameter einen einheitlichen Kennwertsatz für den Salztyp in der Umgebung der nachfolgend zu berechnenden In-situ-Struktur ermittelt. Dazu wurden Kriech-, Festigkeits- und Verheilungsversuche einer umfangreichen und systematischen Laborversuchsserie mit Asse-Speisesalz mit den beteiligten Stoffgesetzen nachgerechnet.

Anschließend hat jeder Partner mehrere 3D-Simulationen zu einem alten Dammjoch in der Schachanlage Asse II durchgeführt. Die zugehörige Strecke war 1911 aufgefahrene worden. Nach drei Jahren war in einem 25 m langen Abschnitt ein Gussstahlübbling eingebracht und der verbleibende Hohlraum zur Salzkontur mit Beton verfüllt worden. Jeder Partner hat diese Struktur mit seinem Stoffgesetz für einen Zeitraum von 88 Jahren ab der Streckenauffahrung berechnet. Zum Vergleich berechnete er auch den Querschnitt der freien Strecke ohne Dammjoch.

In der Präsentation wird zunächst ein kurzer Überblick über die Verbundprojektserie und das laufende Vorhaben gegeben. Anschließend werden Beispiele der aktuellen Berechnungen der Partner erläutert und deren Ergebnisse miteinander verglichen. Am Ende werden Themen des geplanten Nachfolgeprojektes (Verbundprojekt IV) vorgestellt.

11. Projektstatusgespräch zu BMWi-geförderten FuE-Projekten bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle

Projektträger Karlsruhe - Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)

Karlsruhe, 25.-26. November 2014

Verbundprojekt III zum Stoffgesetzvergleich für Steinsalz: Aktuelle Arbeiten zur Modellierung der Verheilung



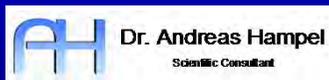
Dr. Andreas Hampel

Gefördert durch



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie

Verbundprojekt III zum Stoffgesetzvergleich für Steinsalz



Dr. Andreas Hampel
Scientific Consultant



Institut für
Gebirgsmechanik GmbH
Leipzig



TU Clausthal



Leibniz
Universität
Hannover



Technische
Universität
Braunschweig



Sandia
National
Laboratories

Betreut durch



PTKA
Projektträger Karlsruhe
im Karlsruher Institut für Technologie

BMWi-Förderkennzeichen	Projektpartner
02E10810	Dr. Andreas Hampel, Wissenschaftlicher Berater, Mainz
02E10820	Technische Universität Clausthal (TUC)
02E10830	Institut für Gebirgsmechanik (IfG), Leipzig
02E10840	Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
02E10850	Leibniz Universität Hannover (LUH)
02E10860	Technische Universität Braunschweig (TUBS)
assoziiert	Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexico, USA

Verbund- projekt	Periode	Hauptziele: Dokumentation, Überprüfung und Vergleich der ...
I (BMBF)	2004 – 2006	... Fähigkeiten der beteiligten Stoffgesetze zur zuverlässigen Beschreibung der grundlegenden Verformungsphänomene im Steinsalz
II (BMBF)	2007 – 2010	... Eignung der beteiligten Stoffgesetze für die Durchführung von 3D-Simulationsberechnungen, zeitlichen Extrapolationen, Permeabilitätsberechnungen
III (BMW <i>i</i>)	2010 – 2016	... Modellierung der <ul style="list-style-type: none"> • Temperaturabhängigkeit der Verformung: <ol style="list-style-type: none"> a) Steinsalz aus der Asse (Salzsattel, steile Lagerung), b) Steinsalz aus der WIPP, USA (flache Lagerung) • Schädigungsrückbildung und Verheilung

Schwerpunkte zukünftiger FuE-Arbeiten bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle

(2007 – 2010 -> 2011 – 2014)

Stoffgesetze und Verfahren zur Ermittlung charakteristischer Kennwerte und Modellierung von Untertagebauwerken zur Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Stoffe

-> Berechnungen zur Planung, Dimensionierung, Bau, Betrieb und Langzeitsicherheitsanalyse

Förderbereich: Daten & Instrumentarien für die Sicherheitsanalyse / Systemverhalten & -beschreibung

➤ Geologische Barriere / Wirtsgestein Steinsalz:

- Untersuchung und Modellierung des geomechanischen (...) und thermohydromechanischen Verhaltens (...)

➤ Methoden, Modelle und numerische Simulation:

- Weiterentwicklung und Aktualisierung der Methoden und Rechenprogramme für Langzeitsicherheitsanalysen, insbesondere auf der Grundlage definierter Szenarien (...) und neuer Erkenntnisse aus FuE-Arbeiten unter Berücksichtigung der internationalen Entwicklung,

- Verbesserung Prozess beschreibender Modelle, insbesondere durch Entwicklung gekoppelter Modelle

➤ Qualifizierung von Modellen und Reduzierung von Unsicherheiten / Ungewissheiten:

- Anwendung existierender oder Entwicklung neuer Methoden und Verfahren für die Qualifizierung von Modellen zur Beschreibung thermischer, geomechanischer (...) Prozesse,

- Überprüfung der Übertragbarkeit der Aussagen von Laboruntersuchungen auf (...) reale Systeme,

- Verbesserung der Aussagesicherheit von Langzeitsicherheitsanalysen,

- Entwicklung von Methoden zum Abbau von Unsicherheiten/Ungewissheiten

➤ Systemanalyse:

- Weiterentwicklung der Systemanalyse für ein Endlager für Wärme entwickelnde Abfälle im Steinsalz

Übersicht: Verbundprojekt III, Stand: 11/2014

10/2010: **Start von VB III**

1.a) Temperaturabhängigkeit der Verformung:

- Durchführung einer spezifischen Laborversuchsserie mit Asse-Speisesalz (IfG)
- Nachrechnung der Laborversuche: Überprüfung Stoffgesetze, Kennwertbestimmung
- Simulationen eines isothermen (IFC) und erhitzten (HFCEP) Bohrlochs in der Asse
- Vergleich der IFC und HFCEP Simulationsergebnisse der Projektpartner

10/2012
10. PSG

2. Schädigungsrückbildung und Verheilung:

- Durchführung spezifischer Laborverheilungsversuche mit Asse-Speisesalz (TUC)
- Nachrechnung der Laborversuche: Überprüfung Stoffgesetze, Kennwertbestimmung
- Simulationen des Dammjochs in der Asse
- Vergleich der Dammjoch-Simulationsergebnisse der Projektpartner

11/2014
11. PSG

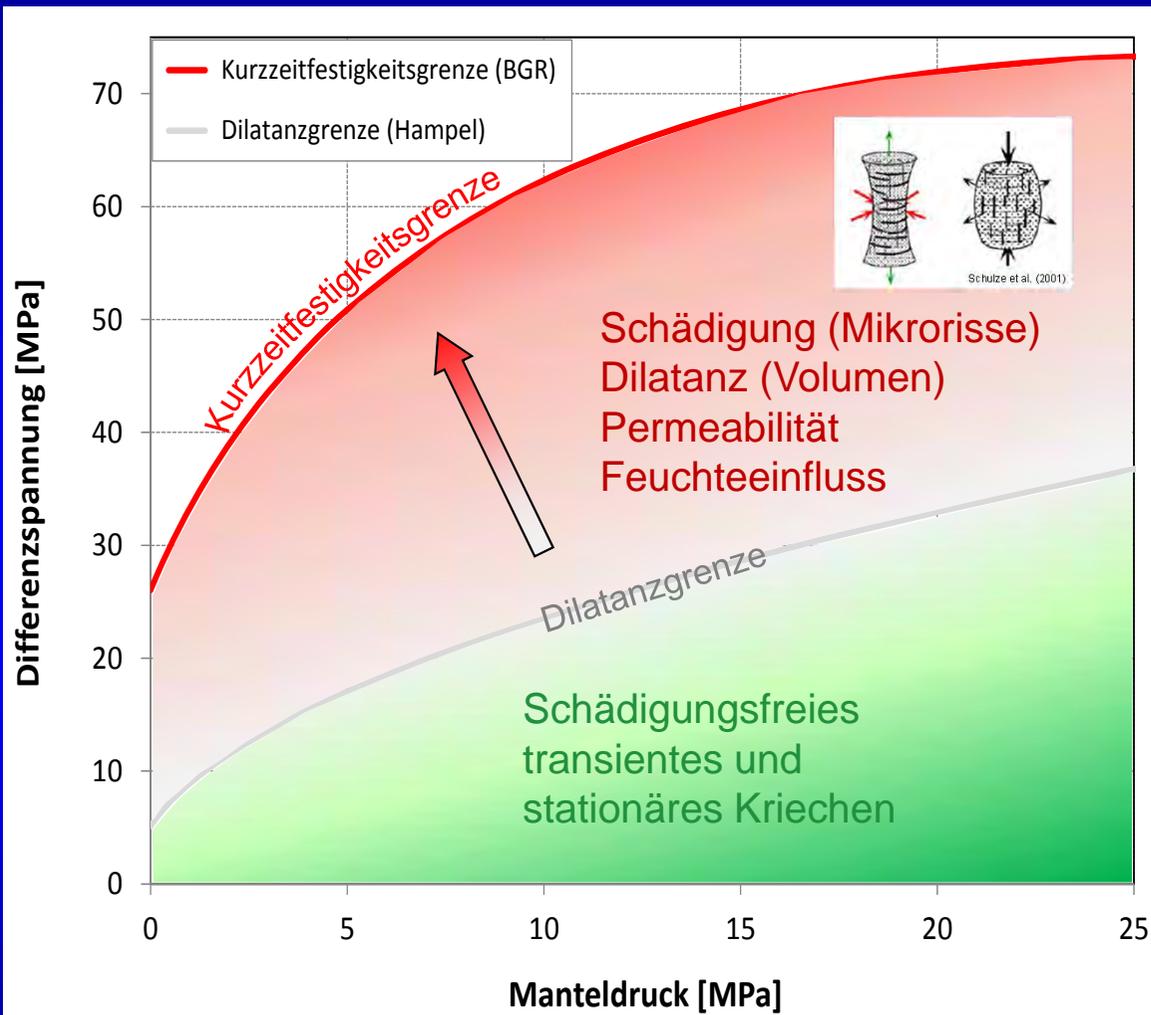
1.b) Temperaturabhängigkeit der Verformung:

- Durchführungen spezifischer Laborversuchsserien mit clean salt & argillaceous salt aus der WIPP (-> Steinsalz aus flacher Lagerung) (IfG, TUC)
- Nachrechnung der Laborversuche: Überprüfung Stoffgesetze, Kennwertbestimmung
- Simulationen des isothermen „Room D“ und erhitzten „Room B“ der WIPP
- Vergleich der Simulationsergebnisse der Projektpartner

03/2016: **Ende der Teilprojekte der Projektpartner**

09/2016: **Abgabe des Syntheseberichts**

Mit Stoffgesetzen zu beschreiben: (thermomechanisches Verhalten)



Verformungsphänomene

- Transientes Kriechen nach $\Delta\sigma \uparrow$ (Verfestigung)
- Transientes Kriechen nach $\Delta\sigma \downarrow$ (Erholung)
- Stationäres Kriechen
- Schädigungsentwicklung (Mikrorissbildung & -wachstum)
- Dilatanz / vol. Verformung / Auflockerung (Mikrorissaufweitung => Volumenzunahme)
- Kriechbruch & Kurzzeitfestigkeit
- Nachbruchverhalten & Restfestigkeit
- Schädigungsrückbildung & Verheilung

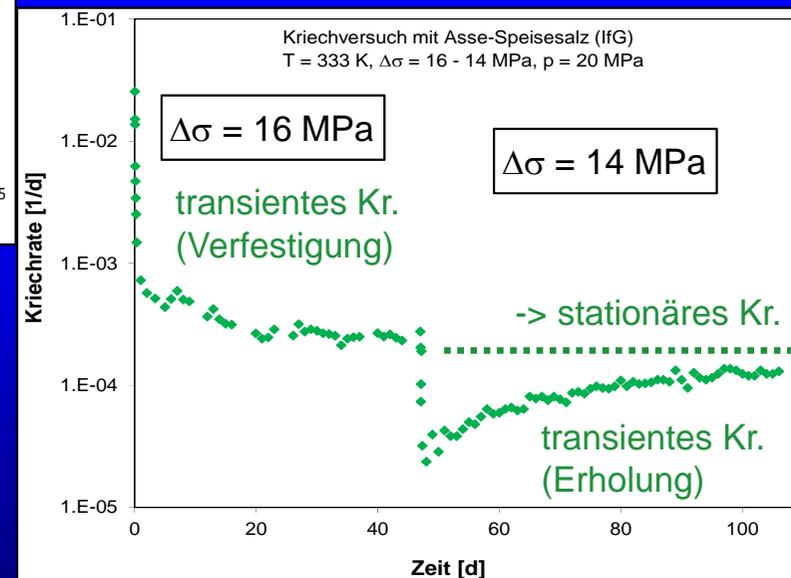
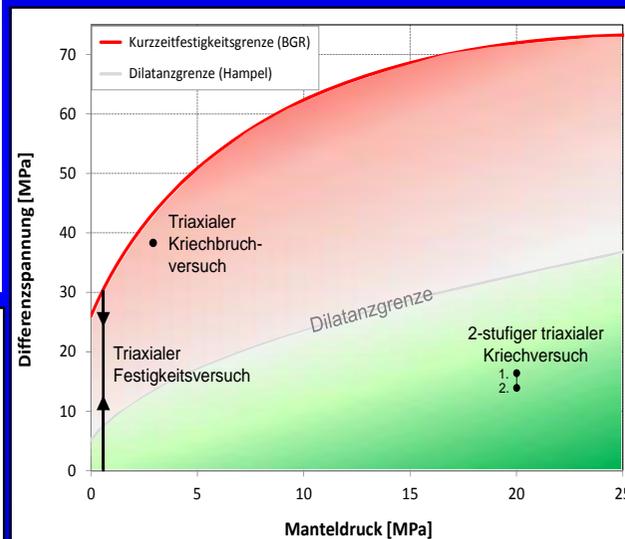
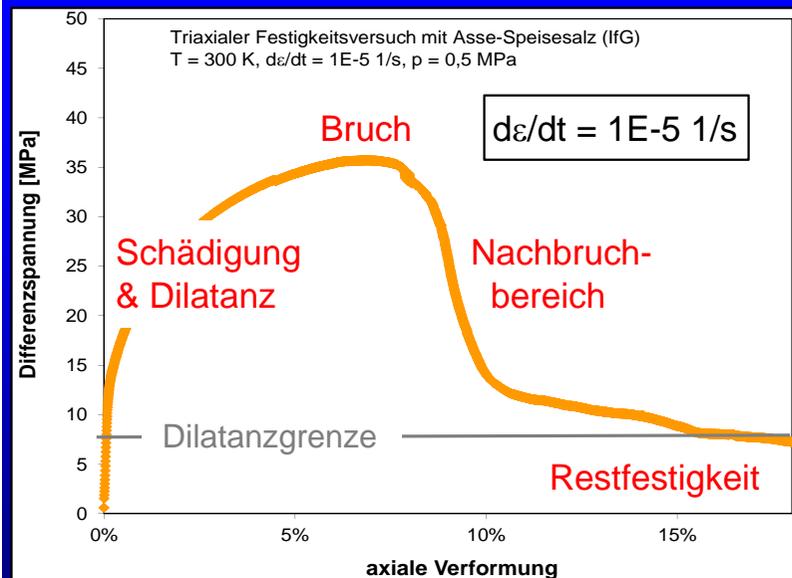
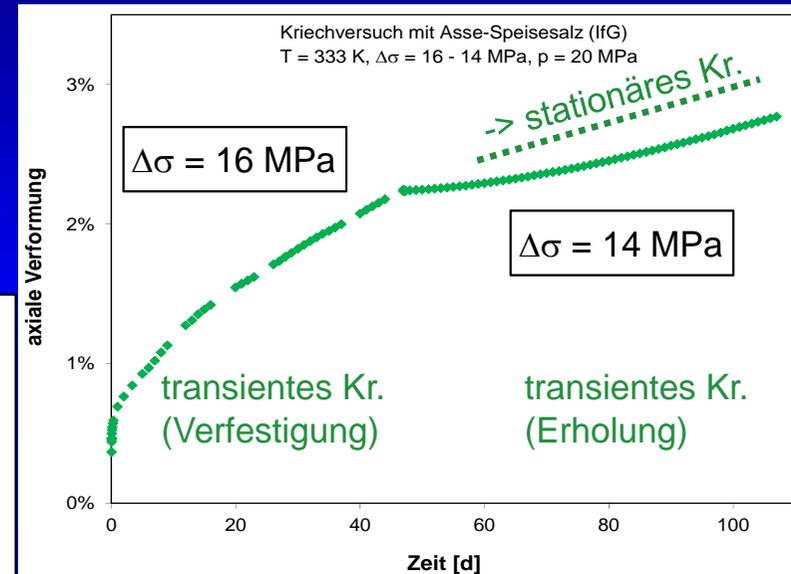
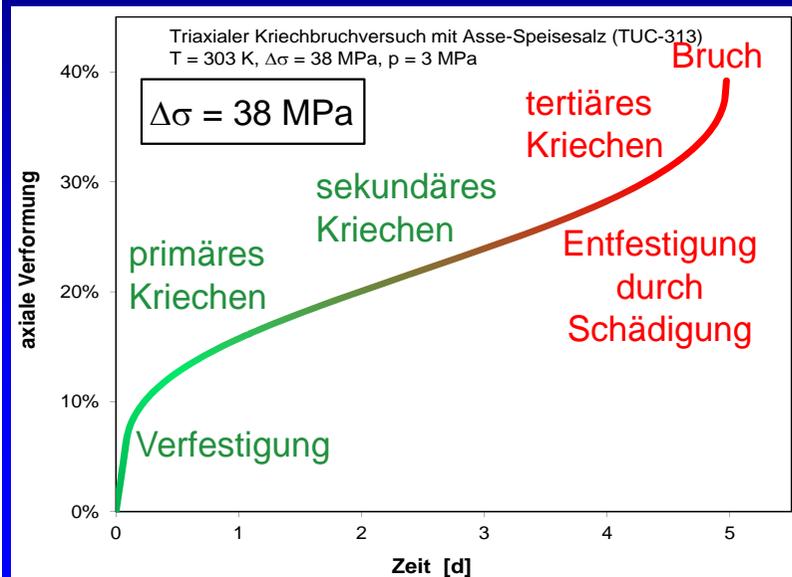
in Abhängigkeit von

- Differenzspannung (Vergleichsspannung)
- Manteldruck (minimale Hauptspannung)
- Temperatur
- Verformungsrate

Untersuchungen der Verformungsphänomene im Labor

Schädigung, Dilatanz, etc.

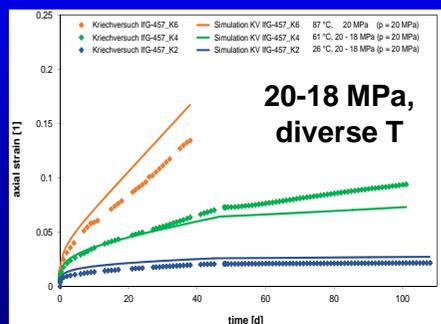
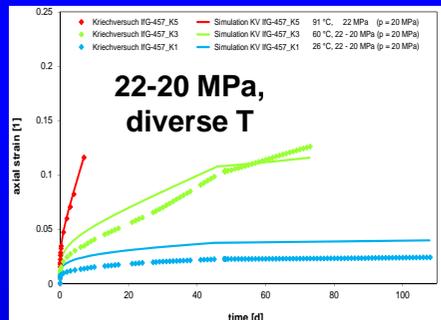
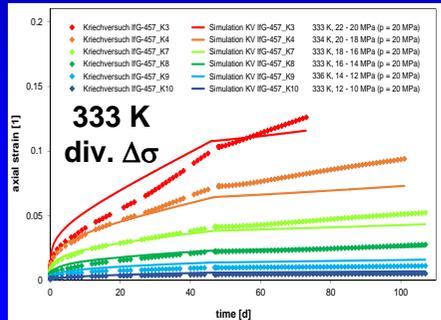
transientes & stationäres Kriechen



Nachrechnungen zahlreicher Laborversuche mit einem Salztyp

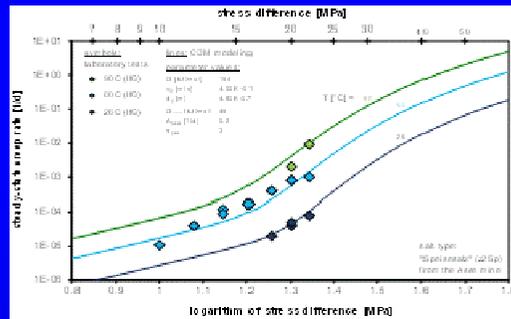
1. Überprüfung der Stoffgesetze -> Beschreibung der Verformungsphänomene und Abhängigkeiten
2. Bestimmung eines einheitlichen salztypspezifischen Kennwertsatzes -> Stoffgesetzparameter

transientes Kriechen
diverse T und $\Delta\sigma$



Kriech- und Festigkeitsversuche mit Asse-Speisesalz (IfG)

stationäre Kriechraten
diverse T und $\Delta\sigma$



Alle Versuche wurden
mit den gleichen
Parameterwerten
nachgerechnet

(Beispiel: CDM von Hampel)

300 K

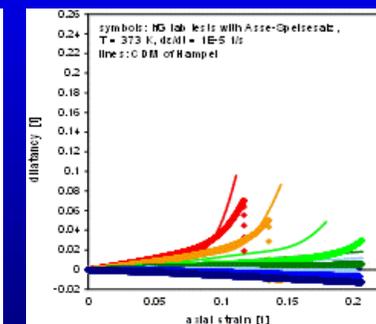
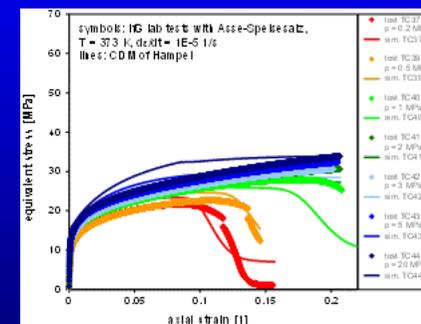
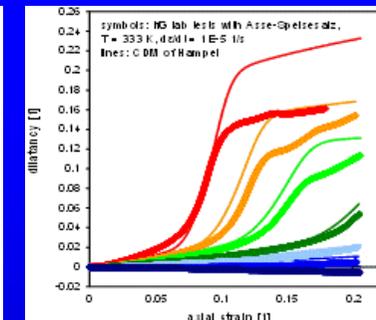
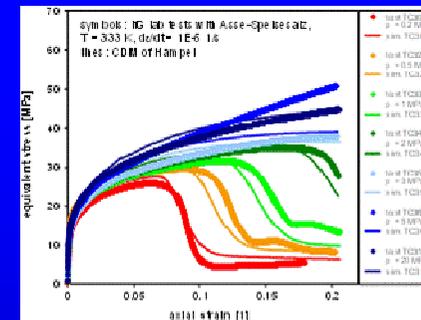
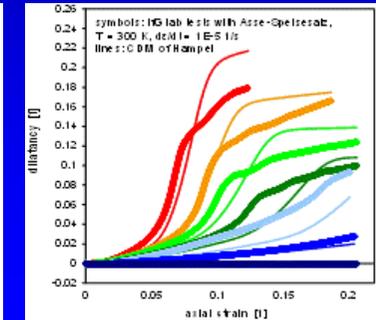
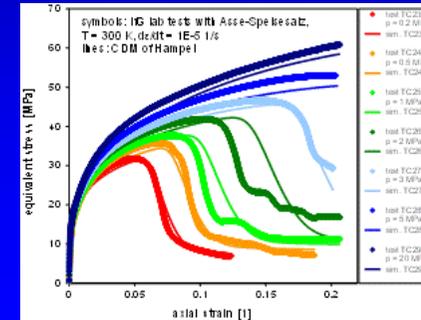
333 K

373 K

Spannung – Verformung

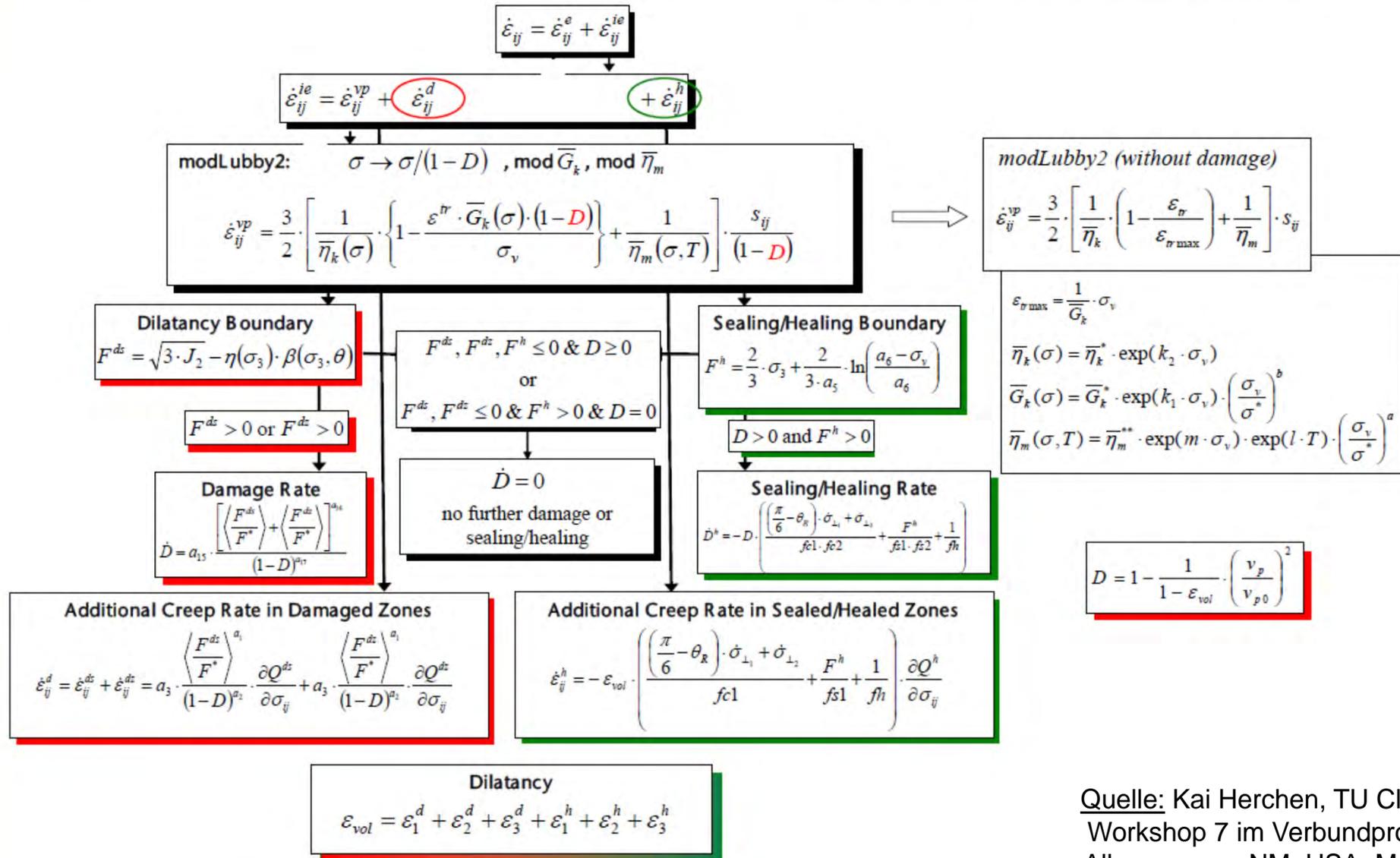
Dilatanz – Verformung

diverse T und p



Beispiel: Stoffgesetz Lux/Wolters (TU Clausthal)

Constitutive model Lux/Wolters



Quelle: Kai Herchen, TU Clausthal
 Workshop 7 im Verbundprojekt III
 Albuquerque, NM, USA, Mai 2012

Beispiel: Stoffgesetz CDM (Hampel)

Gesamte inelastische Verformungsrate:

$$\frac{d\varepsilon_{cr}^{dam}}{dt} = \frac{bv_0}{r^2 M} \exp\left(\frac{-Q}{RT}\right) \sinh\left(\frac{b \Delta a \sigma^*}{Mk_B T(1-D)}\right) + A_{pl} \exp\left\{-\frac{Q_{pl}}{RT}\right\} \sigma_{eq}^{n_{pl}}$$

Kriechen des ungeschädigten Steinsalzes

Evolution der Verformungsmikrostruktur: Subkörner, Versetzungen:

$$\begin{aligned} \frac{dw}{dt} &= \frac{dw}{d\varepsilon_{cr}} \cdot \frac{d\varepsilon_{cr}}{dt} = \frac{w_{ss} - w}{k_w(w)} \cdot \frac{d\varepsilon_{cr}}{dt} \\ \frac{dr}{dt} &= \frac{dr}{d\varepsilon_{cr}} \cdot \frac{d\varepsilon_{cr}}{dt} = \frac{r_{ss} - r}{k_r} \cdot \frac{d\varepsilon_{cr}}{dt} \\ \frac{da}{dt} &= \frac{da}{d\varepsilon_{cr}} \cdot \frac{d\varepsilon_{cr}}{dt} = \frac{a_{ss} - a}{k_a} \cdot \frac{d\varepsilon_{cr}}{dt} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} w_{ss}(T, \sigma_{eq}) &= \min\left(33 \frac{G(T)b}{\sigma_{eq}}, d_K\right) \\ r_{ss}(T, \sigma_{eq}) &= \min\left(\frac{G(T)b}{k_{s,ss} \sigma_{eq}}, d_K\right) \\ a_{ss}(T, \sigma_{eq}) &= \frac{1}{2} f_{h,ss} w_{ss}(T, \sigma_{eq}) \end{aligned}$$

Versetzungen treibende Spannung:

$$\sigma^* = \begin{cases} \sigma_{eq} - \sigma_b - \sigma_{G,r} & \text{for } \sigma_{eq} \geq \frac{3\sigma_{G,r}}{2k_s} \\ \frac{4\sigma_s^3}{27\sigma_{G,r}^2} & \text{otherwise} \end{cases}$$

$$\sigma_s = \sigma_{eq} - \sigma_b = k_s \sigma_{eq} \quad k_s = \frac{1 - f_h k_h}{1 - f_h}$$

$$\sigma_{G,r} = \frac{\alpha M G(T) b}{r} \quad f_h = \frac{2a}{w}$$

$$G(T) = 15 \text{ GPa} \left(1 - 0.73 \cdot \frac{T[K] - 300 \text{ K}}{1070 \text{ K}}\right)$$

Eff. Versetzungshindernisse:

$$\left(\frac{b}{\Delta a}\right)^2 = \left(\frac{1}{d_p}\right)^2 + \left(\frac{1}{r}\right)^2$$

3D-Transformation:

$$de_{kl}^{(pl)} = \frac{3}{2} \cdot \frac{d\varepsilon_{eq}}{\sigma_{eq}} s_{kl}$$

Dilatanzgrenze:

$$\sigma_{Dil}(\sigma_3) = \sqrt{a_{DH} (\sigma_3 + b_{DH})}$$

Schädigung & Dilatanz im Vor- & Nachbruchbereich

$$\begin{aligned} \varepsilon_{vol} &= \varepsilon_{vol,gen} - \varepsilon_{vol,red} & \frac{d(d_{dam})}{dt} &= \left(\frac{\sigma_{eq}}{3} - \sigma_3\right) \cdot \frac{d\varepsilon_{vol}}{dt} \\ \frac{d\varepsilon_{vol,gen}}{dt} &= \sqrt{\frac{3}{2}} \cdot r_v(\sigma_{eq}, \sigma_3) \cdot \frac{d\varepsilon_{cr,tot}}{dt} & r_v(\sigma_{eq}, \sigma_3) &= \left[\frac{c_{gen1} \cdot \sigma_{eq}}{c_{gen2} - \sigma_3}\right]^{c_{gen3}} \\ D &= D_{dam} + D_{PF} & D_{dam}(T, \sigma_3, d_{dam}) &= \left[\frac{c_{dam1} (T - c_{dam2})^2}{(1 - c_{dam3} \sigma_3)^{c_{dam4}}}\right] \cdot d_{dam}^{c_{dam5}} \end{aligned}$$

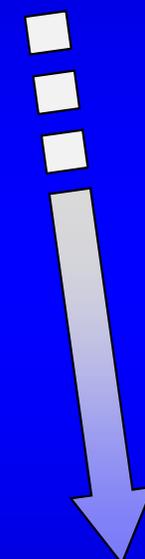
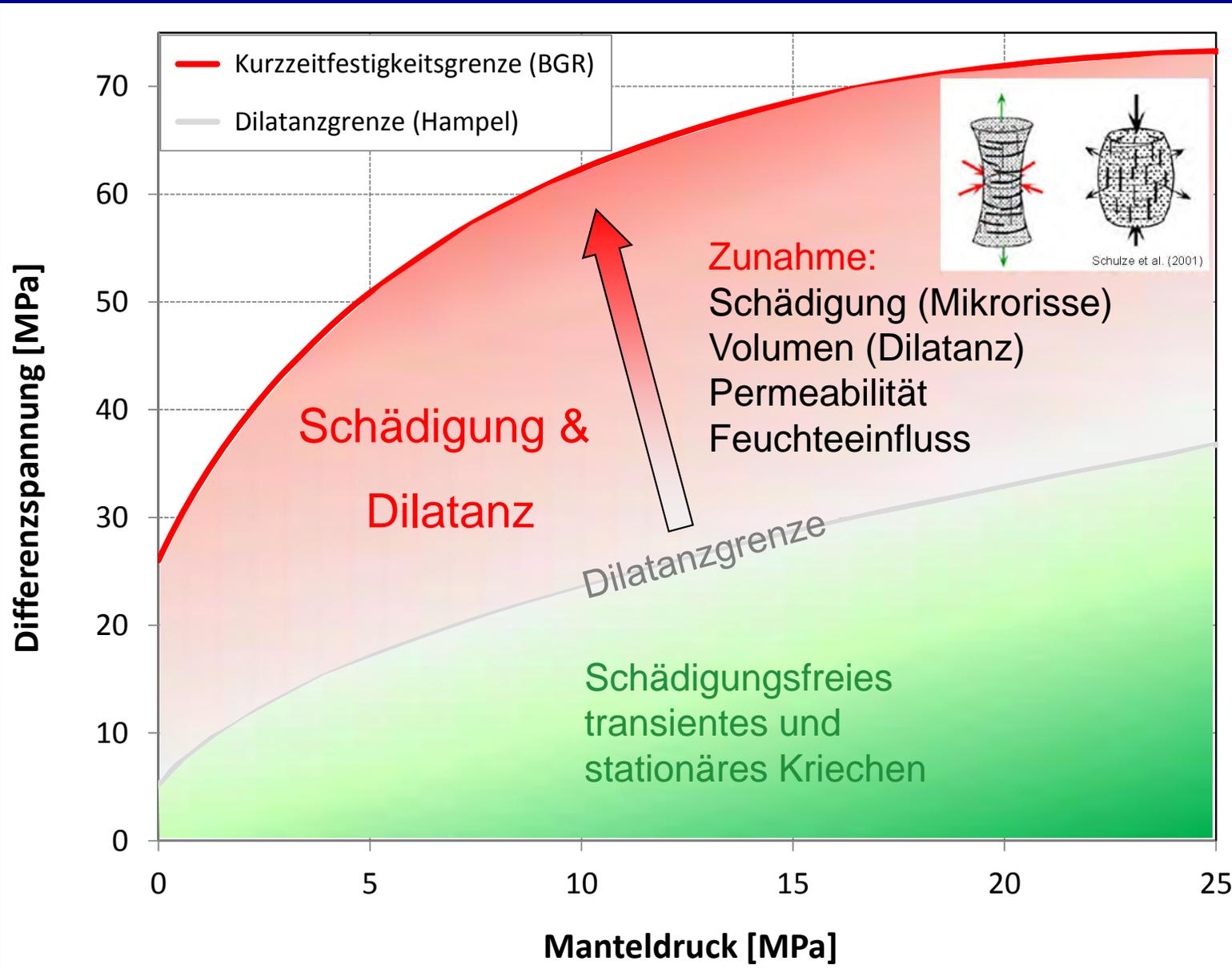
$$\begin{aligned} \frac{d\varepsilon_{volPF}}{dt} &= \frac{c_{PF1} (T - c_{PF2})}{(1 - c_{PF3} \sigma_3)^{c_{PF4}}} \cdot (W_D - W_F)^2 & W_D &= \int_{dil. boundary}^{\varepsilon} (\sigma_{eq} - \sigma_{Dil}) d\varepsilon \\ W_F &= \int_{dil. boundary}^{failure} (\sigma_{eq} - \sigma_{Dil}) d\varepsilon & W_F(T, \sigma_3) &= (c_{F1} \cdot T + c_{F2}) \cdot (1 - \sigma_3) \\ d_{damPF} &= \left(\frac{\sigma_{eq}}{3} - \sigma_3\right) \cdot \varepsilon_{volPF} & D_{PF} &= (c_{PF5} \cdot d_{damPF})^2 \end{aligned}$$

Schädigungsrückbildung & Verheilung: $\frac{d\varepsilon_{vol,red}}{dt} = \frac{-c_{red1} \cdot \varepsilon_{vol}^{c_{red3}} \cdot \sigma_3}{1 + c_{red2} \cdot \sigma_{eq}}$



Partner	Stoffgesetz	Theoretische Basis
Hampel	CDM	Kriechen: Mikrostrukturentwicklung (Versetzungsdichte, Subkorngröße) Schädigungs- & Dilatanzentwicklung, Bruch, ... abhängig vom Kriechen
IfG	Günther/Salzer Modell	Makroskopisch-phänomenologische Beschreibung der Verfestigung , Erholung und schädigungsbedingten Entfestigung
	Minkley Modell	Rheologische (viskoelastisch-plastische) Modelle: Kriechen: Makroskopisch-phänomenologische Beschreibung von Verformungsmechanismen durch (modifizierte) Kelvin- & Maxwell-Elemente (Kombination von Feder und Dämpfungstopf), Überlagerung schädigungsinduzierter Verformungsraten für Scher- und Zugverformung sowie Schädigungsrückbildung und Verheilung
KIT	KIT Modell	
TUC	Lux/Wolters Modell	
LUH	Lubby-MDCF Modell	
TUBS	TUBSsalt	
Sandia	MD model	

Schädigungsrückbildung und Verheilung



Schädigungs-
rückbildung:
Abnahme der
Schädigung,
Dilatanz,
Permeabilität
und des
Feuchteinflusses

und Verheilung:
Wiederherstellung
der Kohäsion
=> Festigkeit

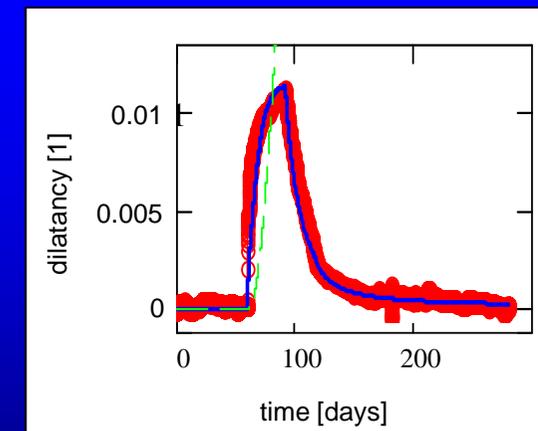
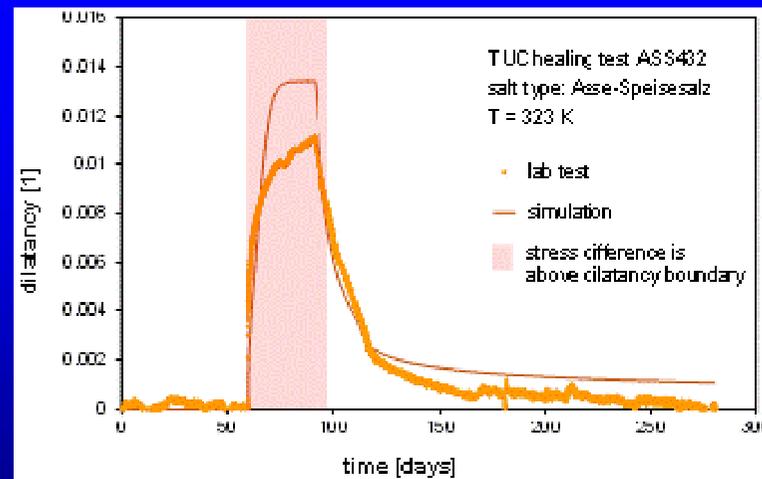
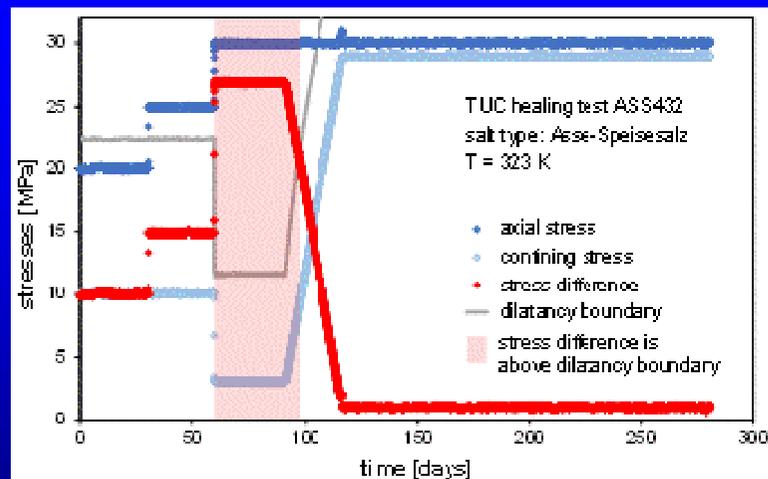
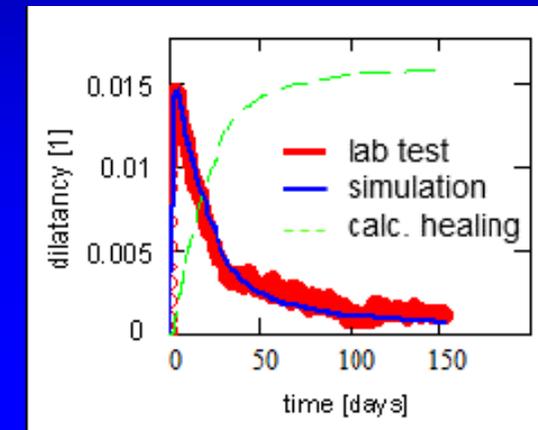
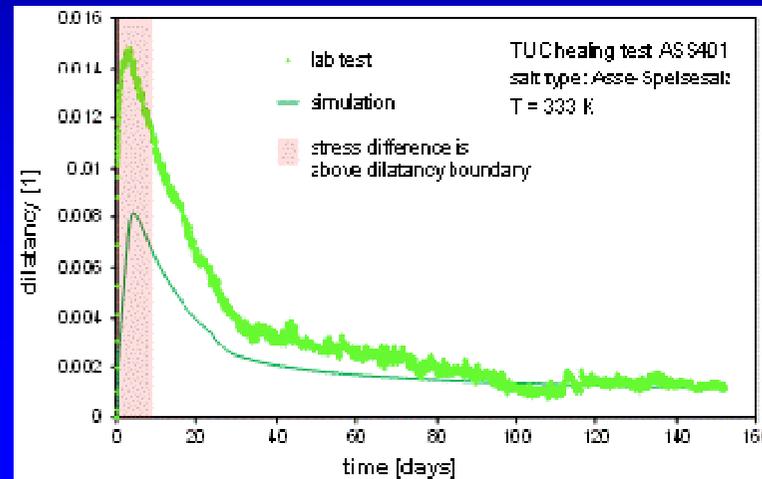
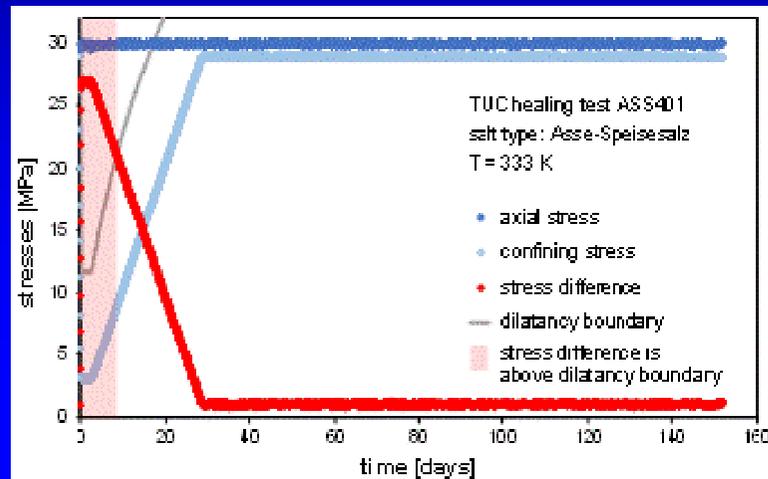
Verheilungsversuche der TU Clausthal

Gemessene Dilatanz, berechnet mit

dem einheitlichen Kennwertsatz
für Asse-Speisesalz (alle Versuche)

individuellen Kennwerten

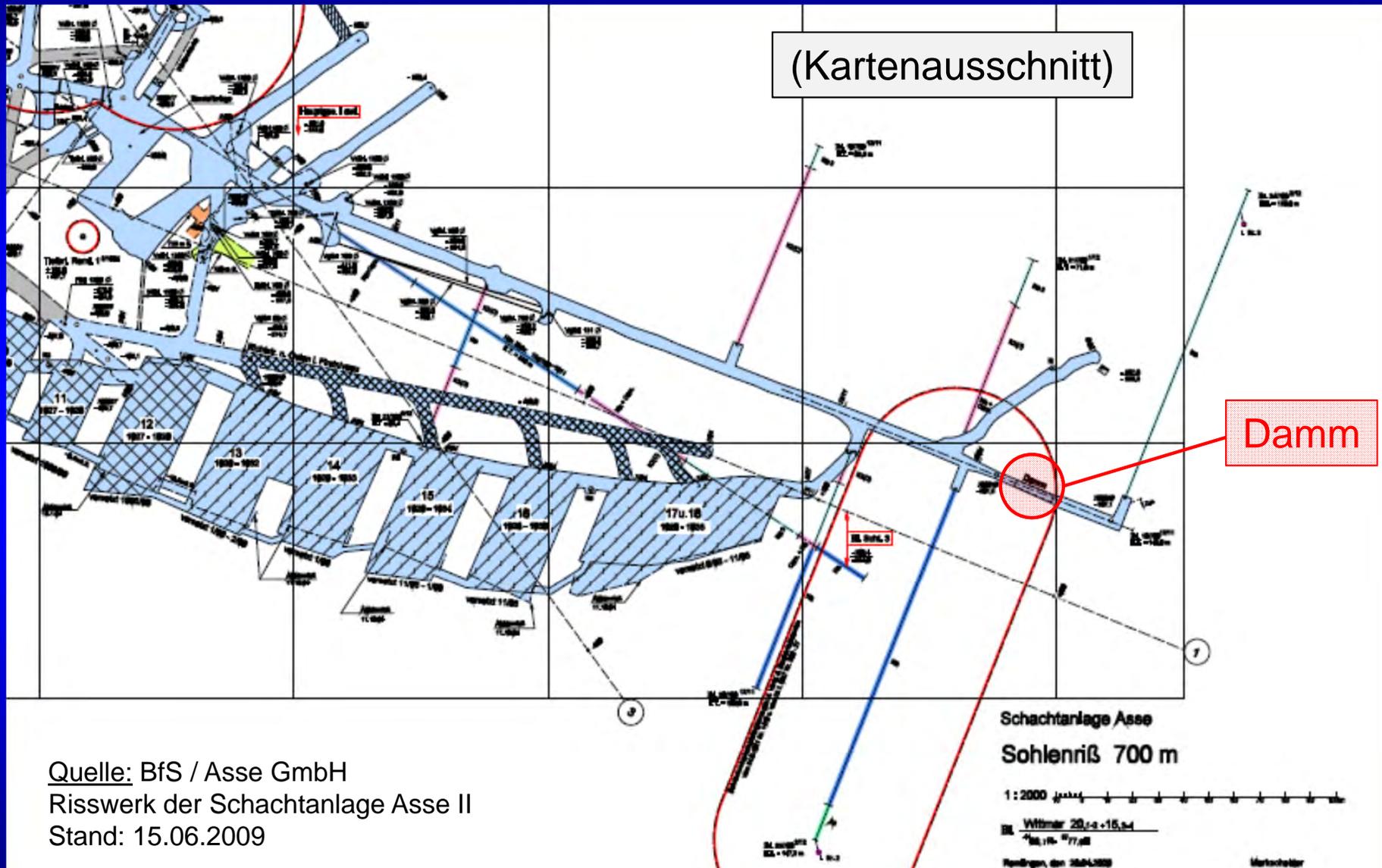
Vorgegebene Spannungsverläufe



Beispiel: Nachrechnungen mit dem CDM (Hampel), Salztyp: Asse-Speisesalz

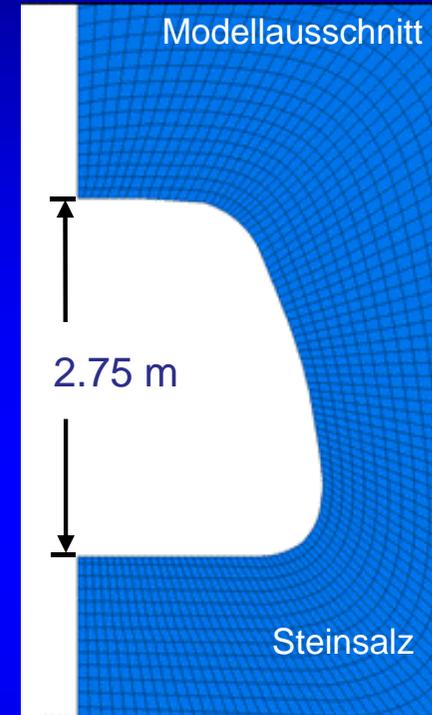


Lage des Dammjochs in der Vahlberger Strecke auf der 700-m-Sohle der Schachanlage Asse II



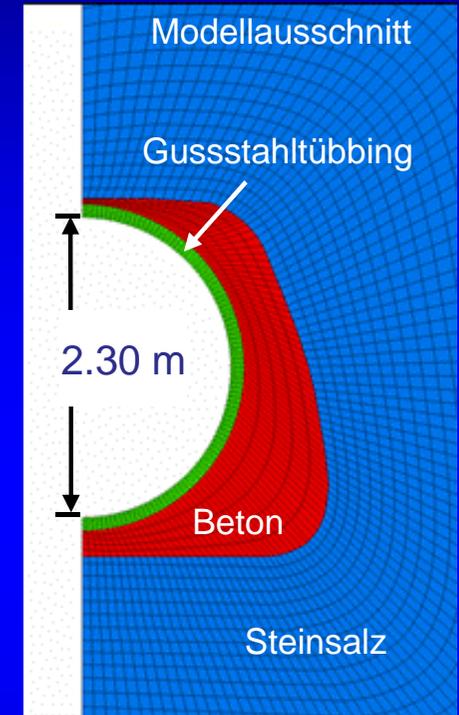
„Dammjoch“ auf der 700-m-Sohle in der Schachtanlage Asse II

1911: Auffahrung der Strecke, 1914: Einbau des 25 m langen Damms



Simulation 1:

0 ... 88 a: offene Strecke



Simulation 2:

0 ... 3 a: offene Strecke
3 ... 88 a: mit Dammjoch

Streckendimension: $h_{\max} = 2,75 \text{ m}$, $b_{\max} = 3,80 \text{ m}$

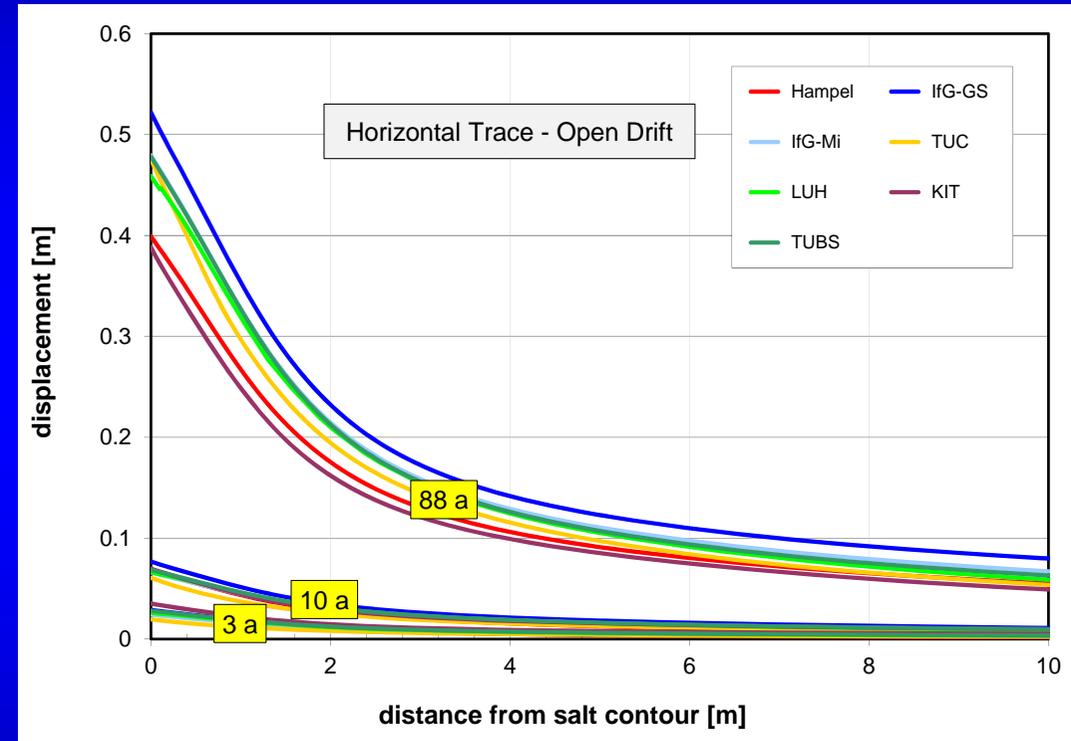
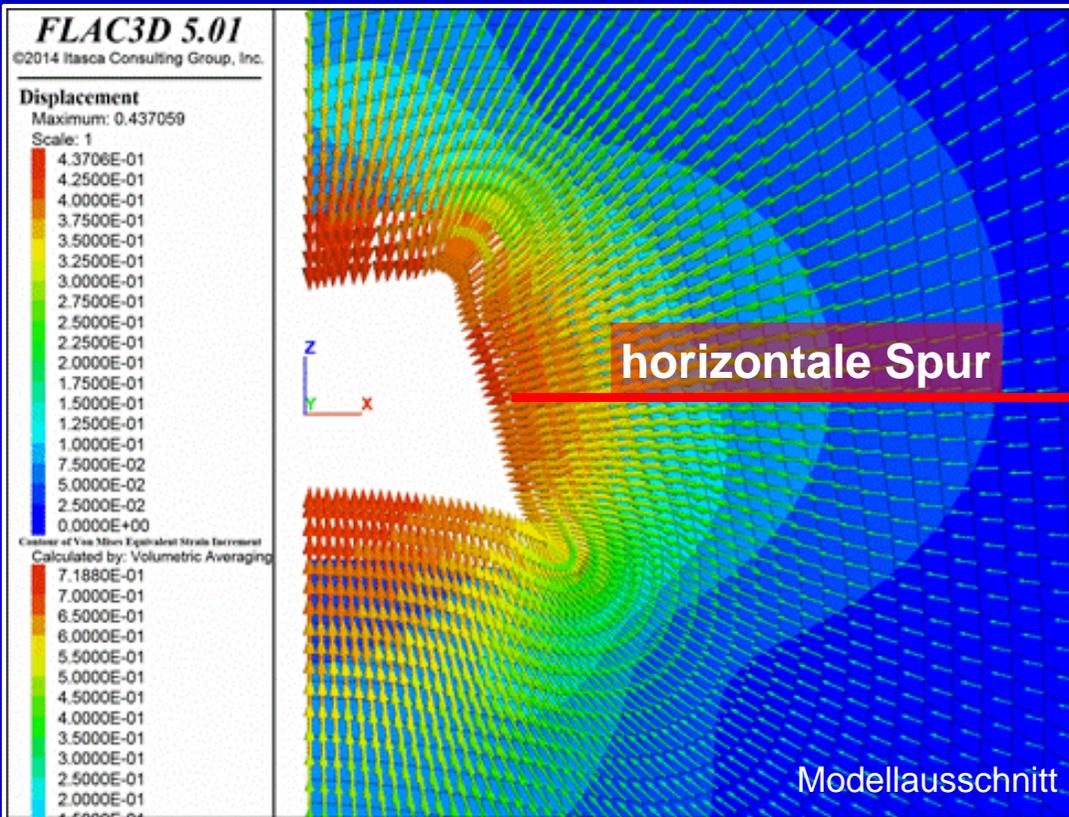
Gussstahlübbing: $\varnothing_{\text{in}} = 2,30 \text{ m}$, Wanddicke = 10 cm

Zwischenraum: Beton

Gesamtmodell (h x w x d)

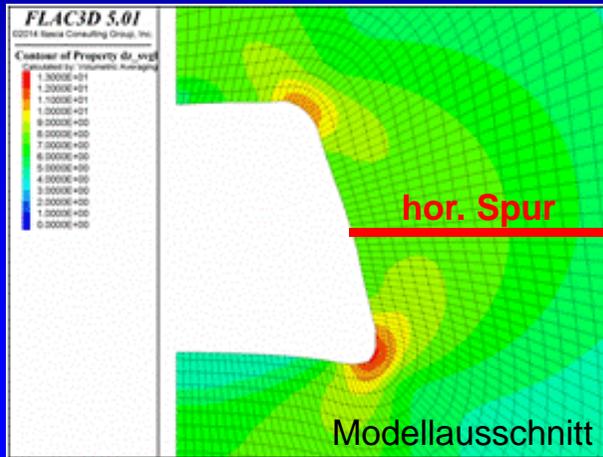
100 m x 50 m x 0.05 m

Verformung der offenen Strecke (Verschiebungen), 88 Jahre nach der Auffahrung

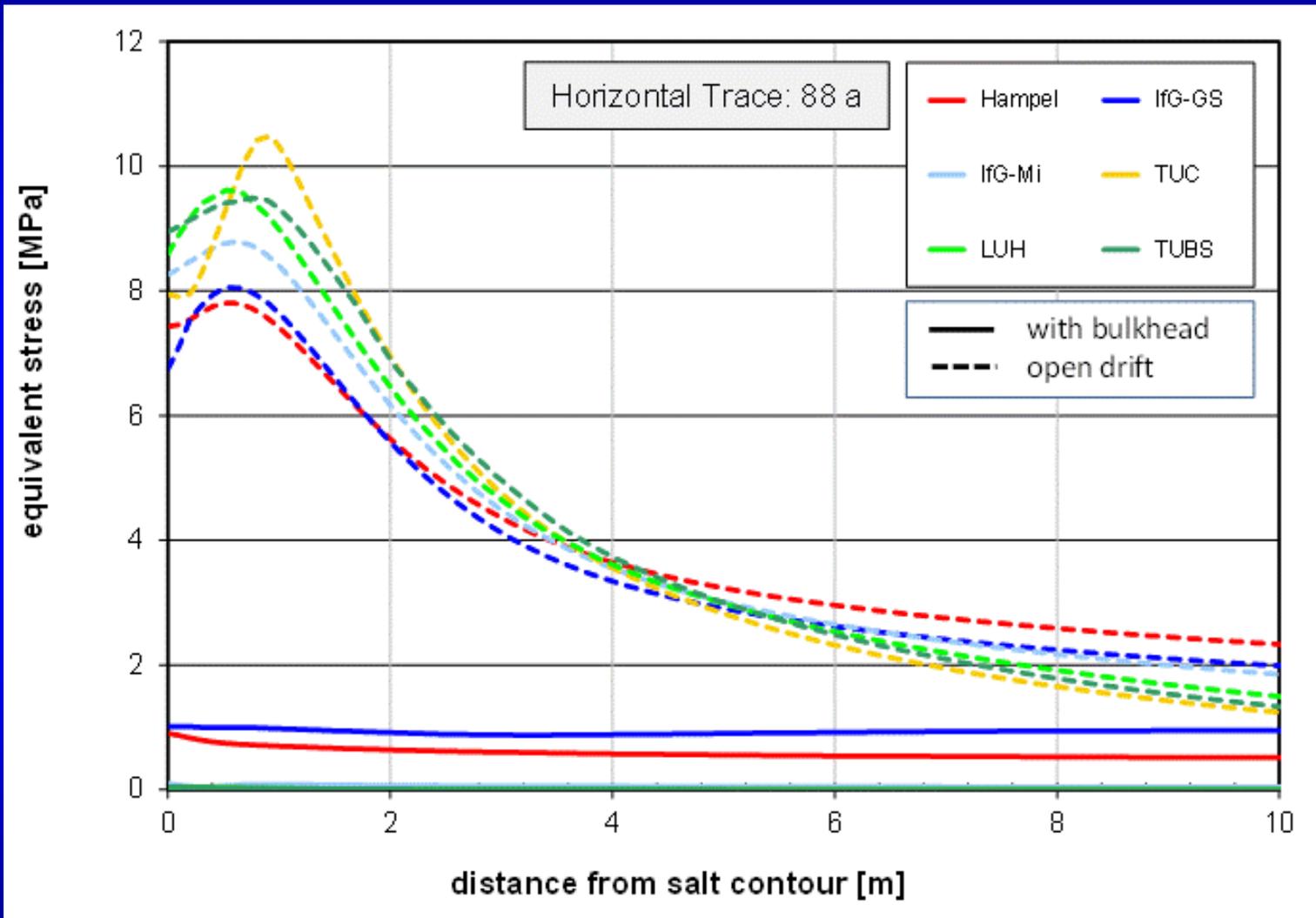
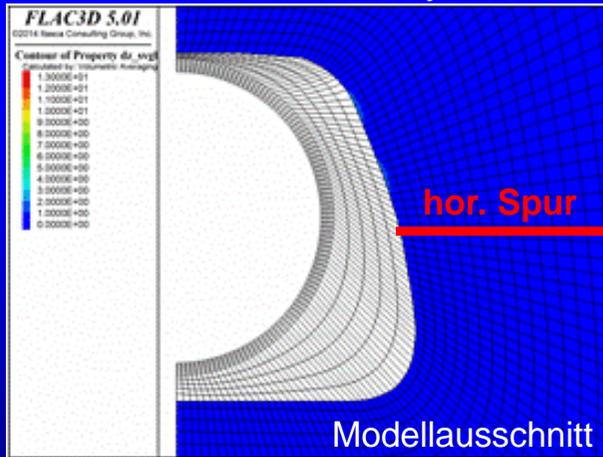


Vergleichsspannung, 88 Jahre nach der Auffahrung der Strecke = 85 Jahre nach Einbau des Damms

offene Strecke

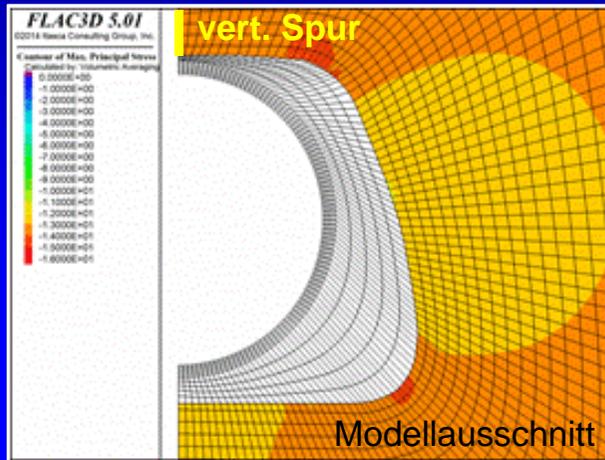


Strecke mit Dammjoch

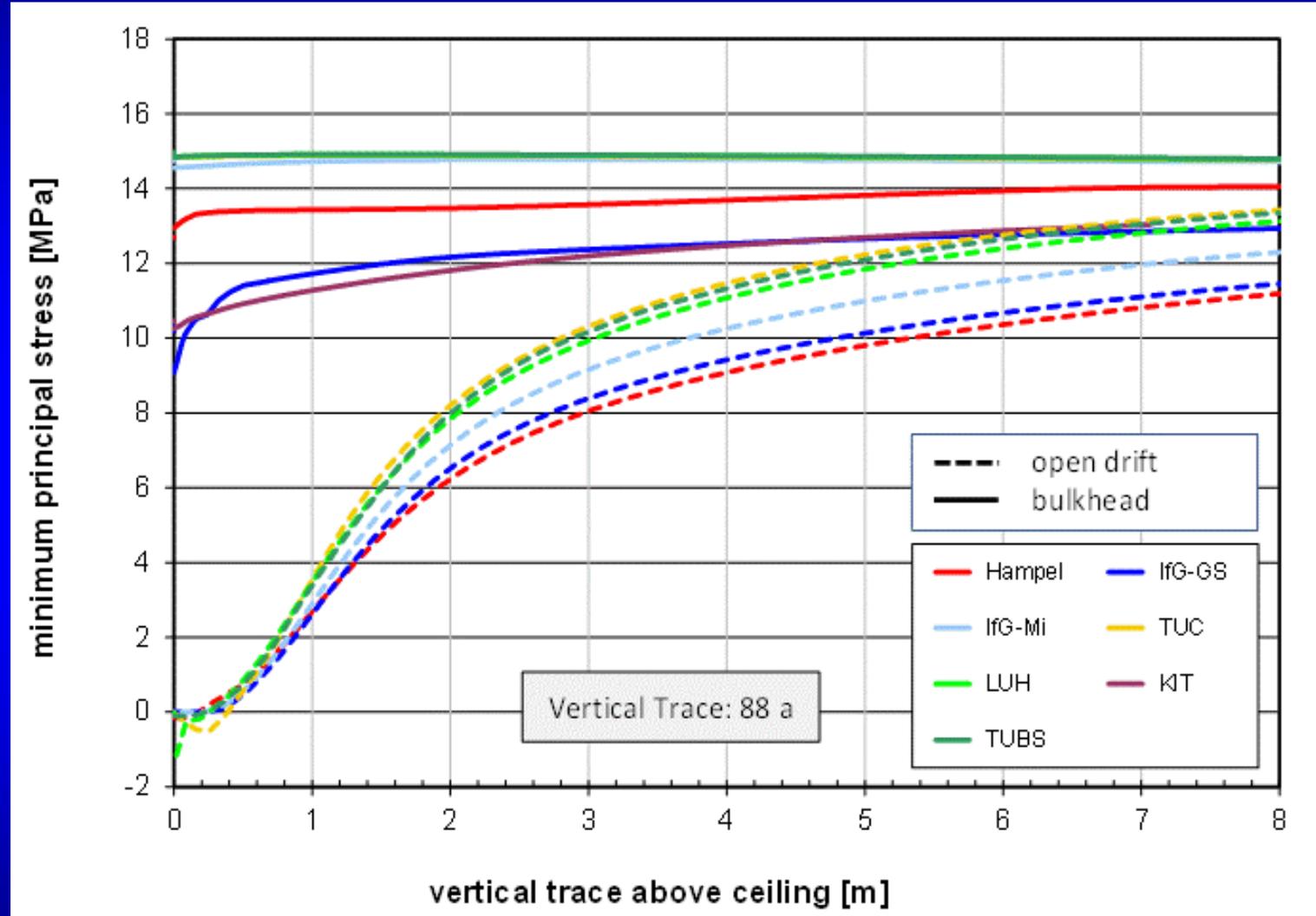
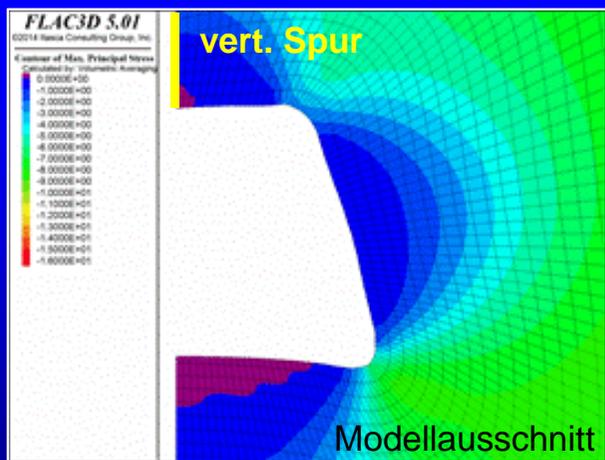


Minimale Hauptspannung, 88 Jahre nach der Auffahrung der Strecke = 85 Jahre nach Einbau des Damms

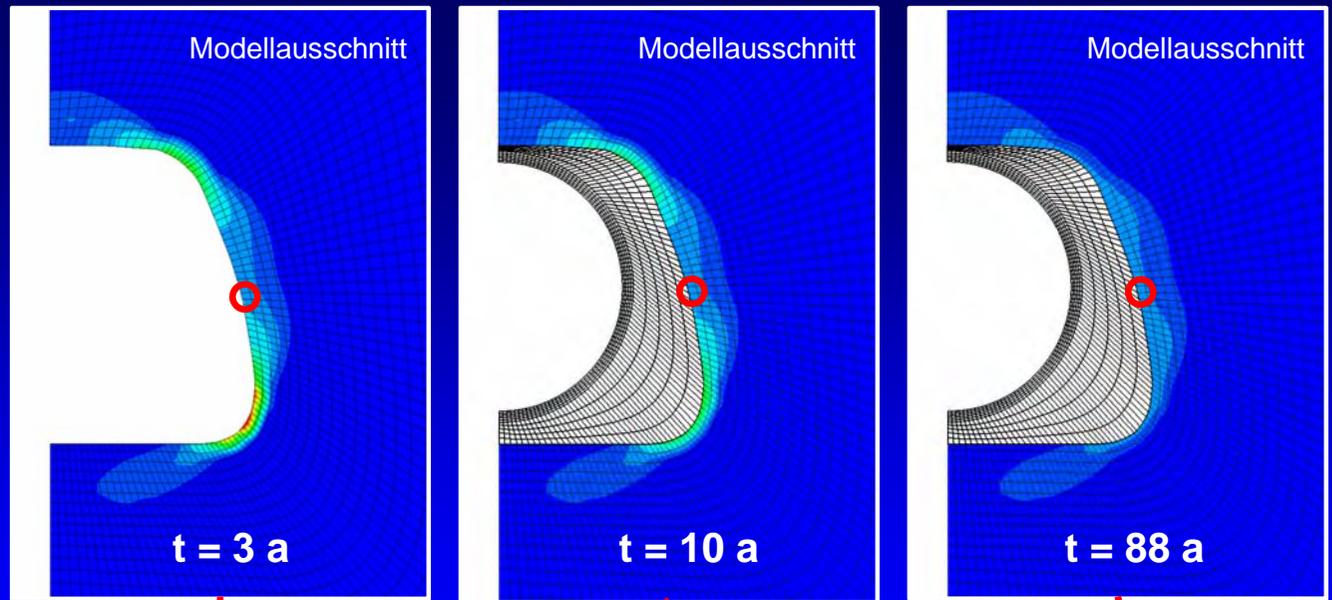
mit Dammjoch



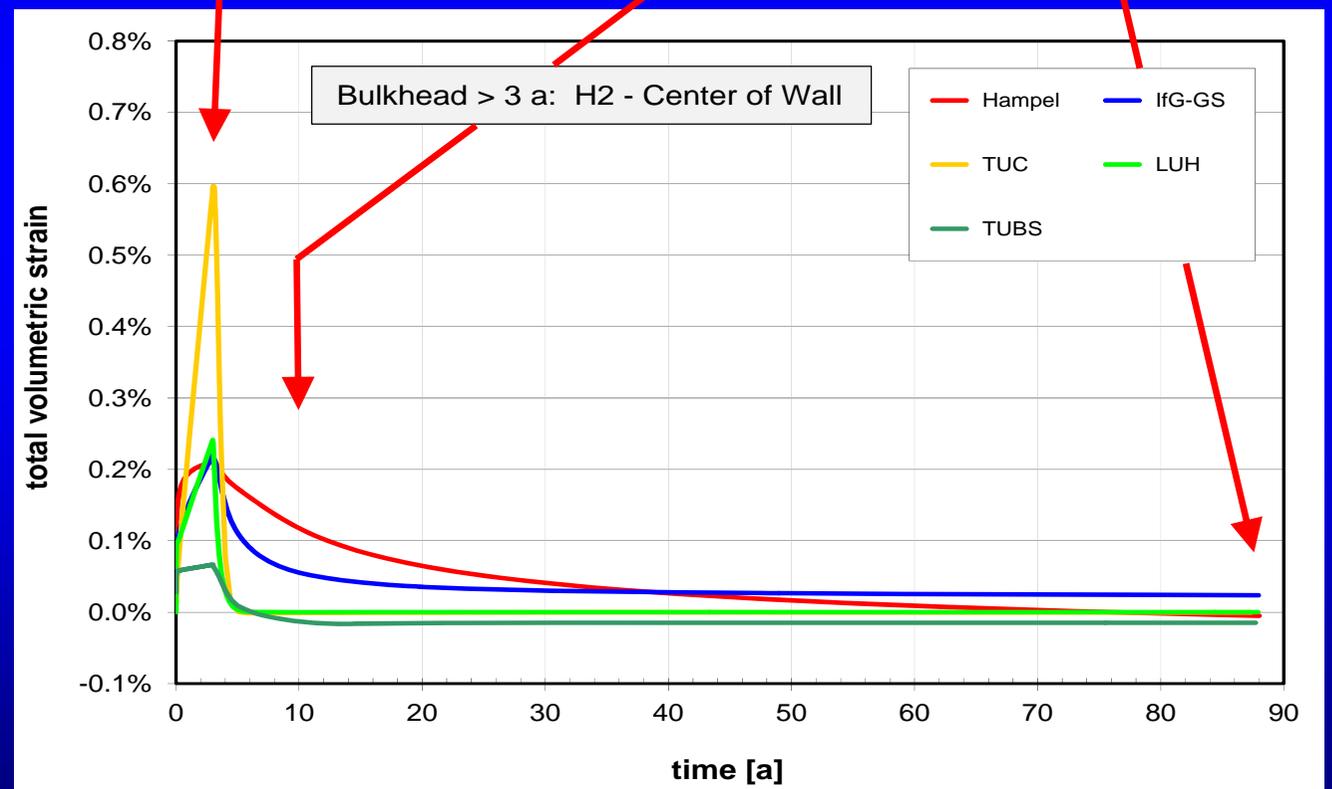
offene Strecke



Volumenverformung (Dilatanz)



Simulation 2:
 0... 3 a: offene Strecke
 3...85 a: mit Dammjoch



Zusammenfassung

Verbundprojekt III: Vergleich von Stoffgesetzen für das thermomechanische Verhalten von Steinsalz

1. Modellierung der Temperaturabhängigkeit der Verformung (Asse, WIPP)
2. Modellierung der Schädigungsrückbildung und Verheilung (Asse)

exper. Untersuchungen: systematische Kriech- und Festigkeitsversuchsserien
sowie Verheilungsversuche mit hoher Auflösung

Überprüfung & Vergleich der Stoffgesetze

1. Nachrechnungen der Kriech-, Festigkeits- und Verheilungsversuche, Bestimmung eines einheitlichen Kennwertsatzes der Modellparameter
2. Simulationen des Dammjochs in der Schachtanlage Asse II (88 a);
1) offene Strecke, 2) Strecke mit Dammjoch

- Die beteiligten Stoffgesetze beschreiben auch die Schädigungsrückbildung und Verheilung.
- Weitere Versuche und Weiterentwicklung der stoffgesetzlichen Beschreibung notwendig.

Entwurf, Stand 11/2014:

**Verbundprojekt IV zum Thermomechanischen Verhalten von Steinsalz:
Weiterentwicklung und Qualifizierung von Stoffgesetzen und Verfahren
zur Modellierung eines Endlagers für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle**

Untersuchung und gemeinsame Weiterentwicklung der Modellierung:

1. Schädigungsrückbildung und Verheilung
2. Einfluss von Zugspannungen
3. Einfluss von Grenzflächen im Steinsalz (Wechselagerung)
4. Verformungsverhalten bei kleinen Vergleichsspannungen

-> Laborversuche, mikrostrukturelle Untersuchungen, In-situ-Messungen, In-situ-Versuche(?)

-> Gemeinsame Weiterentwicklung der stoffgesetzlichen Beschreibung

-> Nachrechnung von Laborversuchen, Simulation von In-situ-Strukturen, Ergebnisvergleich

=> Validierung und Qualifizierung der Stoffgesetze und Verfahren für die Anwendung



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie

Verbundprojekt IV zum Thermomechanischen Verhalten von Steinsalz



Dr. Andreas Hampel
Scientific Consultant



Institut für
Gebirgsmechanik GmbH
Leipzig



TU Clausthal



Leibniz
Universität
Hannover



Technische
Universität
Braunschweig



Sandia
National
Laboratories



PTKA
Projektträger Karlsruhe
im Karlsruher Institut für Technologie

VIRTUS

Virtuelles Untertagelabor im Steinsalz

Karlsruhe, 26. November 2014

Ein gemeinsames Projekt von



IFF

Seite -209-

Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Vortragsgliederung

- VIRTUS Projektziele, Arbeitsprogramm und Partner
- Konzept und Einsatz von VIRTUS
- VIRTUS Funktionalität und Workflow
(geologisches Modell, Modellaufbereitung, Grubengebäude, Verschneidung, Modellexport, Import von Simulationsergebnissen, Visualisierung und Auswertung)
- VIRTUS Datenbasis, Schnittstellen und Architektur
- Aktueller Stand und Perspektive

VIRTUS Projektziele

1. Bereitstellung einer **Software-Plattform** für die

- Schnelle und effektive **Planung und Prüfung von Endlagerkonzepten** mit Hilfe eines „virtuellen Untertagelabors/Endlagers“ in repräsentativen geologischen Formationen
- Unterstützung bei der Modellerstellung und anschauliche **3D-Visualisierung der Ergebnisse numerischer Analysen** komplexer sicherheitsrelevanter Prozesse im Untertagelabor/Endlager
- Bereitstellung filmischer Darstellungen für die **Öffentlichkeitsarbeit**

2. Bereitstellung der für die numerische Simulationen benötigten thermisch-hydraulisch-mechanischen (THM) Parameterdaten über eine qualitätsgesicherte **Datenbasis**

VIRTUS Arbeitsprogramm

1. Entwicklung der VIRTUS Softwareplattform
2. Erstellung der Datenbasis für Prozess-Simulationen mit Auswertung der vorhandenen Primärliteratur
3. Service-orientierte Architektur
4. Erarbeitung des geologischen Standortmodells
5. Prototypische Simulation ausgewählter Experimente zur Strecken- und Bohrlochlagerung
6. Abschlussbericht und Präsentation

Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

VIRTUS Mitwirkende

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH

- T. Rothfuchs, K. Wieczorek, D. Buhmann, H. Kull, R. Mieke, H. Moog

Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR)

- J. Behlau, U. Heemann, C. Dresbach

DBE TECHNOLOGY GmbH

- C. Müller, M. Jobmann, C. Lerch, M. Linkamp, Sha Li, E. Kuate Simo

Fraunhofer Institut für Fabrikbetrieb und –automatisierung

- E. Blümel, S. Masik, M. Raab, R. Schruppf, M. Danneberg

BICAD (D. Schlüter), Institut Faust Fritsche Berlin

Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Konzept von VIRTUS

■ Komponenten:

Software Plattform zur Visualisierung von

- Geologie
- Grubengebäuden
- THM Simulationen

Datenbasis für Materialparameter

- Wirtsgestein
- geotechnische Einbauten
- Abfallbehälter

Input/Output
Schnittstellen

zu Process
Level Codes
(PLC)

■ Vorteile:

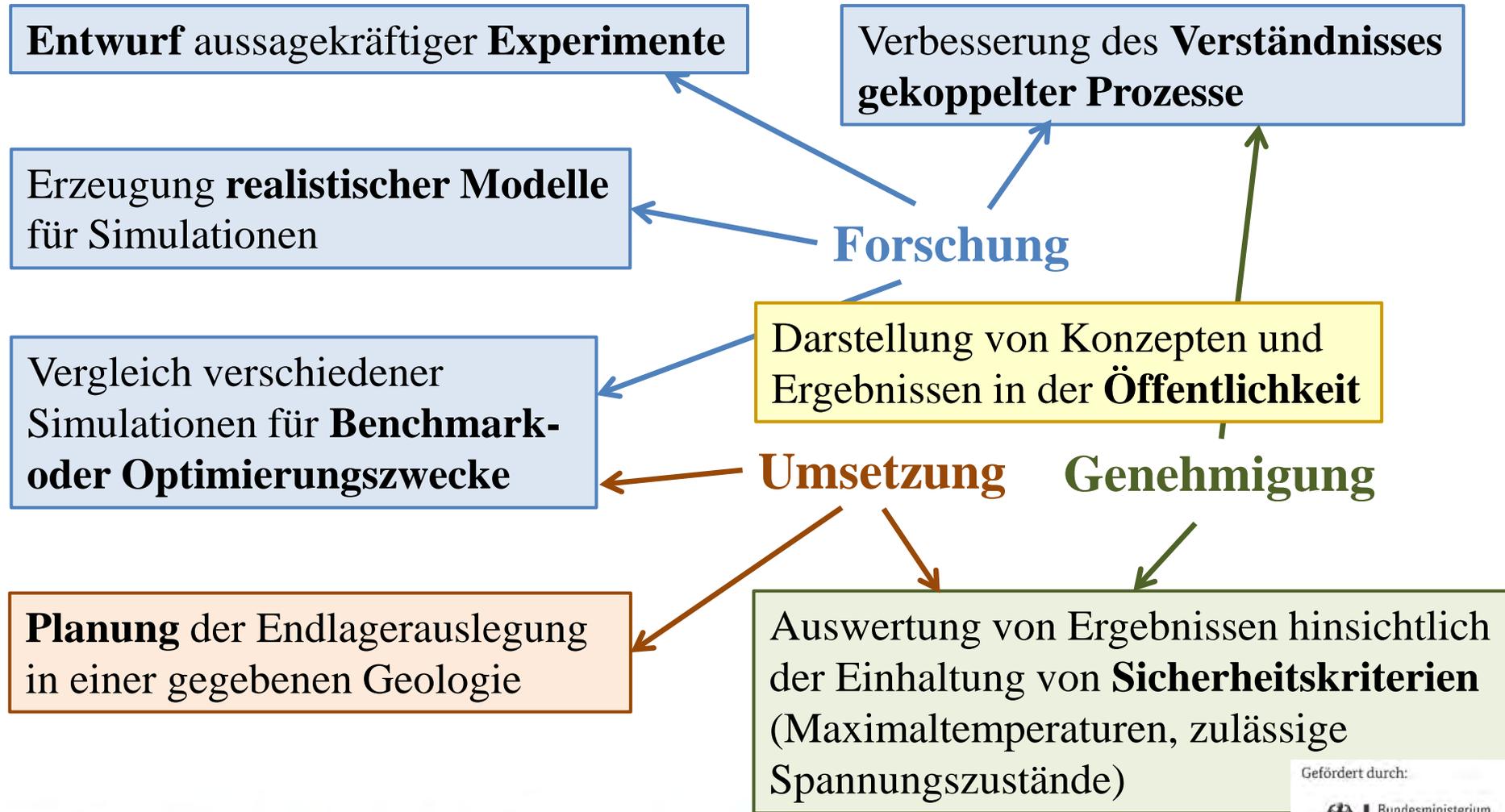
- Darstellung von URL oder Endlager und darin ablaufenden Prozessen im Kontext
- Bereitstellung konsolidierter Daten zum Materialverhalten
- Vereinfachung von Planung/Modellerstellung/Präsentation

Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Einsatz von VIRTUS



Gefördert durch:

aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

VIRTUS Funktionalität & Workflow

Import, Prüfung und Bearbeitung des **geologischen Modells**

Generierung oder Import des **Grubengebäudes**

Verschneiden der Modelle

Export von Modell und Materialdaten **an Process-Level Code**

FE Netzgenerierung und Prozess-Simulation (außerhalb von VIRTUS)

Import und **Visualisierung** der Simulationsergebnisse

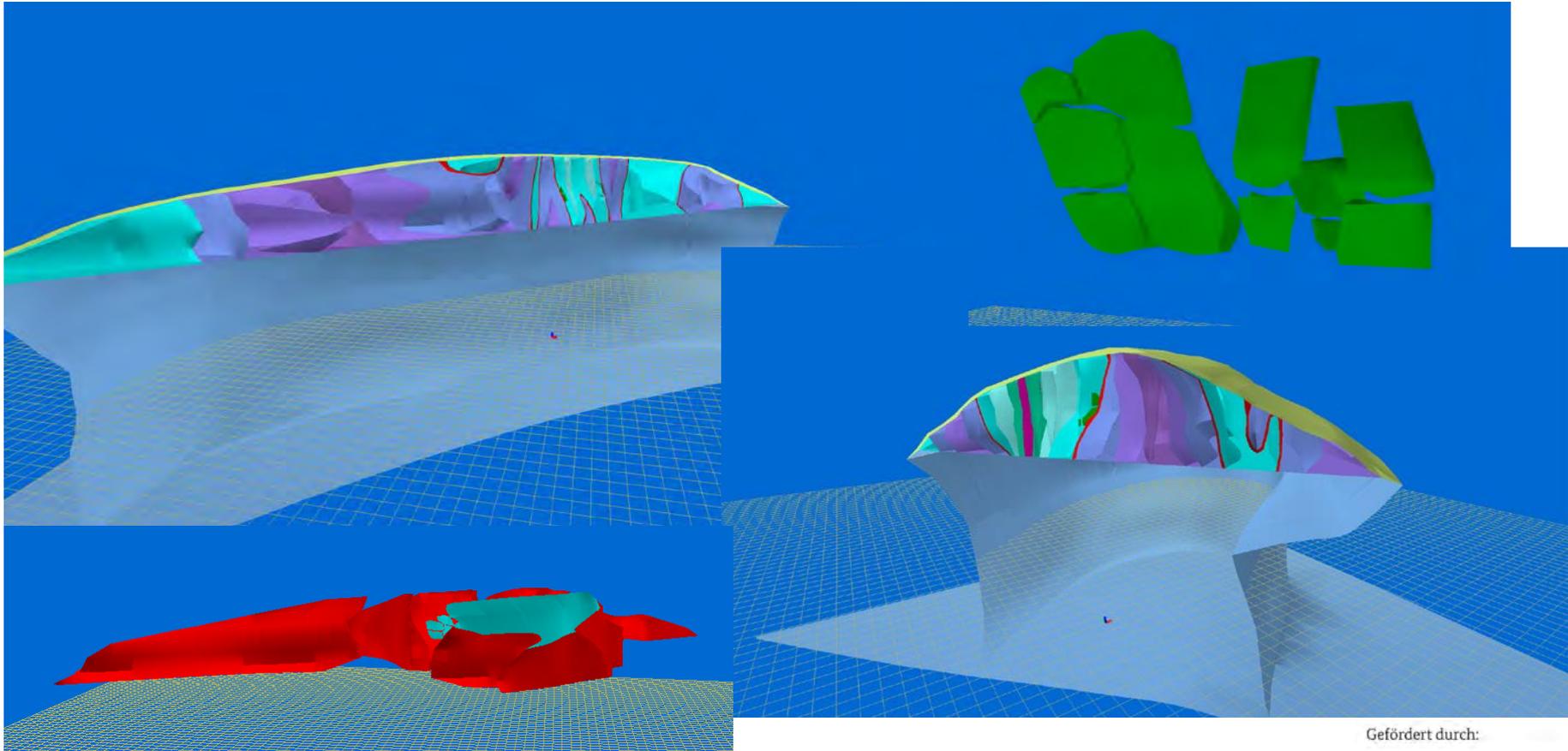
Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Geologie: Virtueller Salzstock

- Der „Standort VIRTUS“: ein synthetisches geologisches Modell



Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Geologie: Geometrie-Aufbereitung

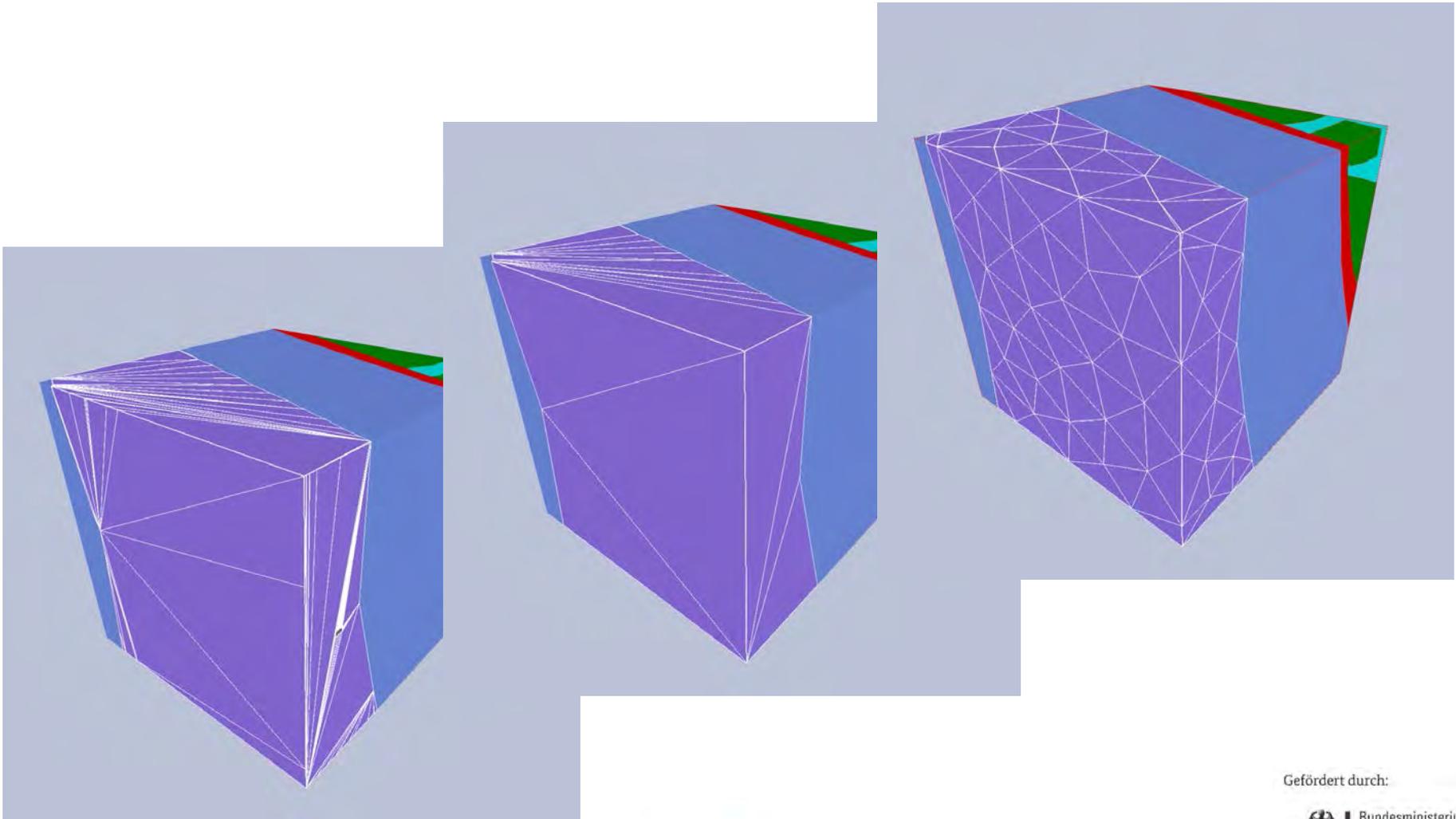
- Das geologische Oberflächenmodell muss verschiedene Anforderungen erfüllen, um von PLC Netzgeneratoren verarbeitet werden zu können
 - Geschlossenheit aller geologischen Körper
 - Durchdringungsfreiheit geologischer Körper
 - Flächenverhältnis großer und kleiner Oberflächendreiecke
 - Innenwinkelverhältnis der Dreiecke
- Eine Automatisierung der Aufbereitung ist erforderlich
 - Entfernung von Nulldreiecken
 - Gleichrichtung der Flächennormalen (zur besseren Visualisierung)
 - Vereinfachung und Regularisierung des Oberflächennetzes

Gefördert durch:



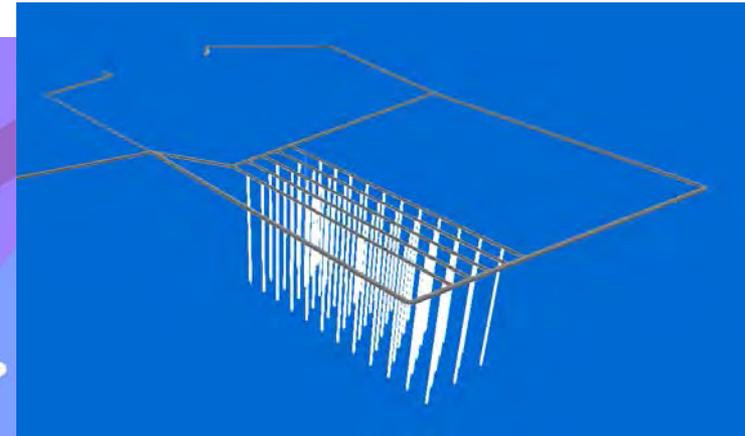
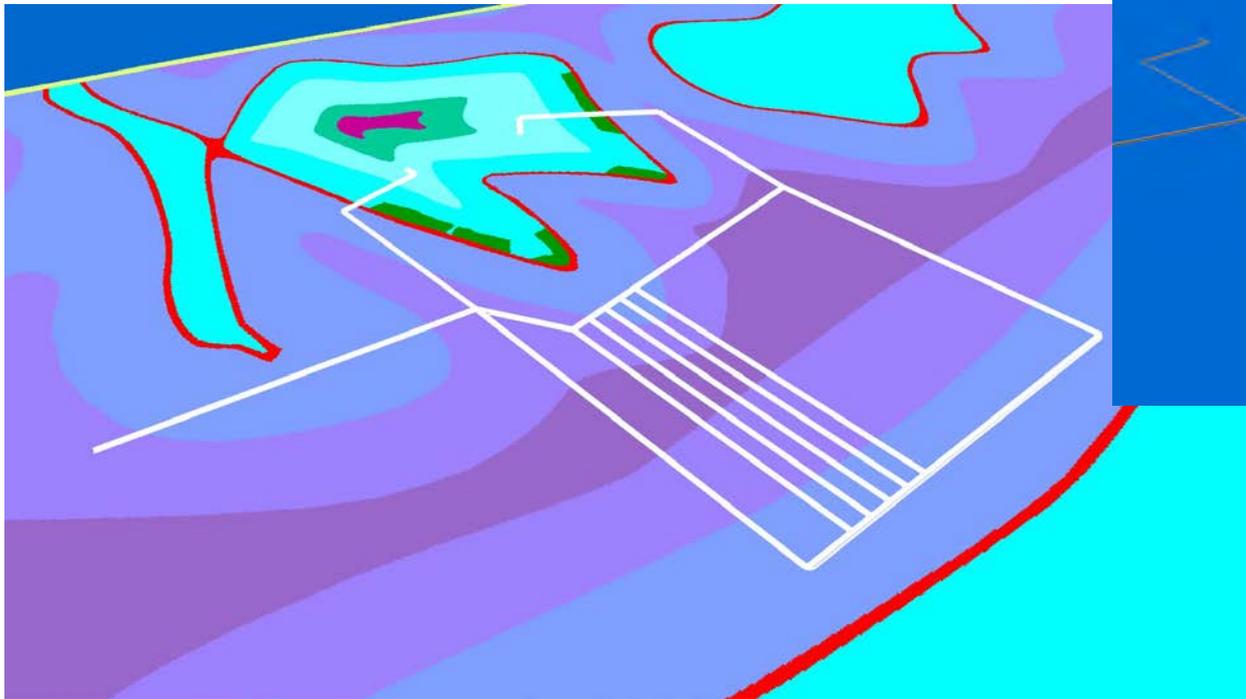
aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Geologie: Geometrie-Aufbereitung



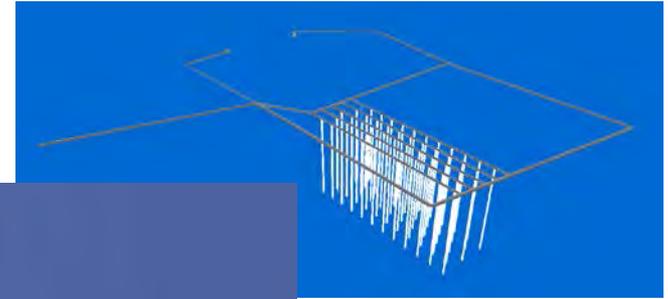
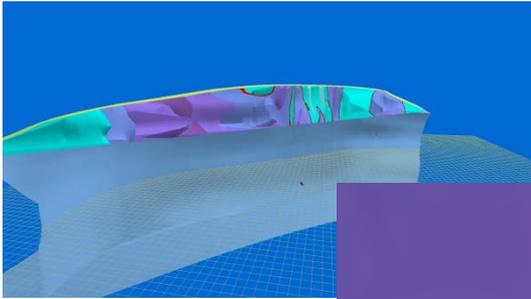
Grubengebäude

- Strecken, Schächte und Bohrlöcher können mittels vordefinierter Komponenten oder benutzerdefiniert erzeugt werden
- Import vorhandener Grubenmodelle ist ebenfalls möglich



Verschneiden von Geologie und Grube

- Aus den unabhängigen geometrischen Modellen von Geologie und Grubengebäude wird ein gemeinsames Oberflächenmodell erzeugt



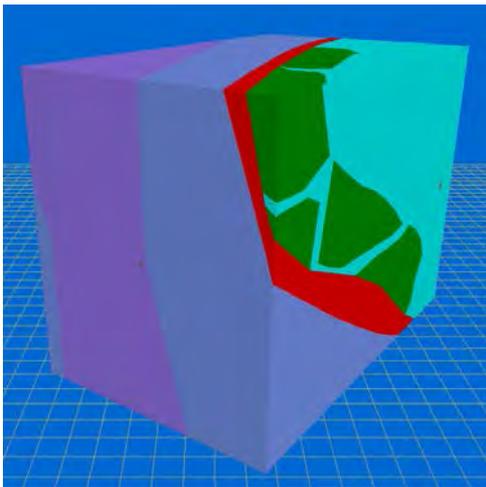
Gefördert durch:



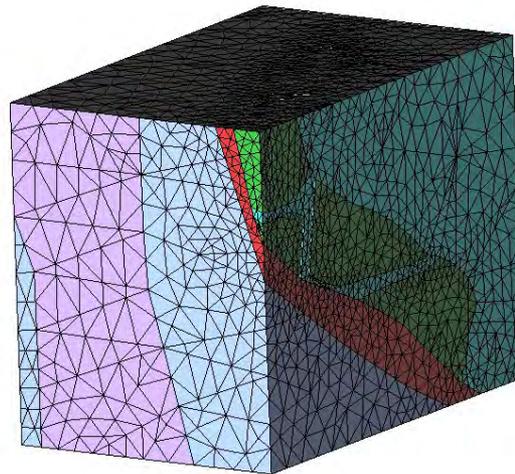
aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Modellexport und Vernetzung

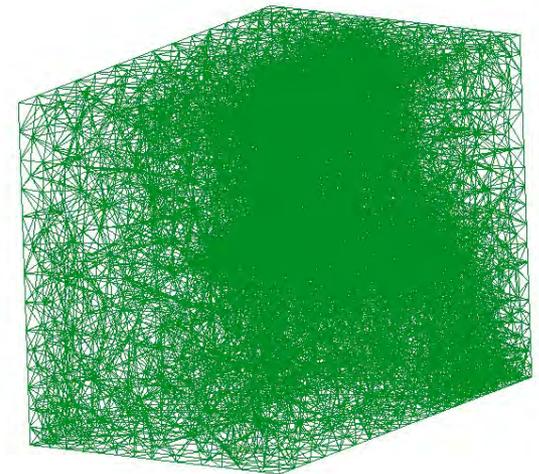
- Beliebige quaderförmige Ausschnitte des Modells können für den Export definiert werden (verschiedene Formate sind möglich)
- FE Vernetzung erfolgt durch externe Netzgeneratoren



VIRTUS Modellausschnitt



FE-Netz (GiD) in verschiedener Darstellung



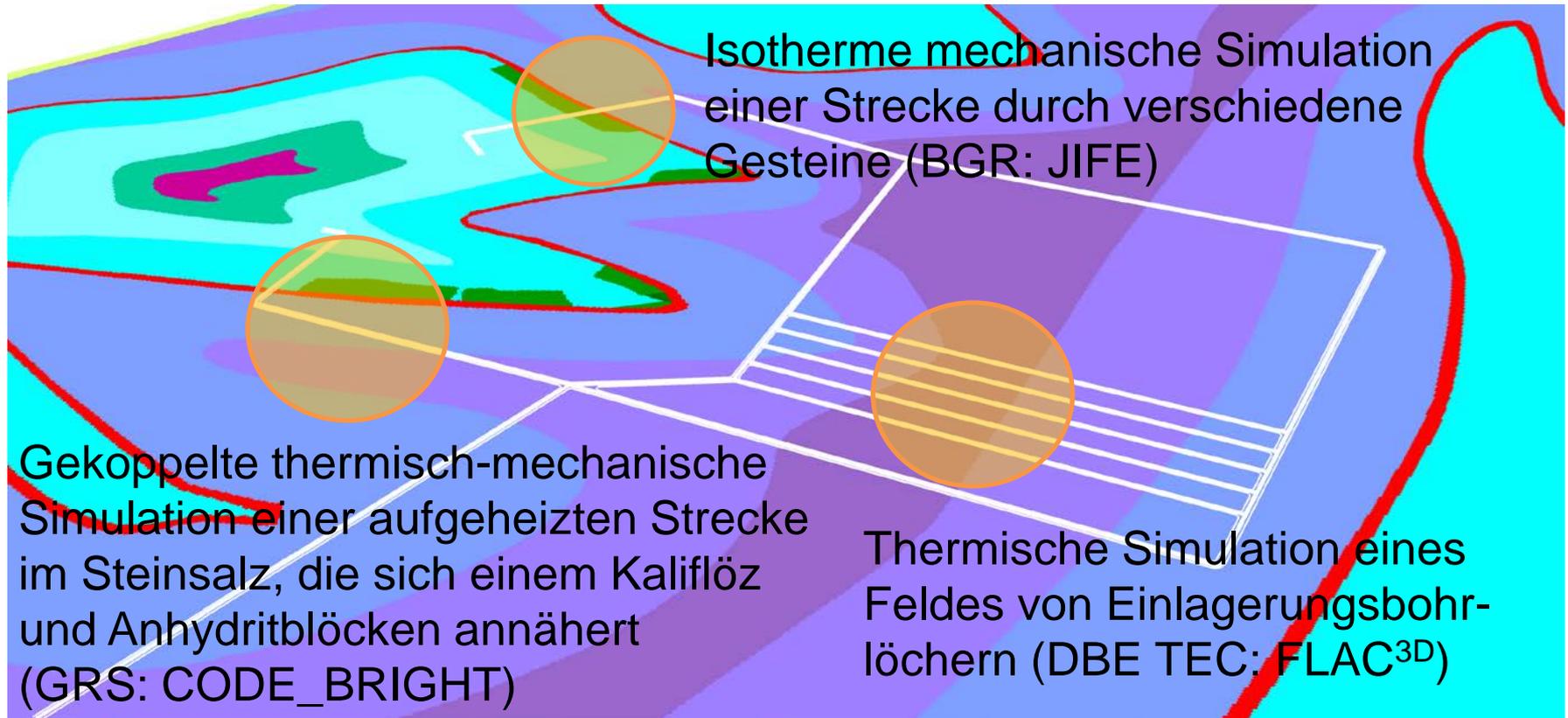
Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Prozess-Simulation

- Simulation von 3 Demonstrationsexperimenten

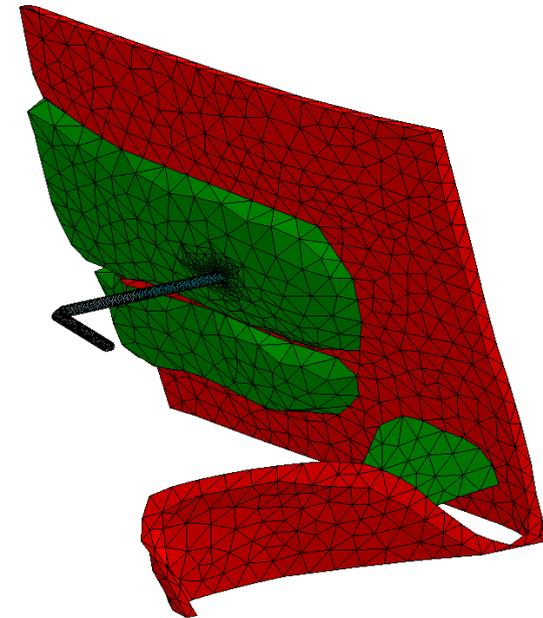
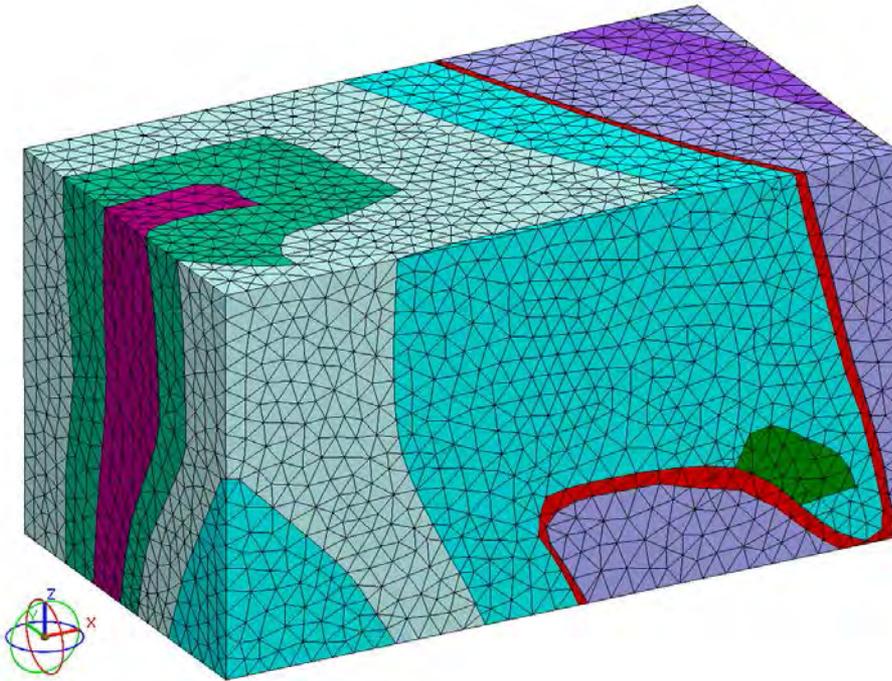


Gefördert durch:



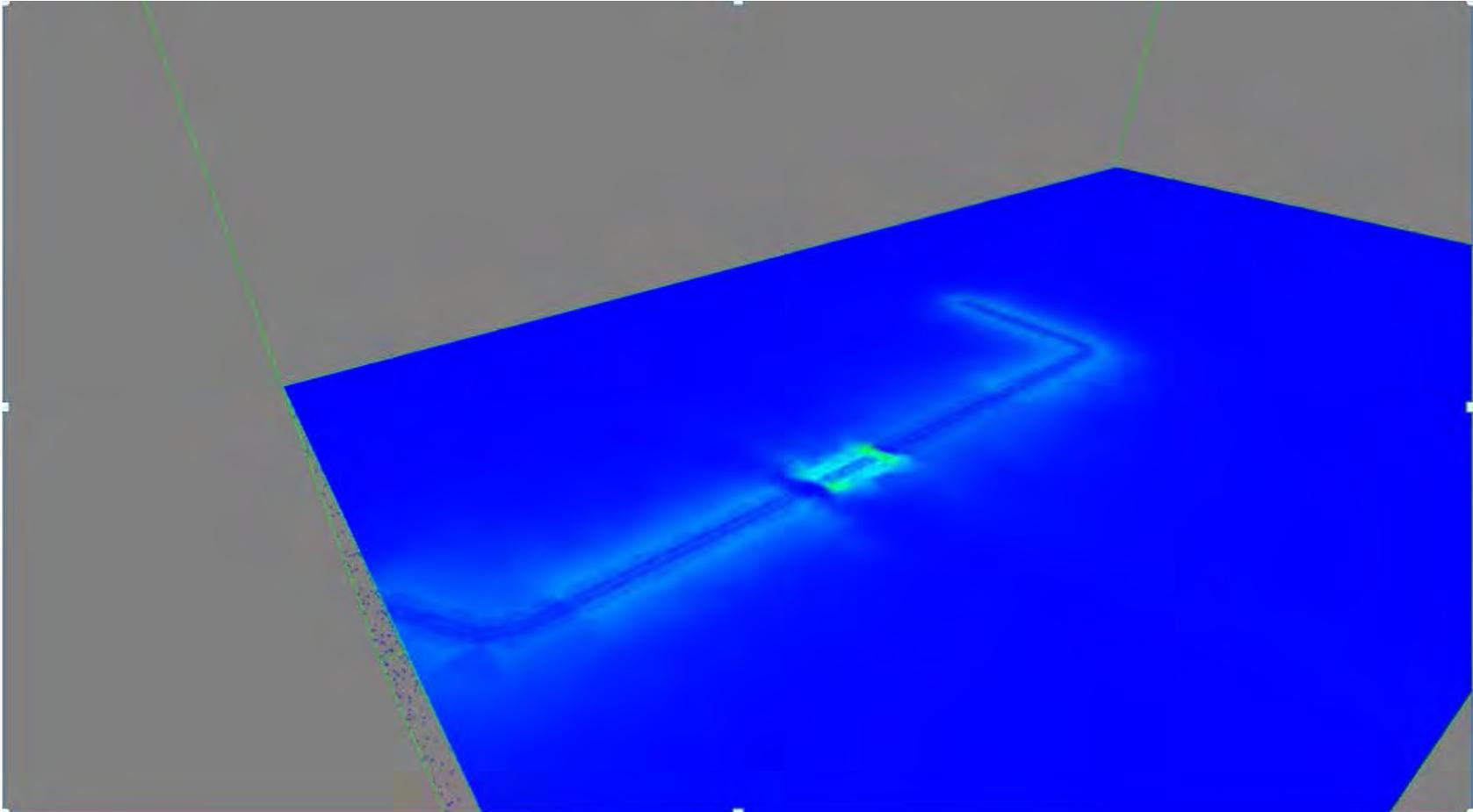
aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Isotherme Strecke: Modell



:h:

Isotherme Str.: Deviatorspannung

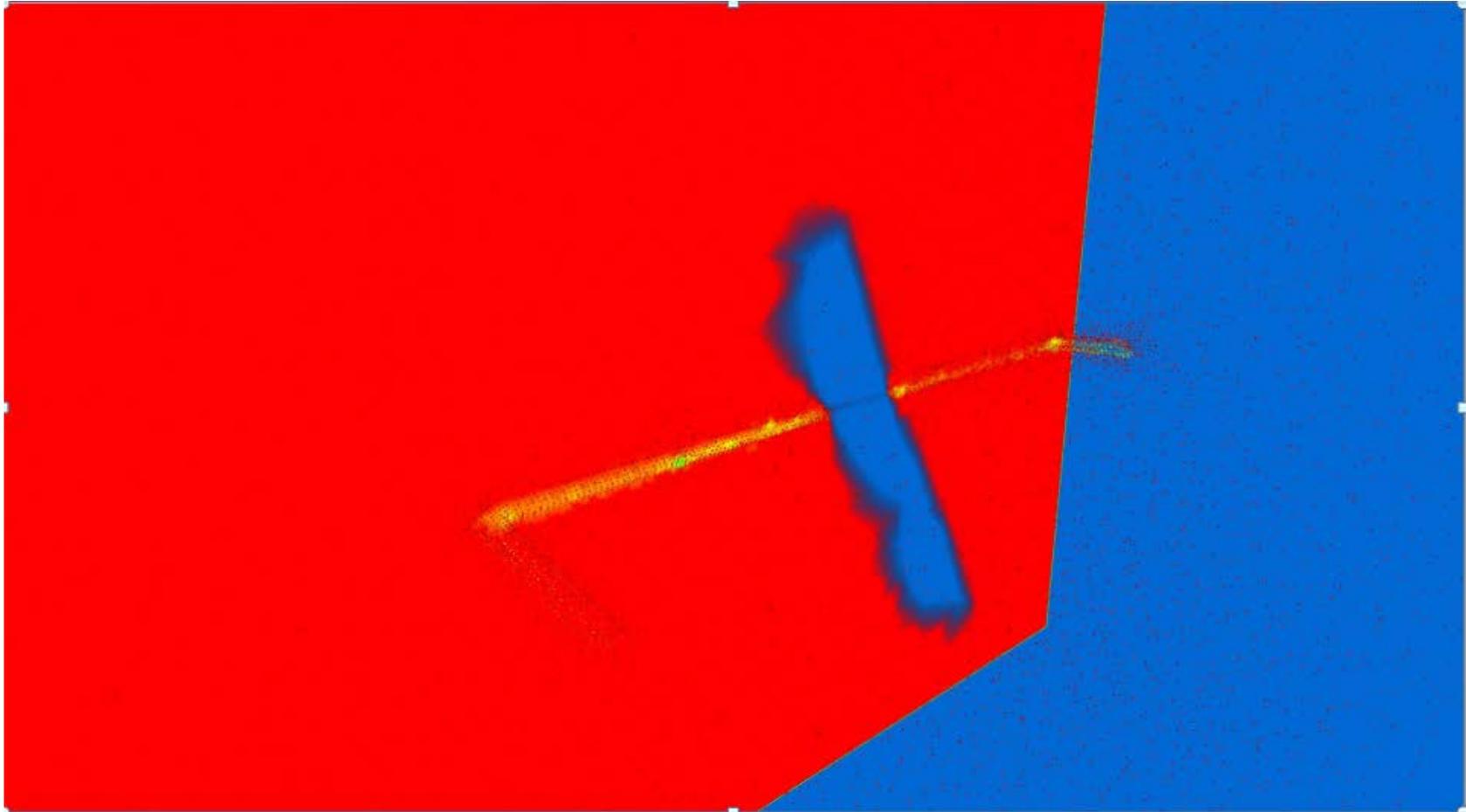


Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Isotherme Str.: Volumenkompaktion

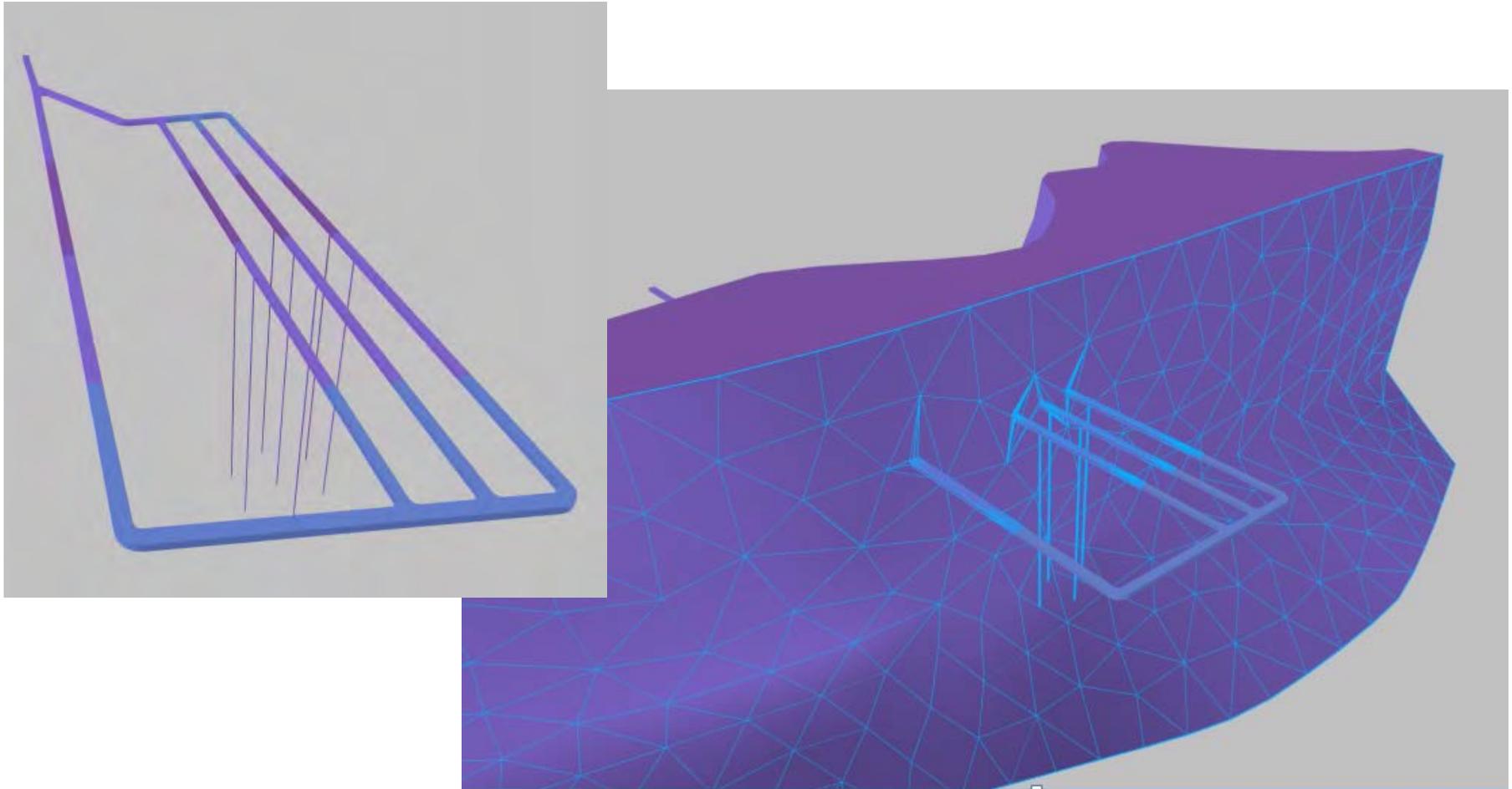


Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

EL-Bohrlöcher: Modell

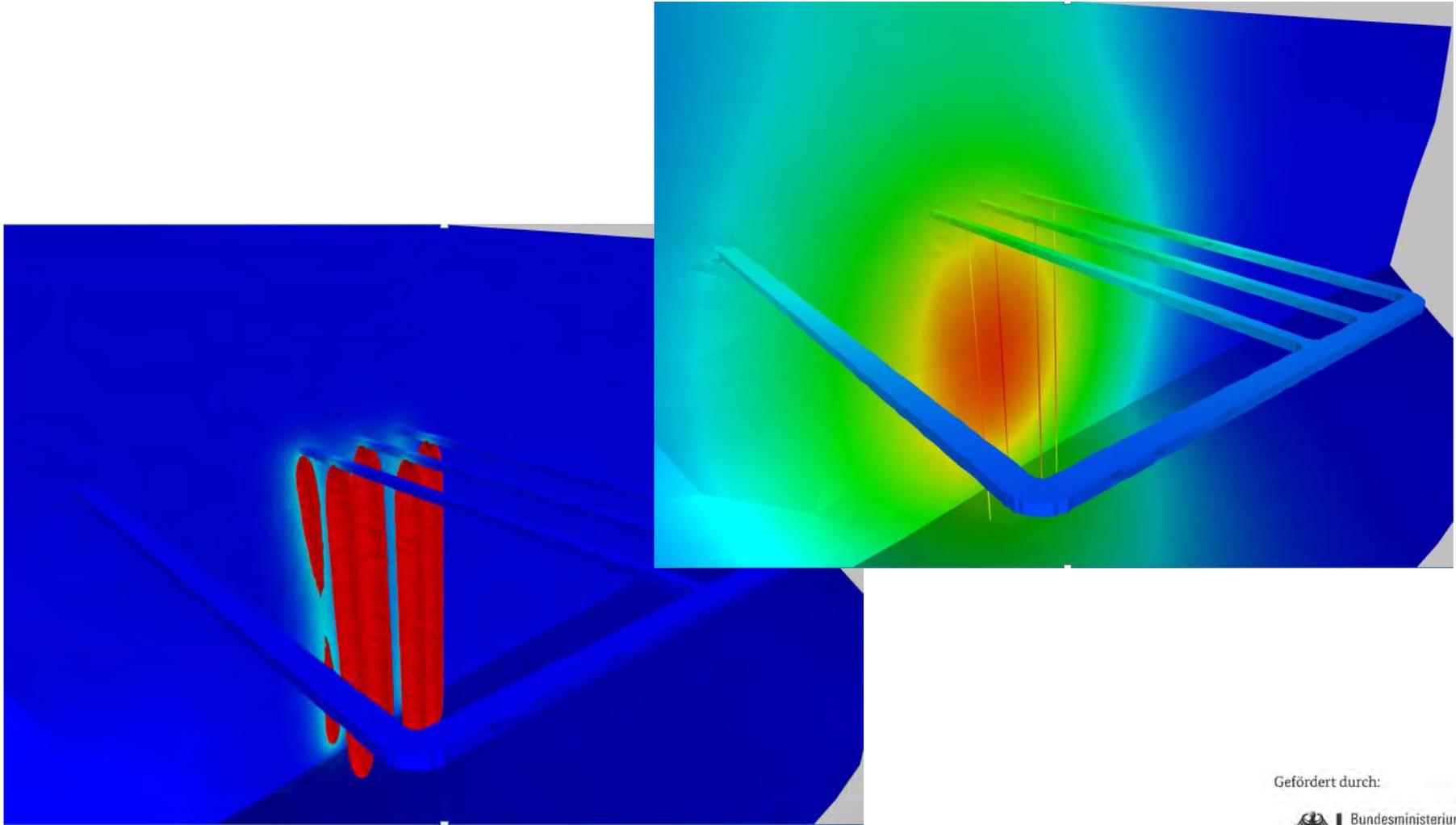


Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

EL-BLs: Temperaturentwicklung

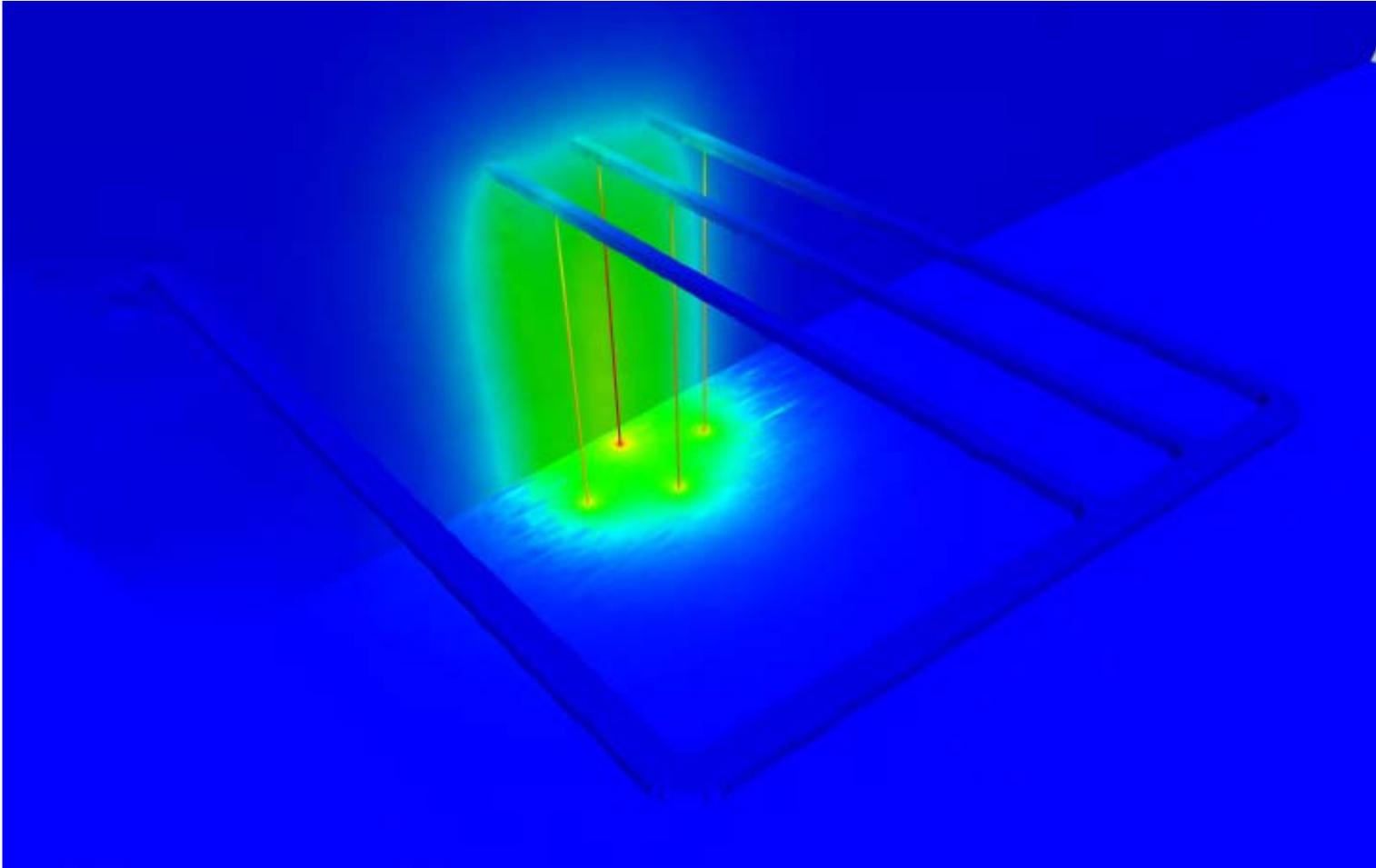


Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

EL-BLs: Temperaturverteilung

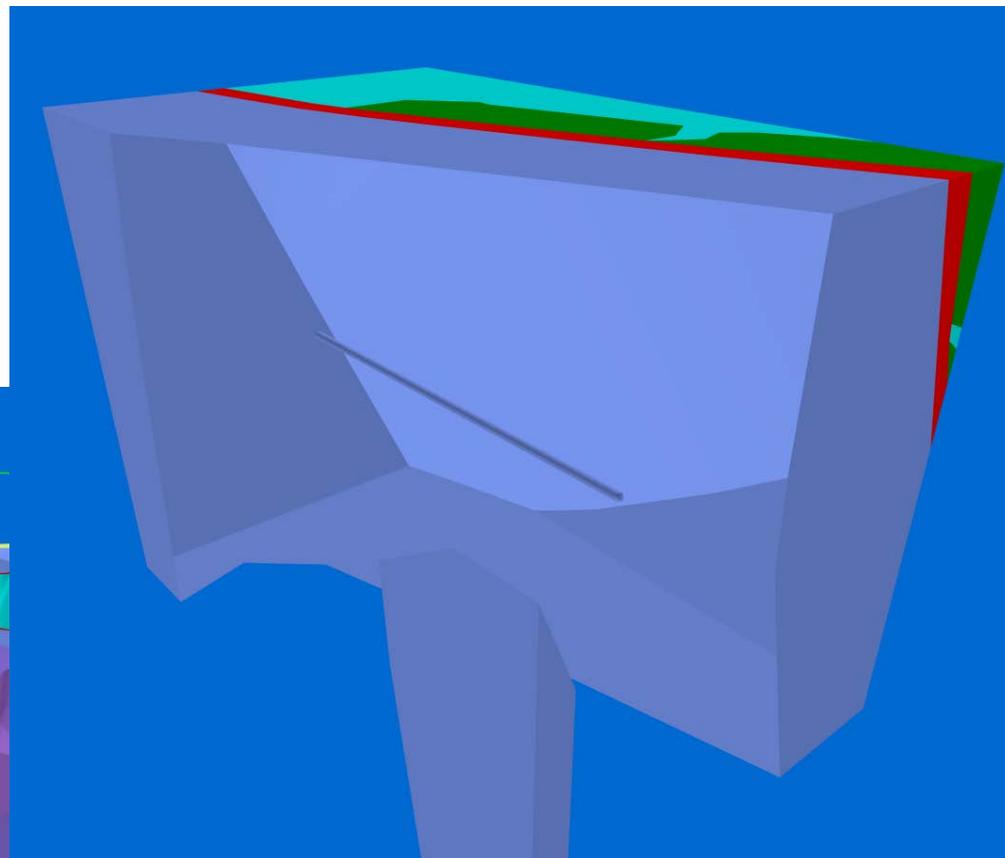
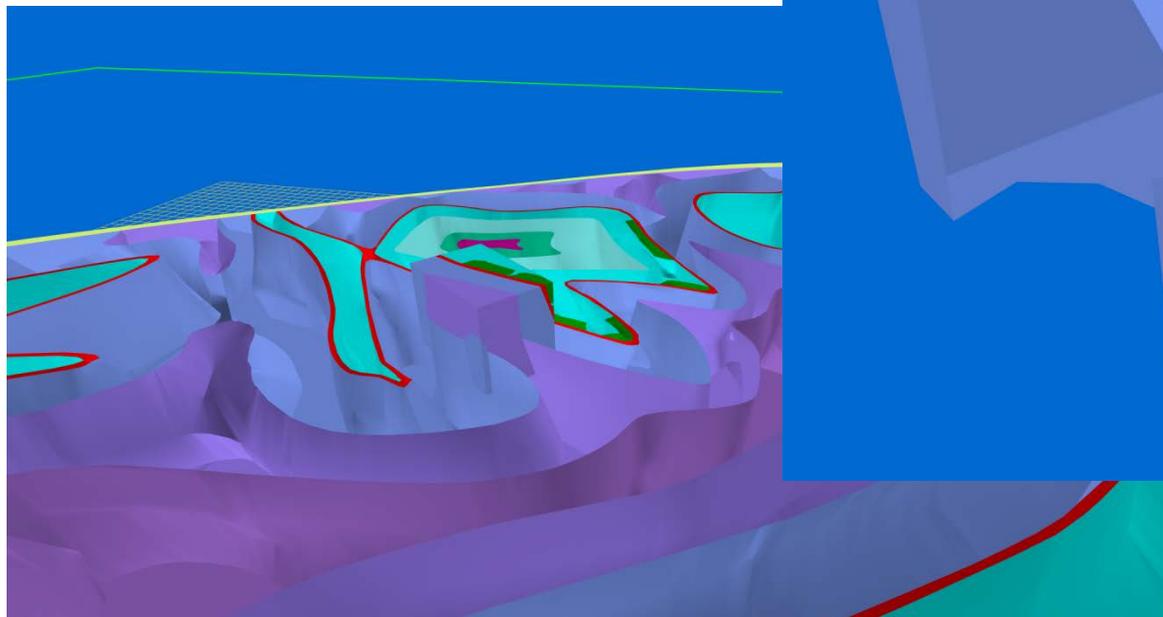


Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Einlagerungsstrecke: Modell

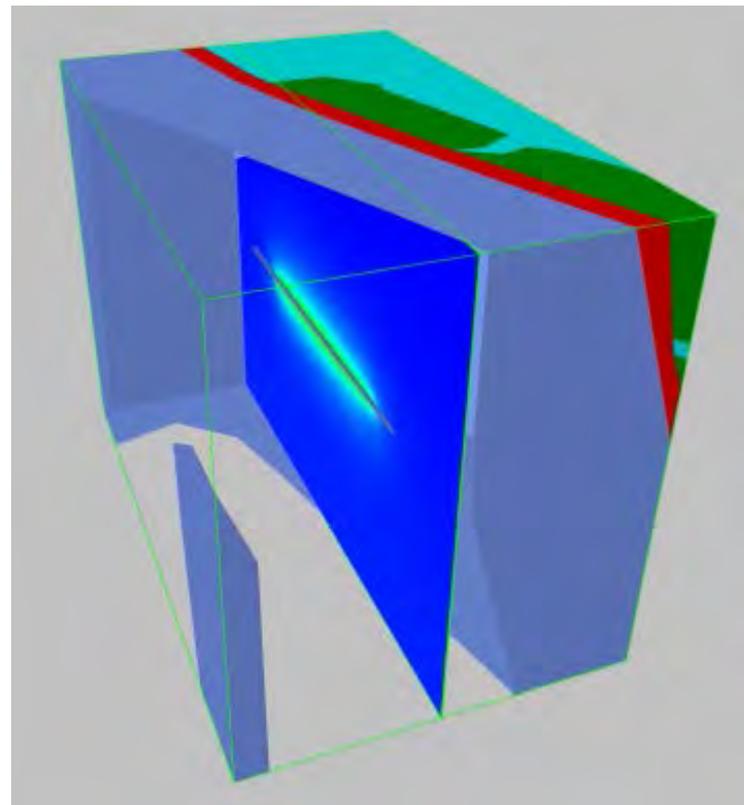
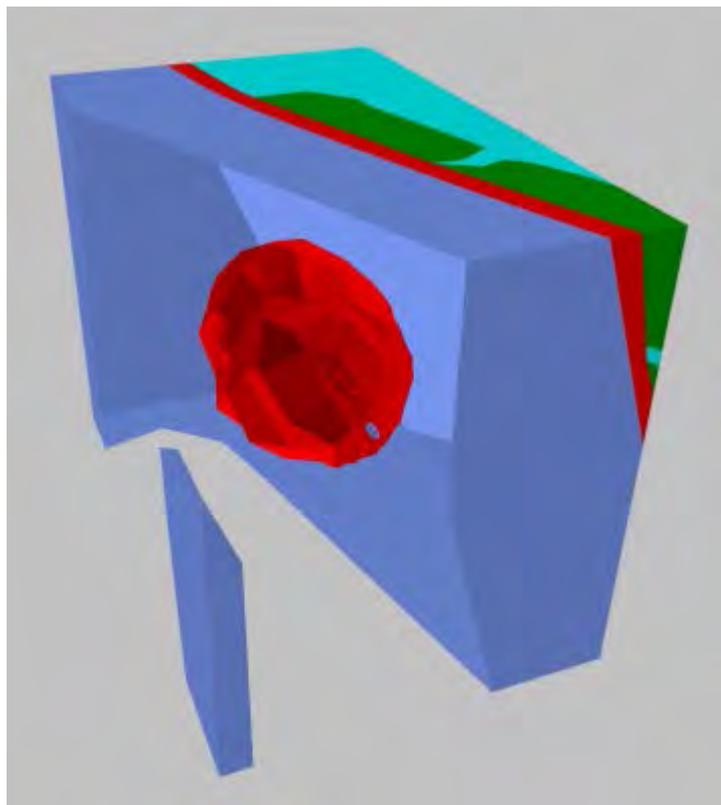


Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Einlagerungsstrecke: Temperatur



Einlagerungsstrecke: Porosität

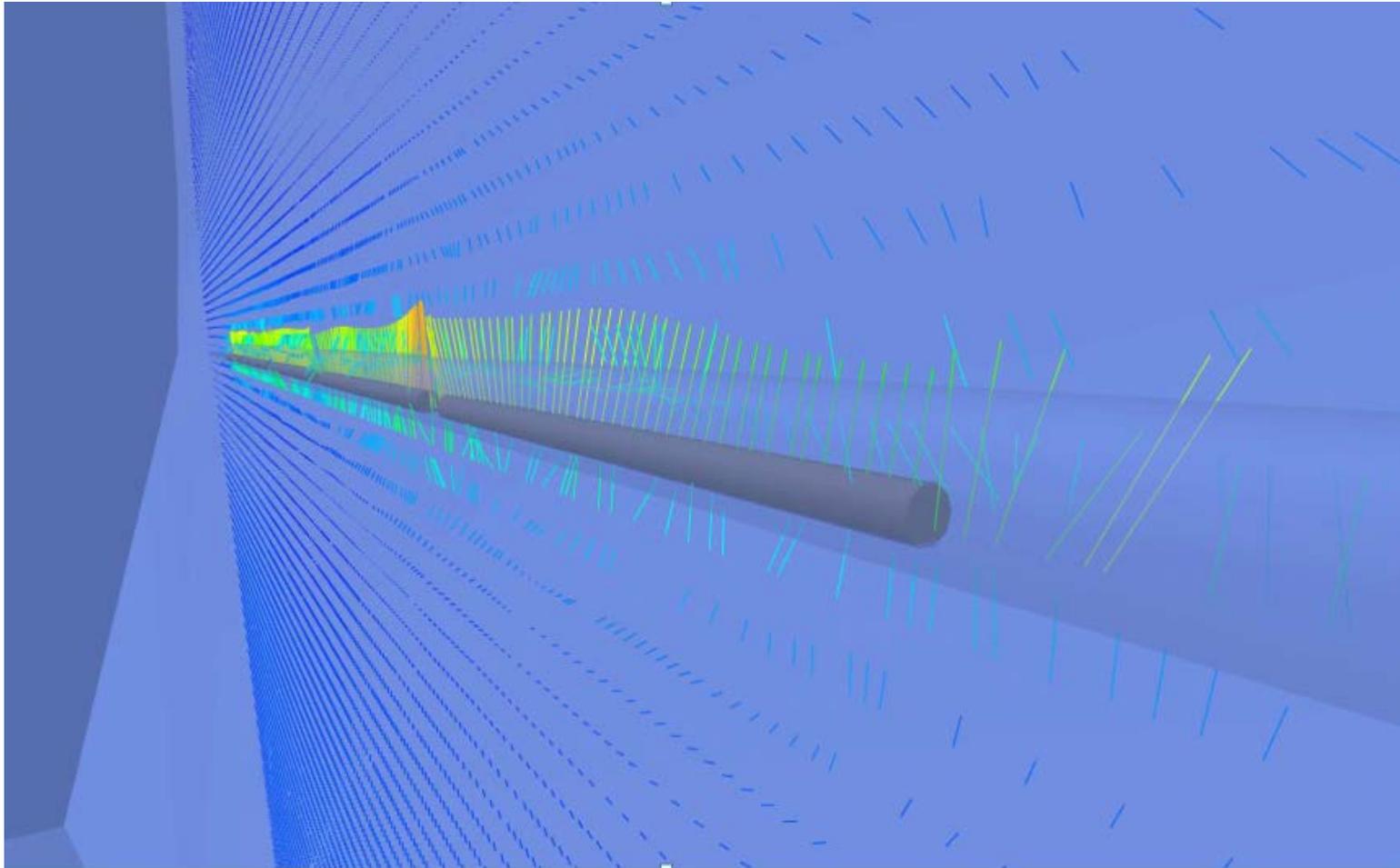


Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Einlagerungsstrecke: Deformation



Gefördert durch:



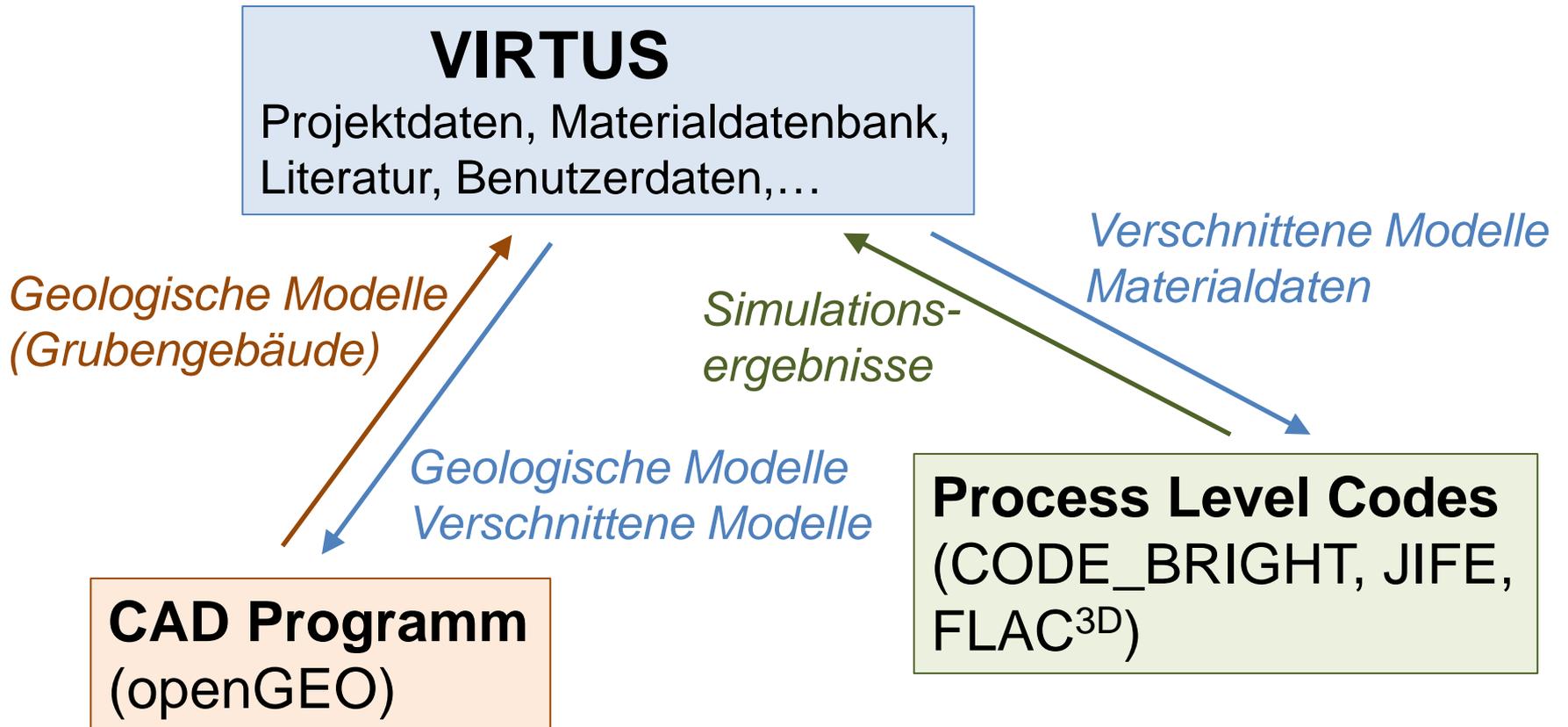
aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Materialdatenbank

- Auswertung von Berichten aus über 30 Jahren Endlagerforschung in Steinsalz
- Daten zu THM-Eigenschaften von Wirtsgestein und technischen Barrieren werden bewertet und “best-estimate” Werte in einer Expertengruppe vereinbart
- Daten und Auswerteprotokolle werden in der VIRTUS Datenbank abgelegt

	
Projekt:	Virtuelles Untertage-labor im Steinsalz
Kurztitel	VIRTUS
Thema:	Literaturlauswertung
Standort	Gorleben
Material:	Salzgesteine (vorwiegend) Anhydrit Kalialz Salzton
Datenblatt:	BE_01.docx
Parameter:	Spezifische Wärmekapazität
Anlage 01 Protokolle Best-Estimate-Wert (BEW) Anlage 02 Begründung	
Bearbeiter:	Christian Müller
Datum:	2013-05-17
2012-06-20; rev00	

VIRTUS Datenaustausch



Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses des Deutschen Bundestages

VIRTUS Schnittstellen

```
<?xml version="1.0" encoding="UTF-8"?>
<virtus xmlns:xsi="http://www.w3.org/2001/XMLSchema-instance"
  xsi:noNamespaceSchemaLocation="E:\Jife\JIFE-Folder\beta-JIFE\Jife-4.1.2-3027\virtus-0.2.xsd">
```

```
<info/>
```

```
<coordinateSystems/>
```

```
<colours/>
```

```
<geometricStructure/>
```

```
<mesh/>
```

```
<materials code="userCode"/>
```

```
<materialAssignment/>
```

```
<patterns/>
```

```
<loadControl/>
```

```
</virtus>
```

Modellaustausch: xml-Schnittstelle

- Klarer struktureller Aufbau
- Vollständige Modelldefinition
- Hohe Flexibilität, einfacher Aufbau und gute Lesbarkeit
- Aufwärtskompatibel für zukünftige Erweiterungen

Simulationsergebnisse: Binärschnittstelle

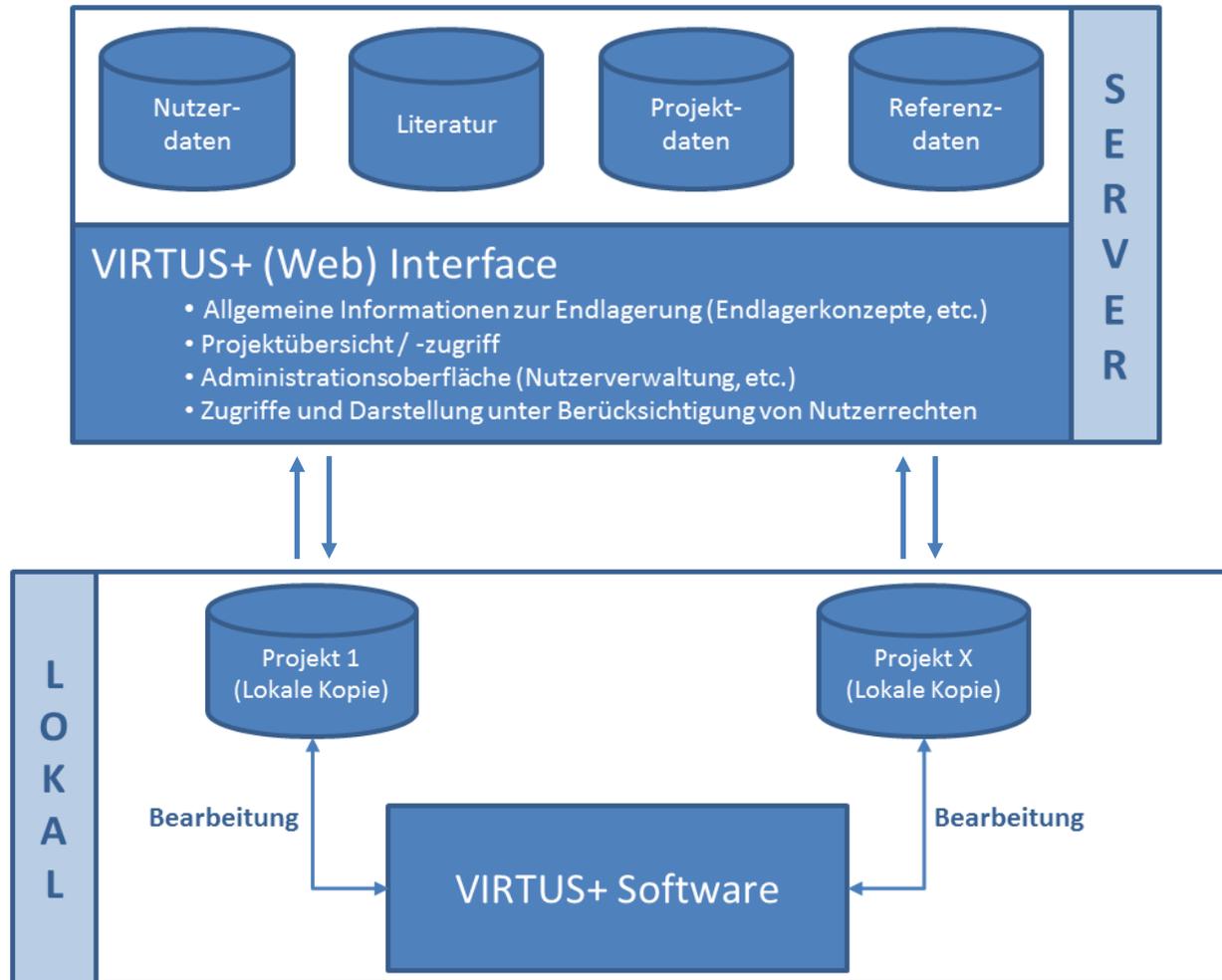
- Effizienz

Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Client-Server Architektur



Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Aktueller Stand

- Nach einer Vorphase zur Definition der Ziele und des Konzeptes begann die laufende VIRTUS Projektphase im November 2010 und endete im Oktober 2014.
- Die hier gezeigten Funktionalitäten sind implementiert, weitere Tests und Verbesserungen sind erforderlich.
- Drei prototypische Simulationen mit den verschiedenen Codes der Projektpartner wurden durchgeführt.
- Ein “Hot Spot” Konzept für den intuitiven Zugriff auf die in VIRTUS zugänglichen Informationen wurde entworfen und implementiert.

Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Ausblick

- Die Projektziele wurden mit der Schaffung eines VIRTUS-Prototypen erreicht, die allgemeine Anwendungsreife muss noch gezeigt werden.
- Einrichtung einer Website und Zugriff auf ausgewählte in VIRTUS verfügbare Informationen über Webbrowser stehen aus.
- VIRTUS wird als virtuelles URL in Steinsalz entwickelt, ist aber hochflexibel:
 - Es ist nicht auf eine bestimmte Geologie beschränkt
 - Es ist nicht auf bestimmte Process Level Codes beschränkt

Gefördert durch:



aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

Vielen Dank!

Gefördert durch:



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie

aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

BETREUT VOM



PTKA
Projektträger Karlsruhe
Karlsruher Institut für Technologie

unter FKZ 02E10890

Verbundprojekt: Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen



Actinidenverbund



11. Projektstatusgespräch
Karlsruhe
25./26.11.2014

Situation:



- Neues Standortauswahlgesetz (StandAG) mit breiter parlamentarischer Unterstützung verabschiedet
- Neues Verfahren initiiert mit Konstituierung der „Kommission Lagerung hoch radioaktiver Abfälle“
- „Weiße Landkarte“ Deutschland (Steinsalz, Tongestein, Kristallingestein)
- Auswahl von Standortregionen zur untertägigen Erkundung **bis 2023**
- Standortauswahl **bis 2031**
- Neuanfang bietet „Chancen“ und „Herausforderungen“

Nachwuchsförderung/Kompetenzerhalt:

3 Förderperioden (2003-2014)

Bachelor/Master/Diplom:	52
Doktoranden/innen:	41
Post-Docs:	31

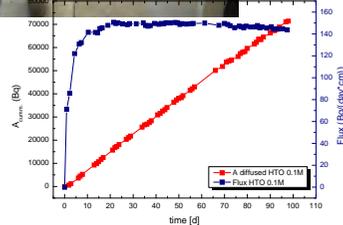
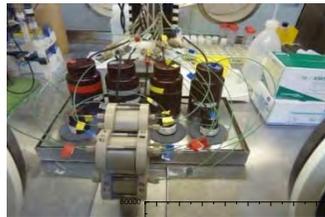
Summe:	124
--------	-----



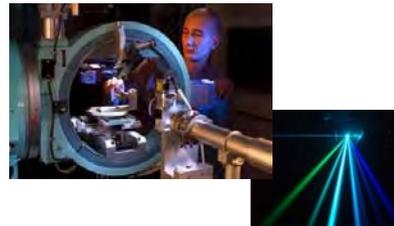
Verbund – Bündelung von Expertisen:



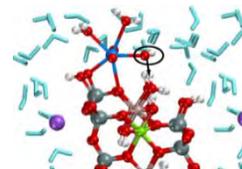
Experimentier- technik



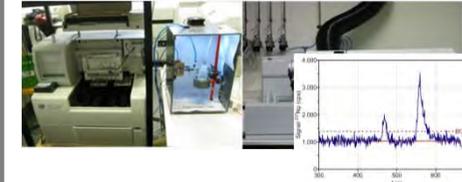
Spektroskopie



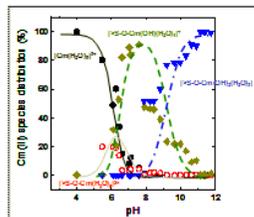
Theorie



Analytik/ Messtechnik



Geochemische Modellierung



$\text{Cm}(\text{OH})_2^+$	-1.9	EuOH^{2+}	-7.2
$\text{Cm}(\text{OH})_3^0$	-4.6	$\text{Eu}(\text{OH})_2^+$	-15.1
$\text{Cm}(\text{OH})_4^-$	-12.8	$\text{Eu}(\text{OH})_3^0$	-26.2
$\text{Cm}(\text{OH})_5^{2-}$	-24.0		
$\text{Cm}(\text{OH})_6^{3-}$	-24.3	AmOH^{2+}	-7.2
		$\text{Am}(\text{OH})_2^+$	-15.1
		$\text{Am}(\text{OH})_3^0$	-26.2
		AmOH^{2+}	-7.2
		$\text{Am}(\text{OH})_2^+$	-15.1
		$\text{Am}(\text{OH})_3^0$	-26.2

Referenzdatenbank



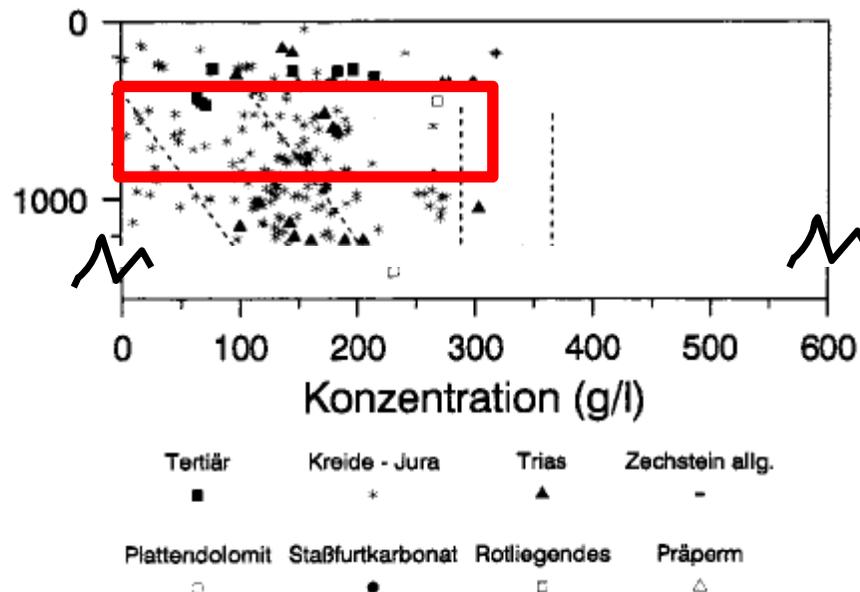
Hintergrund

Tongesteine in Norddeutschland:

Unterkreidetone:

Geochemische Datenlage:

- Porenwassercharakteristik: I bis <5 mol/L
- Daten aus Projekt Konrad vorhanden
- Offene Fragen zum mechanistischen Verständnis zur RN Sorption/Diffusion bei hohen Ionenstärken



Gesamtkonzentration von Formationswässern Nord- und Nordwestdeutschlands in Abhängigkeit von ihrer Tiefenlage /KLI 91/ aus: GRS-A-2956, 2002

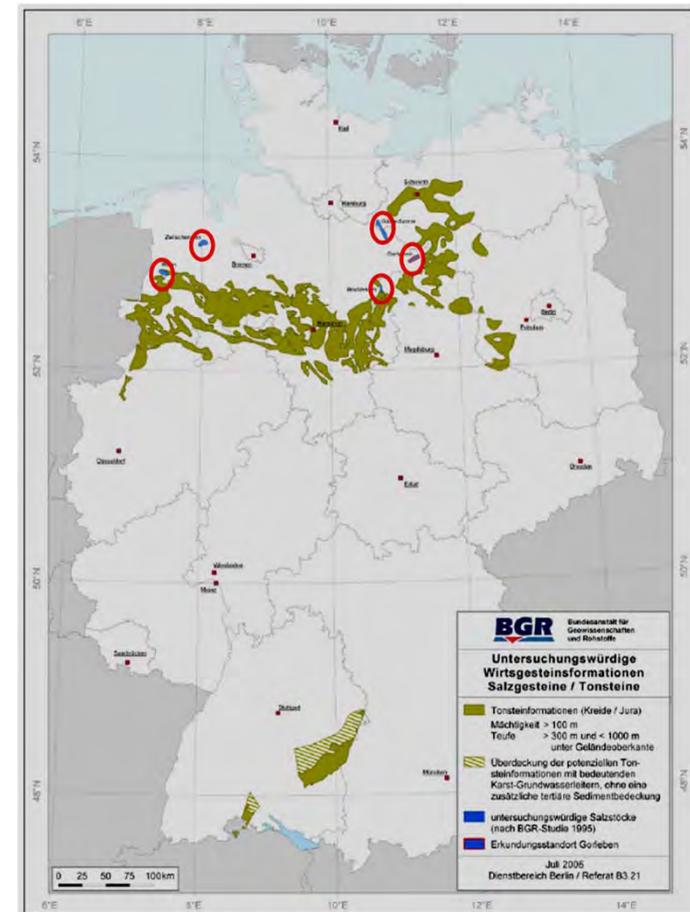


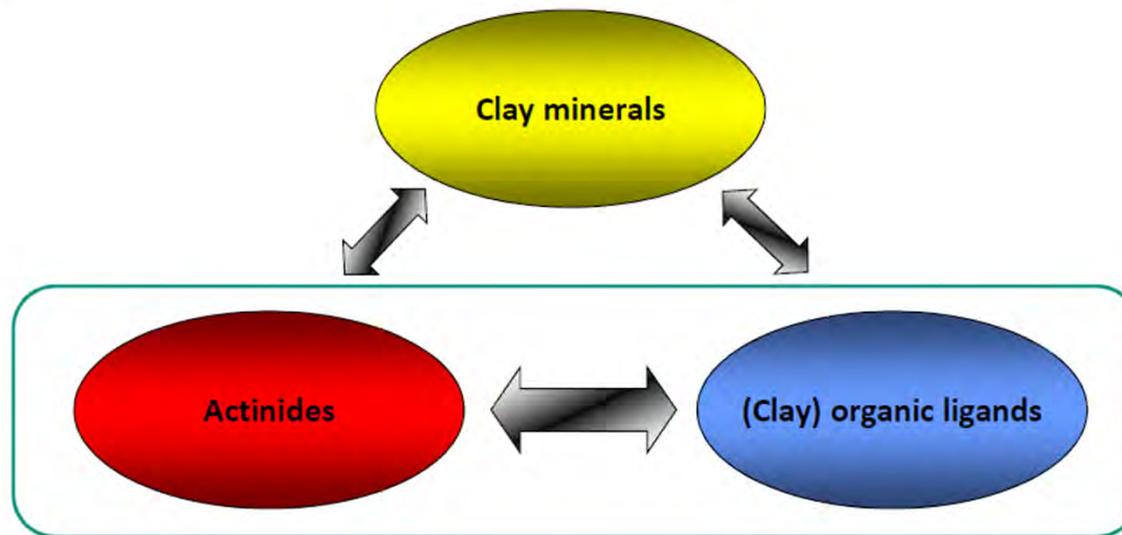
Abb. 3: Karte der untersuchungswürdigen Steinsalz- und Tonsteinformationen in Deutschland.

BGR, 2006

Resultate (ausgewählt):

- Actinid – Organik Wechselwirkung
- Diffusion in Tonstein
- Reaktion Actiniden – Mineraloberflächen (→ Sorption; T. Reich)
- Reaktion Actiniden – Borat (→ M. Acker)
- Reaktionen Actiniden – Bakterien

Actinid – Organik Wechselwirkung



Callovo-Oxfordian Formation

		Pore water
malate	(μM)	<1
lactate	(μM)	8
formate	(μM)	2
acetate	(μM)	1865
propionate	(μM)	127

Courdouan et al. Appl. Geochem. 2007

Opalinus Formation

	Pore water
Lactate (μM)	9
Formate (μM)	2
Acetate (μM)	203
Propionate (μM)	27

Very diverse mixture of „acidic compounds, fatty acids, aldehydes, amino acids, and lower aging humic Compounds“

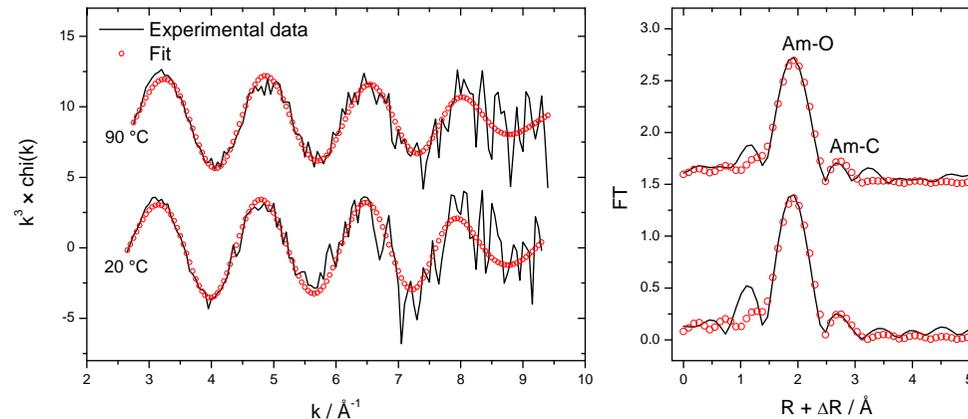
Huclier-Markai et al., Rapid Commun. Mass Spectrom. 2010;

Spektroskopie

Entwicklung einer Hochtemperatur-Messzelle Für EXAFS/TRLFS

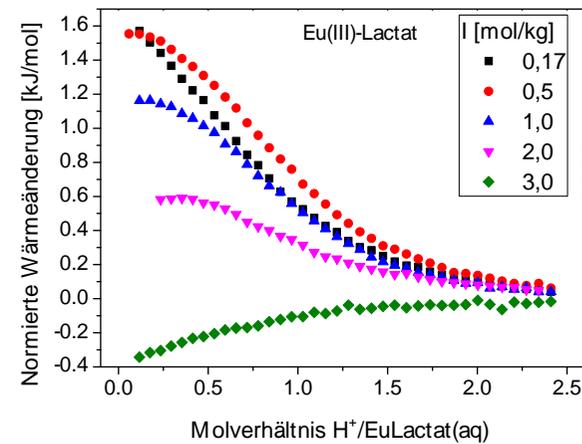


Complexation of Am(III) with lactate as a function of temperature



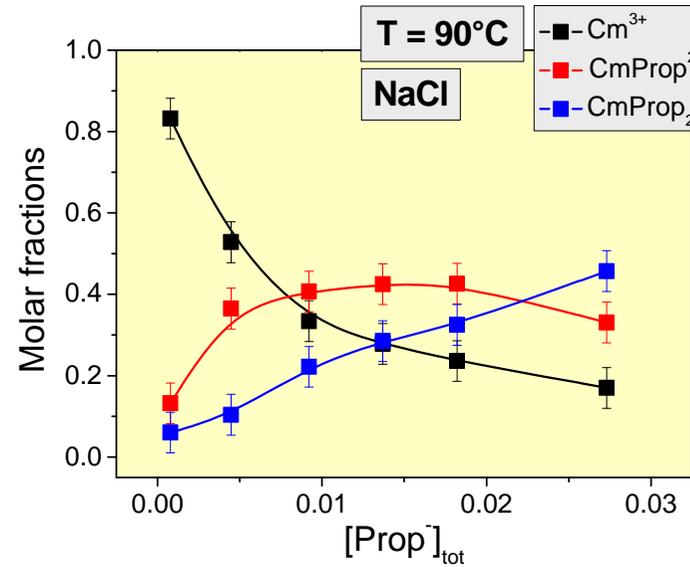
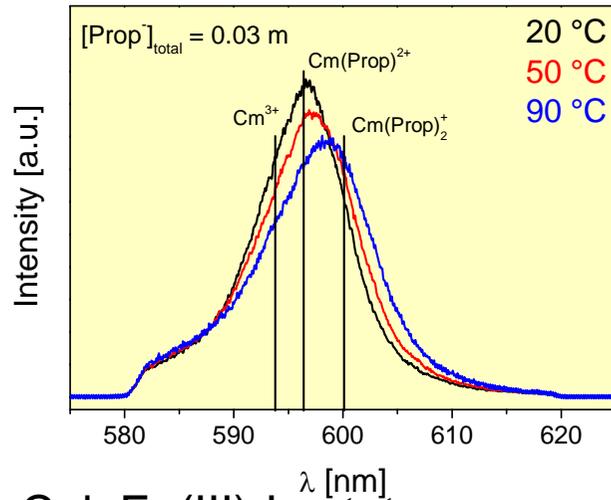
μ-Kalorimetrie

Kalorimetrische Bestimmung von Deprotonierungs-/Komplexbildungskonstanten

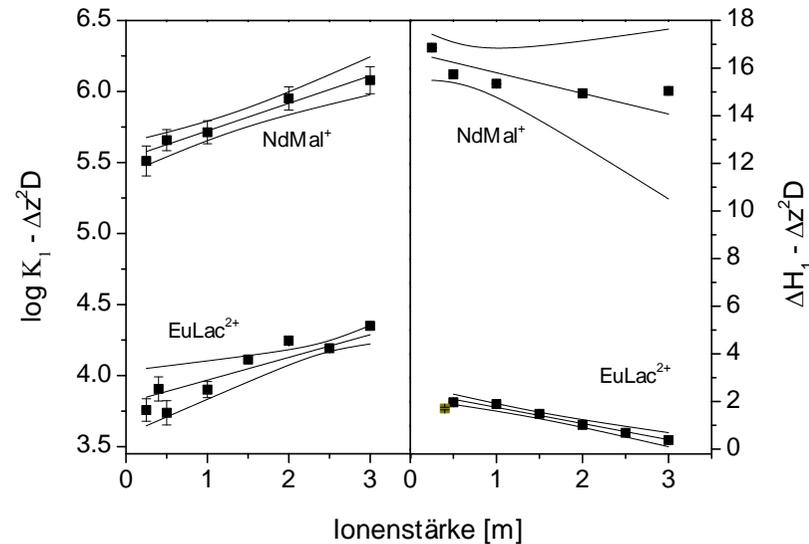
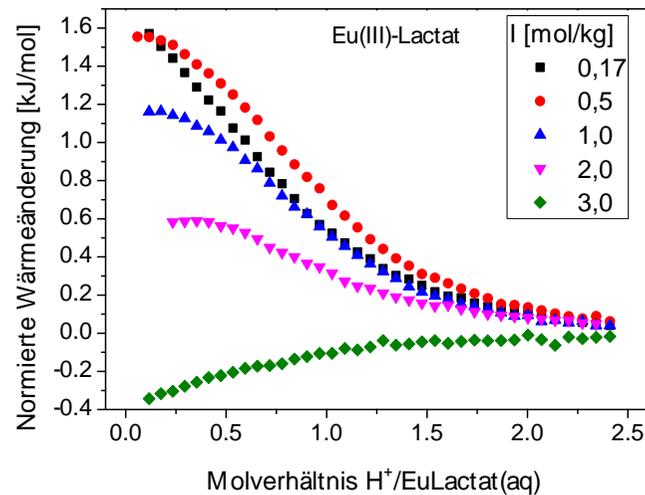


Actinid – Organik Wechselwirkung

TRLFS: Cm(III)-Propionat



μ-Cal: Eu(III)-Lactat



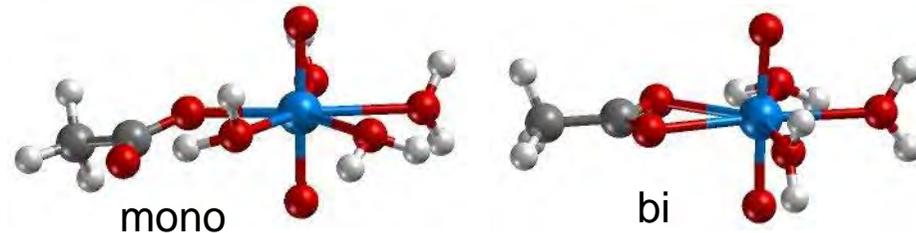
Parametervariation: Ionenstärke (NaCl, CaCl₂), Temperatur (bis ca. 90°C)

Actinid – Organik Wechselwirkung

- Vergleich U(VI), Np(VI), Am(III), Formiat und Acetat
- Beispiel U(VI): $\Delta G: \text{UO}_2^{2+} + \text{L}^- \rightarrow \text{UO}_2\text{L}^+$

Komplex	mono	bi
Formiat	-88	-81
Acetat	-98	-99

Energien in kJ/mol



- Experiment bestätigt : U(VI)-, Np(V)-Acetat bidentat
U(VI)-Formiat monodentat
 - Trend zu bidentater Koordination U(VI) < Am(III) < Np(V)
 - Isomere für 1:2- und 1:3-Komplexe
- Ternäre Chloride?
- Inner- und außersphärische Komplexe im Gleichgewicht
 - Ternäre Chloridkomplexe möglich

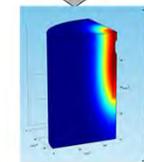
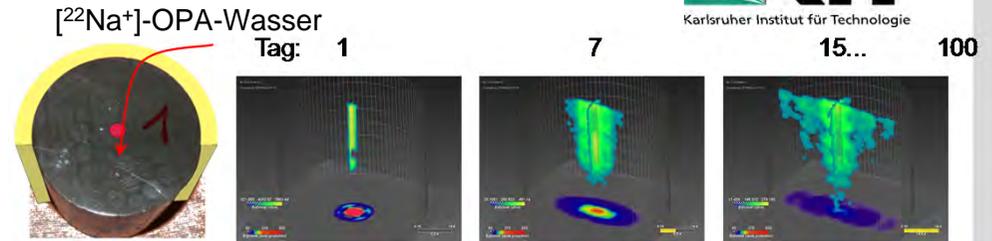
- Entwicklung und Anwendung komplementärer Methoden zur Bestimmung von in der Literatur bislang weitgehend nicht vorhandener Daten
- Verstärkte Einbindung theoretischer (quantenchemischer) Methoden
- Breite Datenbasis für Komplexbildungskonstanten für Actinid (An(III, IV, V, VI)) in Abhängigkeit von Ionenstärke, Temperatur.
- Aufarbeitung zur Verwendung in Referenzdatenbank

Resultate (ausgewählt):

- Actinid – Organik Wechselwirkung
- Actiniden – Diffusion
- Reaktion Actiniden – Mineraloberflächen (→ Sorption; T. Reich)
- Reaktion Actiniden – Borat (→ M. Acker)
- Reaktionen Actiniden – Bakterien

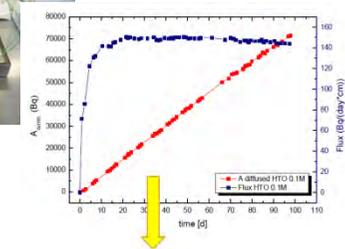
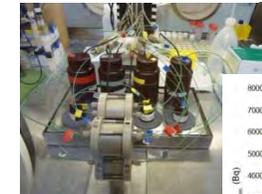
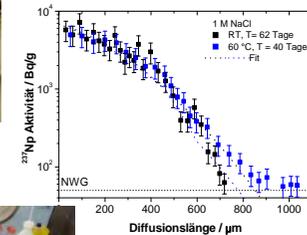
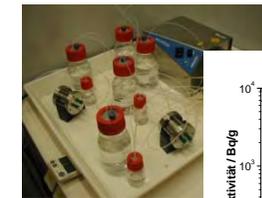
Diffusion im Tonstein

- Methodische Weiterentwicklung des GEO-PET (Auflösung etc.; Datenauswertung mittels MCNP)



Quantitativ:
FEM-Anpassung
 $D_{xx} = 1.1 \text{ E-}10 \text{ m}^2/\text{s}$
 $D_{yy} = 3.35\text{E-}11 \text{ m}^2/\text{s}$

- Aufbau von experimentellen Anordnungen für Diffusionsuntersuchungen (neu: Temp. abh. von D_a (Np(V)): D_a (Tc(VII)): $5,5 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$)
- Abhängigkeit der Diffusion von HTO, ³⁶Cl⁻, FA von der Ionenstärke (0,1-1M) (D_e (³⁶Cl⁻) steigt mit I; teilweise Kompensation des Anionenausschlusses bei hohen Ionenstärken)



Resultate (ausgewählt):

- Actinid – Organik Wechselwirkung
- Actiniden – Diffusion
- Reaktion Actiniden – Mineraloberflächen (→ Sorption; T. Reich)
- Reaktion Actiniden – Borat (→ M. Acker)
- Reaktionen Actiniden – Bakterien

Reaktion Actiniden – Mineraloberflächen (→ Sorption; T. Reich)

- Erweiterung des ‚bottom-up‘ Ansatzes auf Porenwässer mit hoher Ionenstärke



(M.H. Bradbury, B. Baeyens / Applied Clay Science 52, 2011)

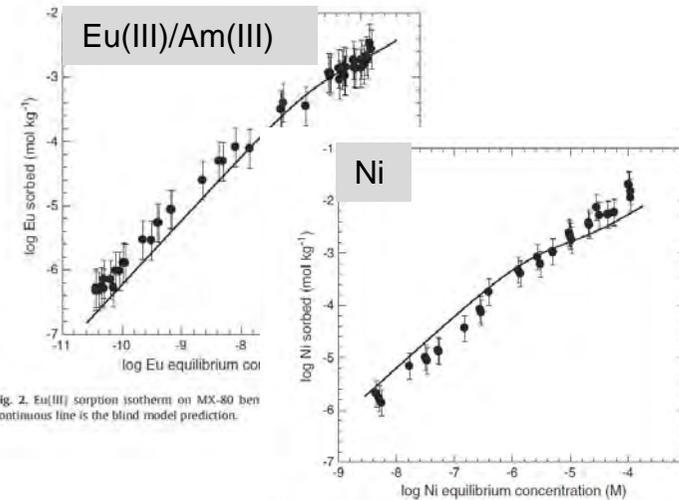
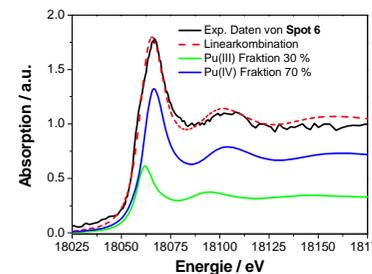
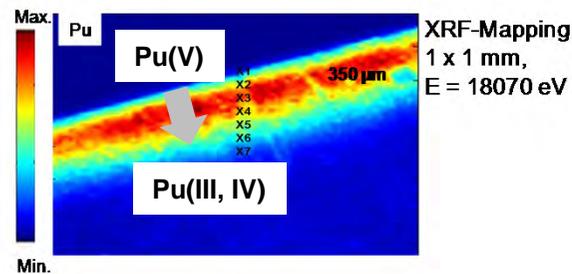


Fig. 2. Eu(III) sorption isotherm on MX-80 bentonite. Continuous line is the blind model prediction.

Fig. 1. Ni(II) sorption isotherm on MX-80 bentonite. Experimental data (●). The continuous line is the blind model prediction.

- Quantifizierung der „Redoxbarriere“ natürliches Tongestein und geochemische Modellierung oberflächeninduzierter Redoxreaktionen der Actiniden



Reaktion Actiniden – Borat (→ M. Acker)

Bor in endlagerrelevanten Systemen:

Geologische Formation (u.a. Zechsteinsalinare)

- saliner Tonstein: ~ 2,2 g/kg (Lagerstätte Leine-Folge)
- Anhydrit: ~ 0,2 g/kg (Lagerstätte Staßfurt-Folge)
- WIPP, New Mexiko, USA: Boraxablagerungen (0,49 g/kg)

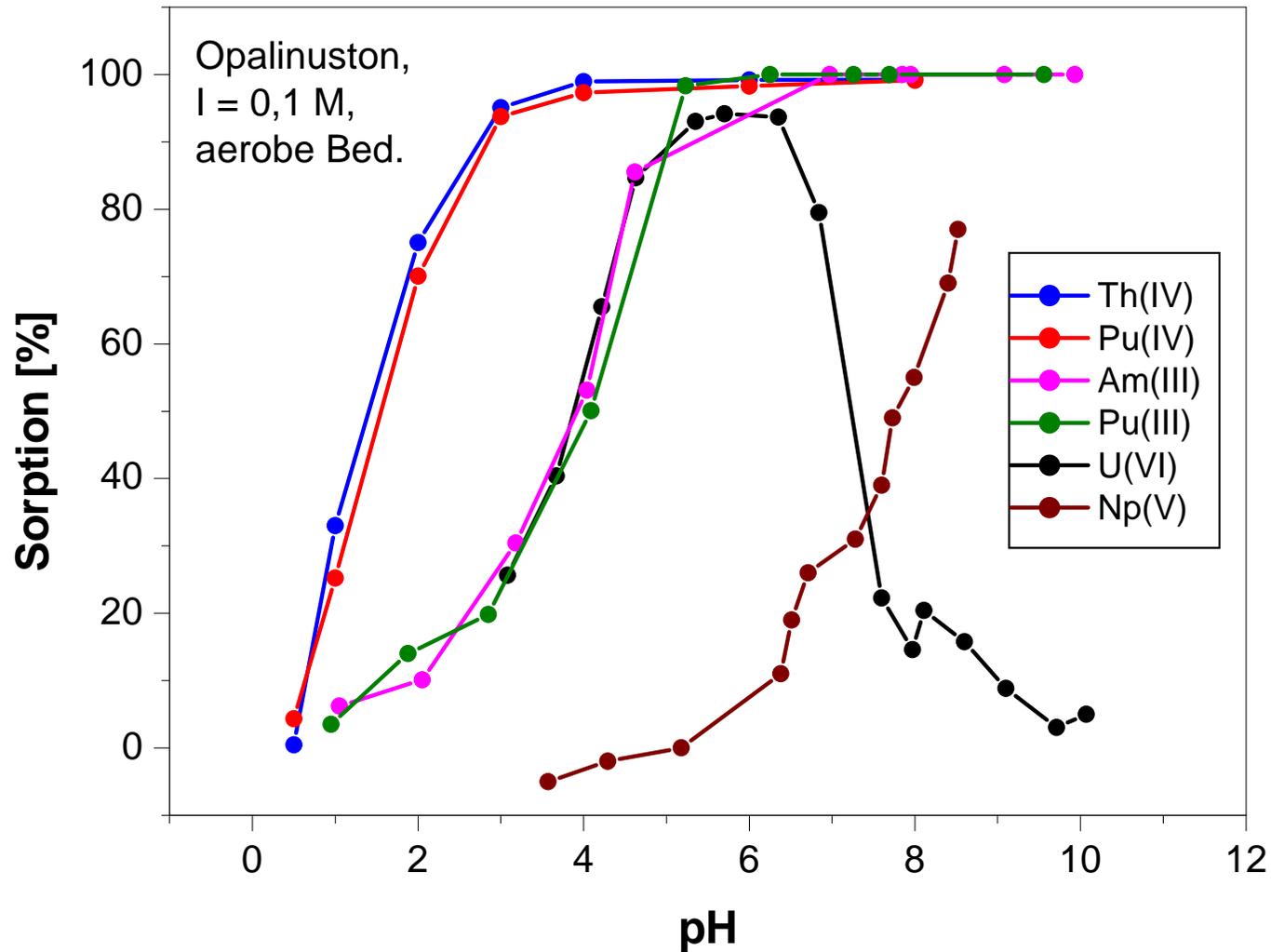
Inventar im Endlager

- verglaste HAW-Abfälle: Auslaugexperimente ~0,1 g/l Bor
- Kerntechnik: borsäurehaltige Verdampferkonzentrate
- Bauwerk: Zementzuschlagstoff (Betonverflüssiger)



Einfluss auf Speziation und Löslichkeit von Actiniden ?

Sorption der Actiniden Th-Am an Opalinuston



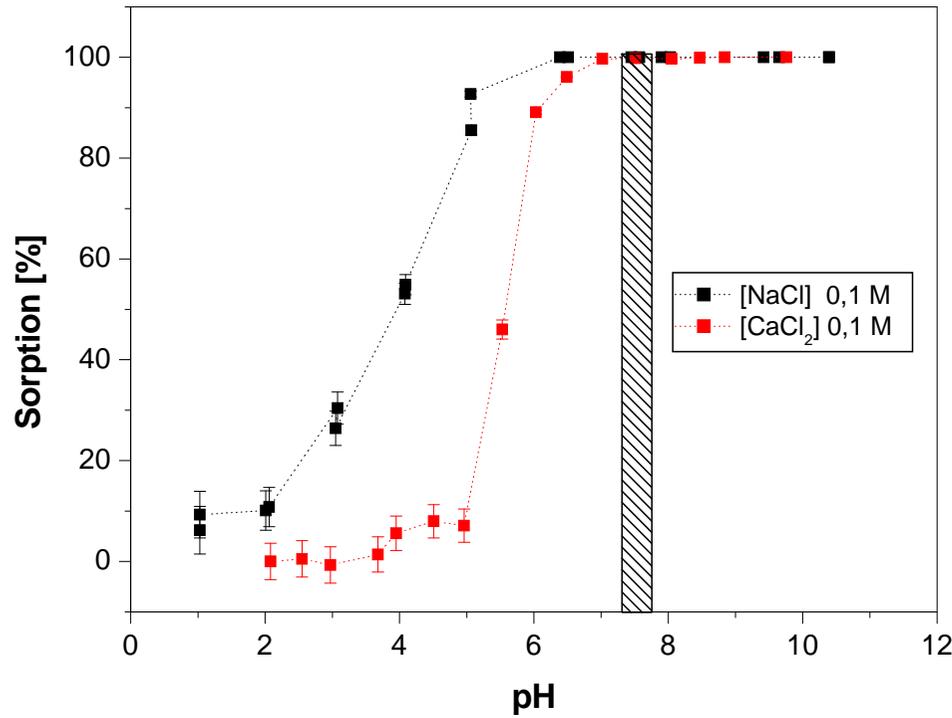
- Sorption ist abhängig vom Oxidationszustand des Actinids, vom pH-Wert sowie von Ionenstärke und Temperatur.

Sorption von Am(III), Np(V) und U(VI) an Opalinuston

- Einfluss der Salinität
- Vergleich von NaCl-Lösung mit MgCl₂- und CaCl₂-Lösungen
- Einfluss der Temperatur

Sorption von Am(III) im NaCl- und CaCl₂-Medium

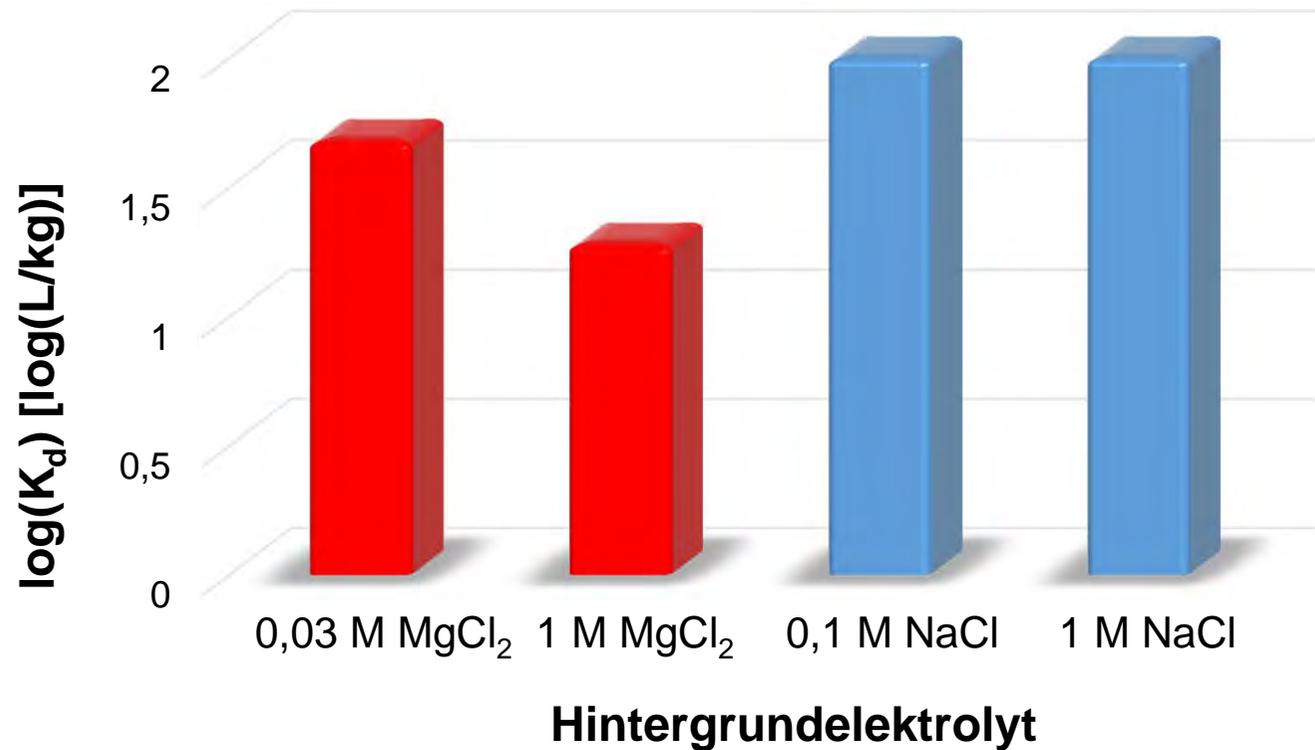
[Am(III)]_{total} = 4 x 10⁻⁷ M, S:L = 2 g/L



➤ Niedrigere Sorption im CaCl₂-Medium im Bereich der pH-Kante (50% Sorption)

Einfluss der NaCl- und MgCl₂-Konzentration

[Np(V)]_{total} = 8 x 10⁻⁶ M, pH = 7,6, aerobe Bedingungen, S:L = 20 g/L



- Einfluss von Mg²⁺ auf die Sorption von NpO₂⁺
- Kein Einfluss von Na⁺ auf die Sorption von NpO₂⁺

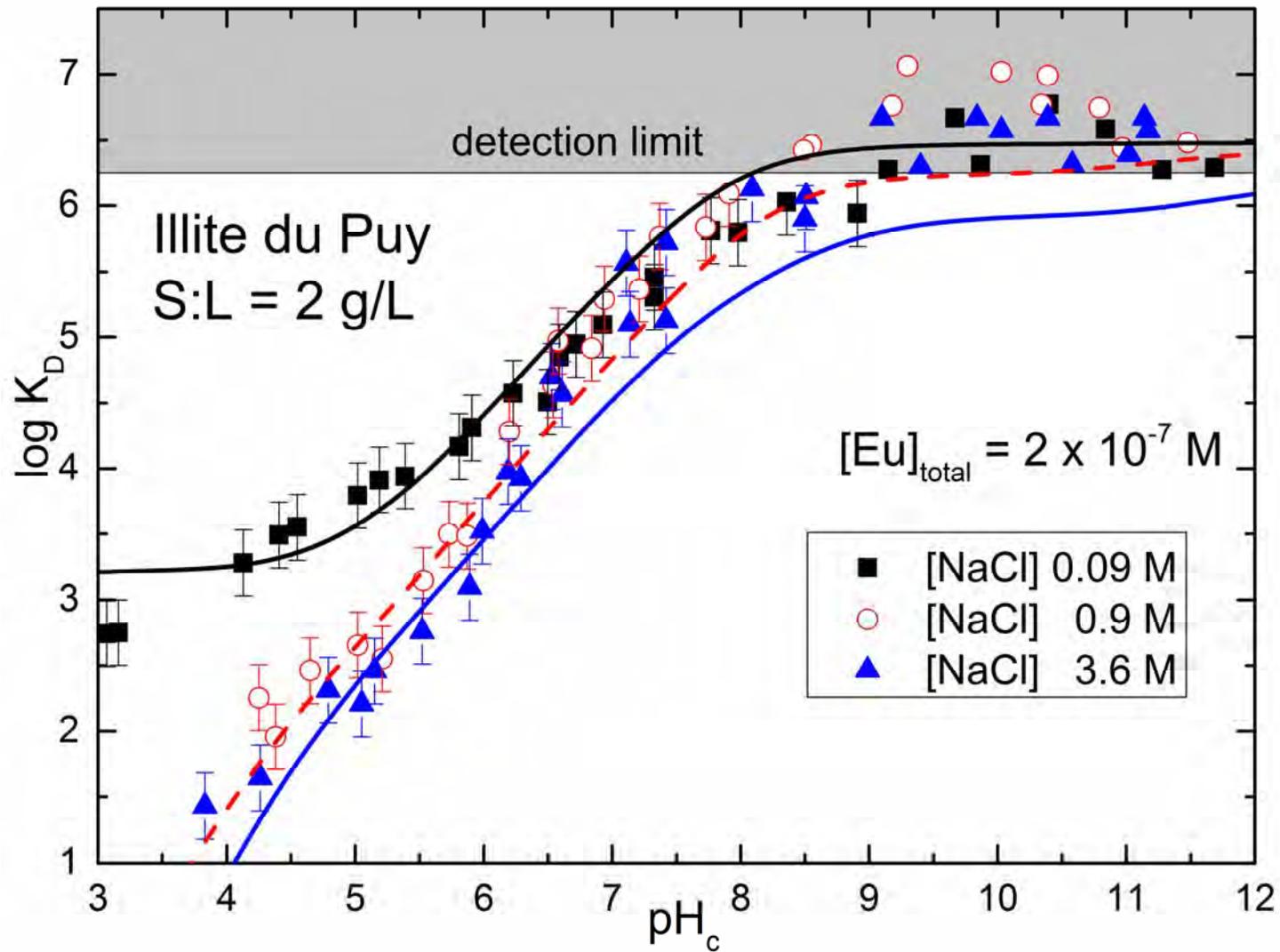
Modellierung der Sorption von Actiniden an Tonmineralien

Beschreibung der Sorption von Actiniden an Tonmineralien

- Anwendbarkeit des Sorptionsmodells (2SPNE SC/CE) [1] auf höhere Ionenstärken
- Berücksichtigung der Aktivitätskoeffizienten der Lösungsspezies mittels SIT- und Pitzer-Formalismus
- Spezies konsistent mit spektroskopischen Daten

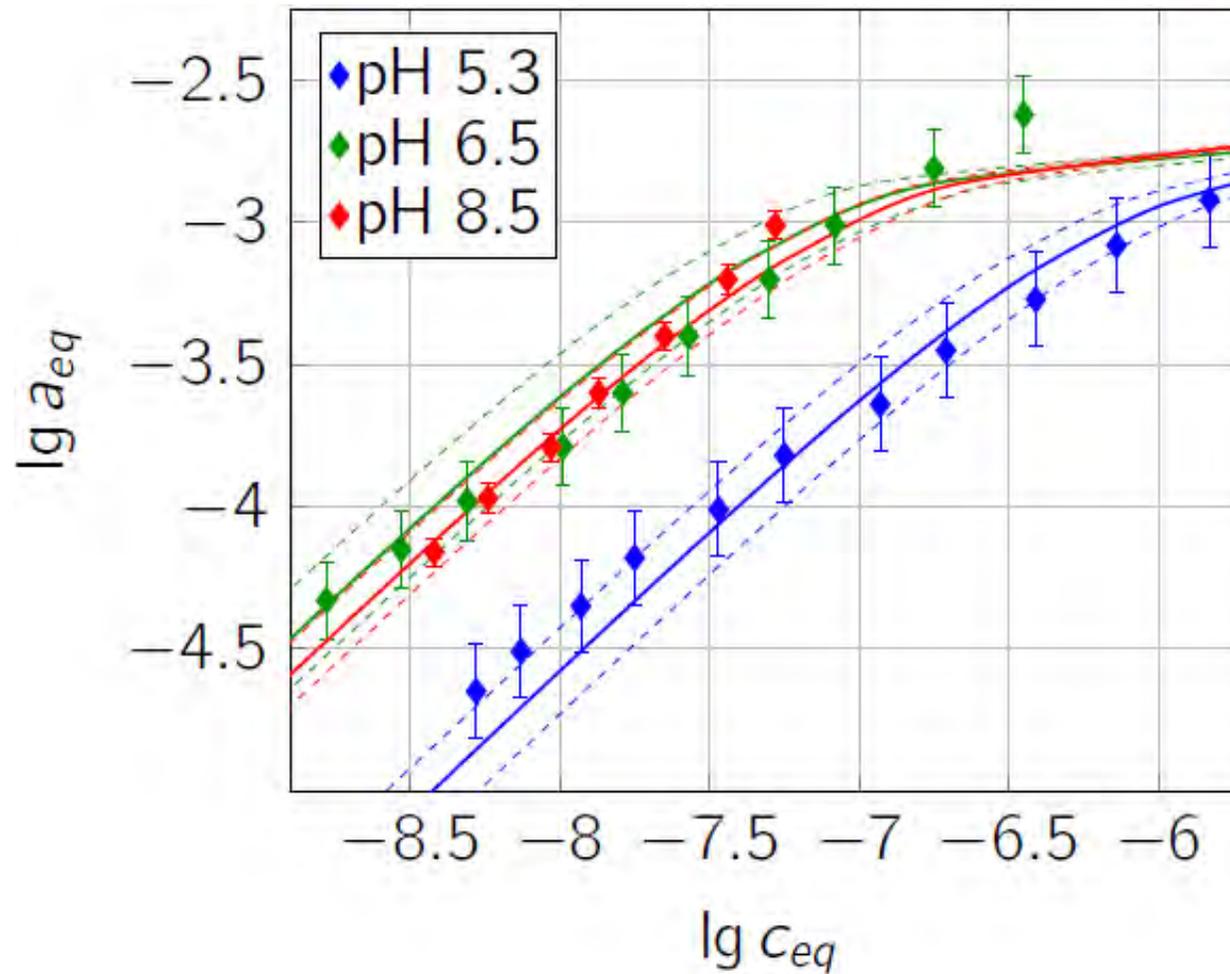
[1] Bradbury, M. H., Baeyens, B.: J. Contam. Hydrol. 27, 223–248 (1997).

Sorption von Eu(III) an Illit: Experiment und Modellierung Natriumchlorid-Lösungen

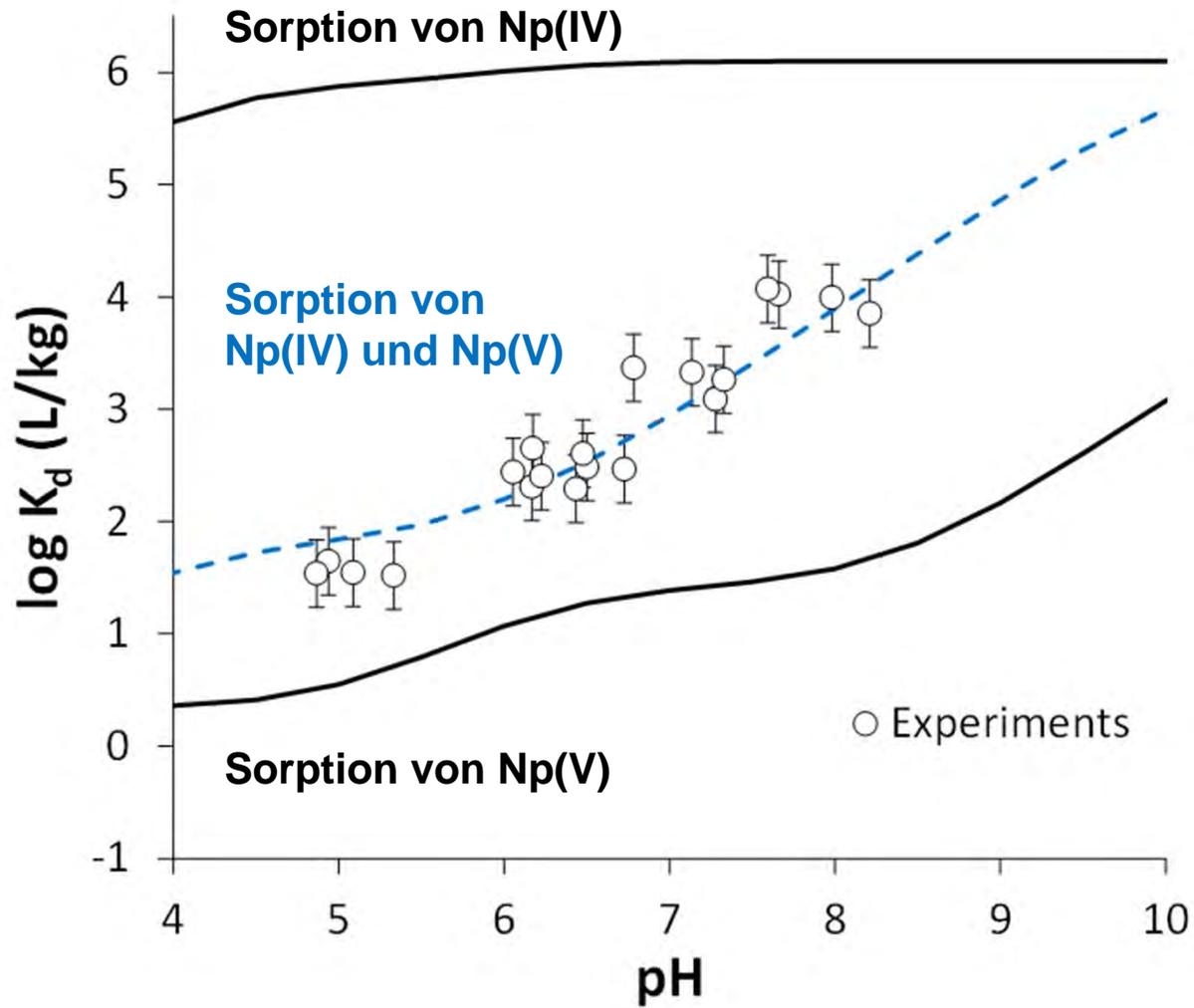


**U(VI)-Sorption an Montmorillonit in gemischtem Elektrolyten
(2,52 mol/kg NaCl, 0,12 mol/kg CaCl₂, 0,048 mol/kg MgCl₂) in
Abwesenheit von CO₂**

Lösungszusammensetzung simuliert reales Porenwasser (W. Brewitz, GSF-T 136 (1982))



“Oberflächeninduzierte Reduktion” von Np(V) an Na-Illit
 Oberfläche: *Experiment und Modellierung*



Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

- Sorption der Actinidionen (U, Np, Pu) abhängig vom Redoxpotential
- Bei Ionenstärken $\geq 0,1$ M kein oder nur geringer Einfluss der Salinität auf die Sorption der Actiniden
- In Erdalkalichlorid-Lösungen ist die Sorption der Actiniden geringer als in NaCl-Lösungen.
- Verbesserung des Verständnisses der Actinidensorption an Tonmineralien durch Kombination von Sorptionsexperimenten, Spektroskopie und Quantenchemie
- Geochemische Beschreibung der Ionenstärke- und Redoxabhängigkeit (2SPNE SC/CE-Modell gekoppelt mit SIT/Pitzer-Formalismus)
- Damit können neben phänomenologischen K_d -Werten auch thermodynamische Sorptionsdaten für die Langzeitsicherheitsanalyse zur Verfügung gestellt werden.

Beteiligte Institutionen

- Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR), Institut für Ressourcenökologie
- Johannes Gutenberg-Universität Mainz, Institut für Kernchemie
- Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Institut für Nukleare Entsorgung
- Technische Universität München, Fachgebiet Theoretische Chemie
- Universität des Saarlandes, Fachrichtung Chemie - Anorganische Festkörperchemie





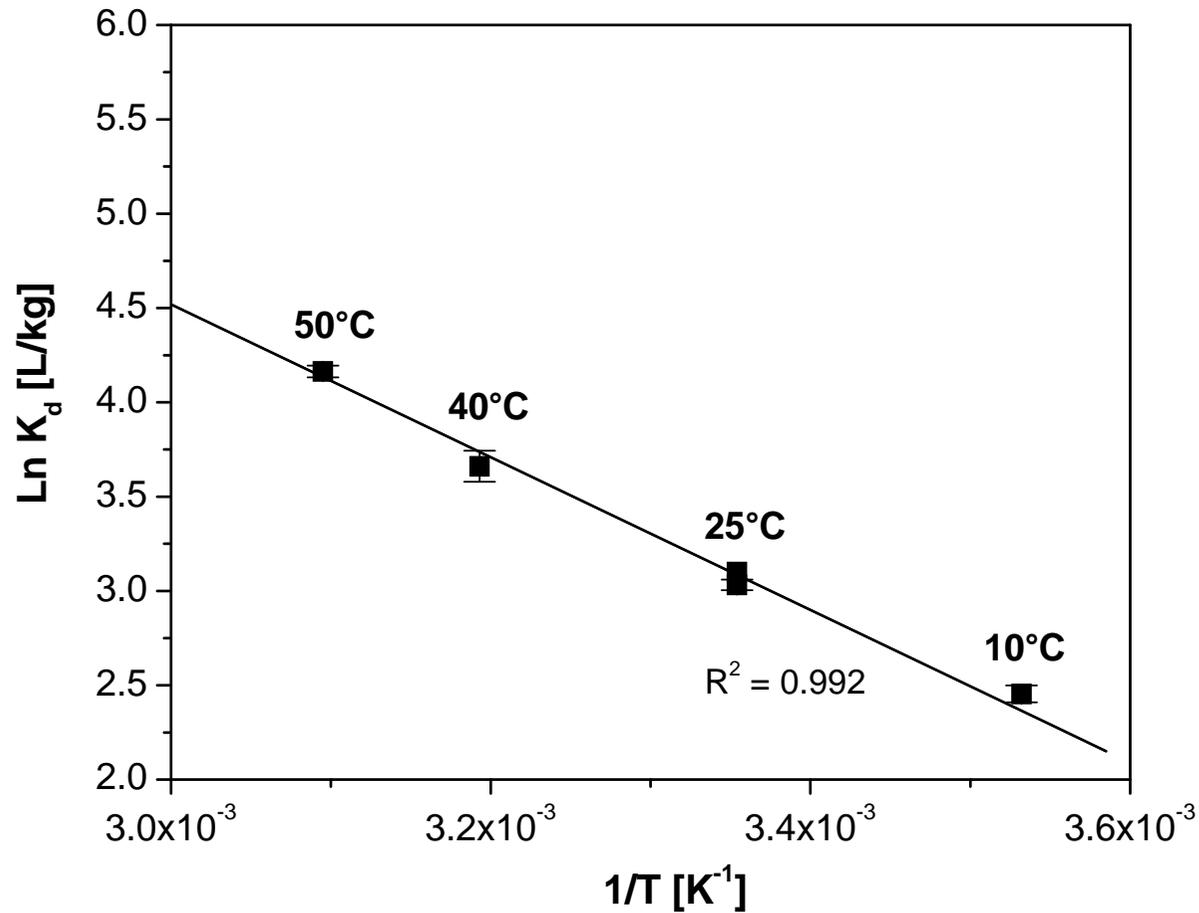






Einfluss der Temperatur auf die Sorption von U(VI)

$[U(VI)]_{total} = 1 \times 10^{-6} \text{ M}$, synth. Porenwasser, pH = 7,6



➤ Zunahme der Sorption mit steigender Temperatur

Kurzfassung zum Vortrag:

Actiniden/Lanthaniden-Wechselwirkung mit Borat

als Teil zum Vortrag: **Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen (Autor Prof. G. Geckeis)**

Autoren: M. Acker und J. Schott (TU Dresden),
T. Stumpf (Helmholtz Zentrum Dresden-Rossendorf)
K. Hinz, M. Altmaier und H. Geckeis (Karlsruher Institut für Technologie),
S. Krüger (TU München),
S. Eidner, M. U. Kumke (Universität Potsdam)

Anlass: 11. Projektstatusgespräch zu BMWi-geförderten FuE-Projekten bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle, , Karlsruhe, 25.-26.11.2014

Borat-Spezies sind bezüglich ihrer Wechselwirkung mit Actiniden bisher kaum untersucht worden. Aus der jüngeren Literatur sind erste Komplexierungsuntersuchungen im Nd(III)-Boratsystem (Nd(III) als inaktives Analog für dreiwertige Actinide) und synthetisch hergestellte Actinid-Borat-Festphasen bekannt. [1, 2]

Aufgrund der geringen Datenlage war eine Aussage zu einer Actinidenmobilisierung durch Borate im Nah- und Fernfeld eines Endlagers für radioaktive Abfälle nicht möglich. Es kann davon ausgegangen werden, dass die bisher als Spezies nicht berücksichtigten Borate, im sowohl Nah- als auch im Fernfeld eines Endlagers vorkommen werden. In Form von borhalten Mineralien kommt Bor in geologischen Formationen vor. Im Zechsteinsalinar wären als wichtige Borträger insbesondere der saline Tonstein und der Anhydrit (mit Borgehalten bis zu 2,2 g/kg) hervorzuheben. In Grund- und Sickerwasserströmen sind Boratverbindungen ebenfalls vertreten. Ein großer Teil an Boratverbindungen wird im Zuge des Einlagerungsprozesses von radioaktiven Abfällen in ein Endlager eingebracht werden. Durch Korrosion von Glaskokillen und Abfallgebinden, die borsäure-/borathaltige Verdampferkonzentrate aus der Kerntechnik enthalten, können Boratverbindungen freigesetzt werden.

Nach Erkennung dieser Sachverhalte, stellt(e) sich nun die Frage mit welchen Reaktionen im Actinid-Boratsystem zu rechnen ist. Es kommen Komplexierungsreaktionen und die Bildung von Festphasen (inkl. Kolloidbildung analog zum Silikat-System) in Betracht. Quantenchemische Rechnungen zeigten, dass eine Actinidkomplexierung mit Boraten, aber nicht mit Borsäure, möglich ist. Im Fall der Komplexierung dreiwertiger Actinide (z.B. Am(III)) durch Borate muss anhand der theoretischen Rechnungen von einer schwachen Komplexierung ausgegangen werden.

Bei Borkonzentrationen kleiner 0,025 M sind nur die Borsäure im sauren pH-Bereich und das Monoborat im alkalischen pH-Bereich im Gleichgewicht vorhanden. Im alkalischen Bereich, wo das Monoborat die Actinide komplexieren könnte, dominieren die sehr starken Actinidhydroxid bzw. -carbonakomplexe die Actinidspeziation. Untersuchungen mit Monoborat im alkalischen pH-Bereich sind nicht so einfach zugänglich

Ab Borkonzentrationen größer 0,025 M kommt es zu Polymerisation und es bilden sich zahlreiche anorganische Polyboratspezies, die in einem weiten pH-Bereich (pH 4-13) vorhanden sind. Diese Polyborate bilden Komplexe mit Eu(III) (inaktives Analogon für dreiwertige Actinide) schon im neutralen bis schwach sauren pH-Bereich (Vermeidung der Actinidhydroxidbildung). Für das Eu(III)-Polyboratsystem wurde eine Komplexierungskonstante $\log \beta_{11}$ im Bereich von 2,0 bis 2,5 für eine Ionenstärke von 0,1 M (NaClO_4 , NaCl) bestimmt. Es wird erster Näherung angenommen (und zum Teil durch quantenchemische Rechnung bestätigt), dass alle Boratspezies (Polyborate und Monoborat) ein ähnliches Komplexierungsverhalten zeigen. Die Ergebnisse der Komplexierungsuntersuchungen mit Polyborat lassen den Schluss zu, dass nur eine schwache Komplexierung dreiwertiger Actinide mit (Mono)Borat vorliegt. [3]

Nach einer gewissen Reaktionszeit (Tage bis Wochen) von Eu(III)-borathaltigen Proben lässt sich bereits im schwach sauren pH-Bereich (pH 6) eine Festphasenbildung beobachten. Als Vorstufe für den amorphen Feststoff wird der Eu(III)-(Poly)boratkomplex angenommen. Die Festphasenbildung ist abhängig von der (Poly)borat- und Elektrolytkonzentration. [3]

Weiterhin wurde die Wechselwirkung von Cm(III) und Nd(III) mit Boraten in verdünnten bis konzentrierten NaCl, CaCl_2 und MgCl_2 Lösungen mithilfe von $\text{Nd}(\text{OH})_3(\text{am})$ Löslichkeitsexperimenten und zeitaufgelöster Laserfluoreszenzspektroskopie (TRLFS) untersucht. Es wurde kein signifikanter Anstieg der Nd(III) Löslichkeit in allen untersuchten Systemen im Vergleich mit den boratfreien Daten beobachtet, jedoch sank die Löslichkeit bei $\text{pH} < 9$ und einer Gesamtborkonzentration > 0.16 M deutlich ab. Diese Löslichkeitserniedrigung lässt auf eine Transformation der ursprünglichen Festphase ($\text{Nd}(\text{OH})_3(\text{am})$) schließen. XPS Untersuchungen der Festphasen bestätigen eine Transformation des $\text{Nd}(\text{OH})_3(\text{am})$ in eine neu gebildete Nd(III)-Boratfestphase.

In den TRLFS Experimenten kann im Bereich pH_c 8-9 eine leichte Komplexierung des Cm(III) mit Borat beobachtet werden. Da in diesem pH-Bereich die Hydrolyse des Cm(III) in Konkurrenz mit der schwachen Boratkomplexierung steht kann diese nicht separiert werden. Bei höheren pH-Werten $\text{pH}_c \sim 12$ verdrängt die Hydrolyse die Boratkomplexierung vollständig.

Erstmals konnte über einen weiten pH-Bereich ein Einfluss von Boraten auf die Speziation von dreiwertigen Actiniden(An)/Lanthaniden(Ln) festgestellt werden und dadurch ein gutes Verständnis des An(III)-Boratsystems gewonnen werden. Zwei Ergebnisschwerpunkte können formuliert werden: (1) Die An/Ln(III)-Boratkomplexierung ist schwach, und (2) die Bildung von An/Ln(III)-Borat Festphasen ist unter endlagerrelevanten Bedingungen möglich. Beide Punkte lassen den Schluss zu, dass dreiwertige Actinide durch Boratverbindungen kaum mobilisiert werden sollten.

[1] Borkowski et.al., Radiochim. Acta, 2010, 98, 577-582

[2] Alekseev et. al., Inorganic Chemistry, 2013, 52, 1965-1975

[3] Schott et. al., Dalton Transactions 2014, 43(30), 11516-11528

Actiniden/Lanthaniden- Wechselwirkung mit Borat

J. Schott, M. Acker, T. Stumpf

*TU Dresden, Sachgebiert für Strahlenschutz, Professur für Radiochemie,
Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, Inst. für Ressourcenökologie*

K. Hinz, M. Altmaier, H. Geckeis

Karlsruher Institut für Technologie, Institut für Nukleare Entsorgung

S. Krüger

Technische Universität München, Fachgebiet Theoretische Chemie

S. Eidner, M. Kumke

Universität Potsdam, Institut für Chemie - Physikalische Chemie

11. BMWI-Projektstatusgespräch, Karlsruhe, 25.-26.11.2014

Borate im Endlager

- **Geologische Formation** (u.a. Zechsteinsalinare)
 - saliner Tonstein: [B] ~ 2,2 g/kg (Lagerstätte Leine-Folge)
 - Anhydrit: [B] ~ 0,2 g/kg (Lagerstätte Staßfurt-Folge)
 - WIPP, New Mexiko, USA: Boraxablagerungen ([B] ~ 0,49 g/kg)

- **Inventar im Endlager**
 - verglaste HAW-Abfälle: Laugungsexperimente ~0,1 g/l Bor
 - Kerntechnik: borsäurehaltige Verdampferkonzentrate
 - Bauwerk: Zementzuschlagstoff (bis 1 Ma%, Betonverflüssiger)

- **Actinidenborate**

Aber: Unbekannter Einfluss auf die Rückhaltung von Actinide

Hinweise auf Actinid/Lanthanidborat-Komplexe

□ Löslichkeitsuntersuchungen von Actiniden

$\log\beta^0(\text{NdHB}_4\text{O}_7^{2+}) = 4.55$ (Nd \Rightarrow Analogon für An(III))

Borkowski et.al. (WIPP, USA), Radiochim. Acta, 2010, 98, 577-582,

Lucchini et. al., Radiochim. Acta, 2013, 101, 391-398, (mit U(VI))

□ Synthetische feste Lanthanid/Actinid-Boratverbindungen

Alekseev, Polinski, Wang, Albrecht-Schmitt

u.a. Inorganic Chemistry, 2013, 52, 1965-1975;

Zeitschrift für Kristallographie-Crystalline Materials 2013, 228, 489-498

□ Boratkomplexe mit anderen Metallen: $[\text{M}^{n+}(\text{B}(\text{OH})_4)_m]^{(n-m)}$

M: Alkali- und Erdalkaliionen, d-Elemente, großer Bereich an $\log\beta$ Werten

Bousher, J. of Coord. Chemistry 1995, 34, 1-11

Bassett, Geochim. et Cosmochim. Acta 1980, 44, 1151-1160

Allseitiger Ansatz im Actinidenverbund

- TU Dresden/HZDR-IRE
Identifizierung der Ln(III)/An(III)-Boratkomplexe,
Ableitung einer Komplexbildungskonstante

- KIT-INE
Einfluss von Borat auf die Löslichkeit und Speziation von
Actinidhydroxiden (Nd(III)/Cm(III), Th(IV), Np(V), U(VI), Pu(III, IV))
in verdünnten bis konzentrierten NaCl, MgCl₂ und CaCl₂-Lösungen

- TUM-Theoretische Chemie
Quantenmechanische Modellierungen der Actinidboratkomplexe
Am(III), U(VI), Monoborat, Lactatoborat

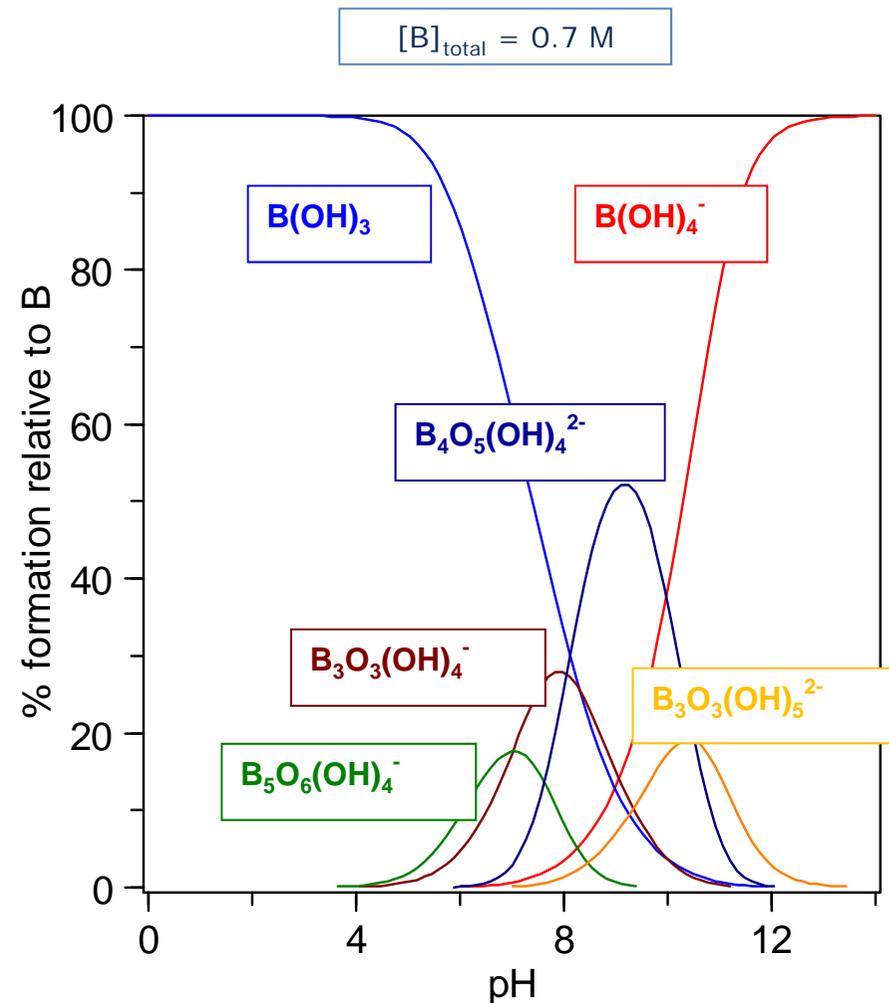
- Universität Potsdam-Institut für Physikalische Chemie
Tiefemperatur-TRLFS-Messungen an festen Ln(III)-Boratphasen

Komplexe Chemie: Viele Boratspezies

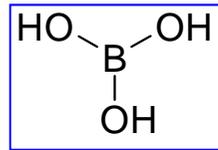
- $[B(OH)_3] < 0.025 \text{ M}$:
 $B(OH)_3 + H_2O \leftrightarrow B(OH)_4^- + H^+$
(nicht komplexierend?)

- $B(OH)_4^-$: Achtung, bei $\text{pH} > 8$
 Konkurrenz der An-Hydroxide
 und -Carbonate

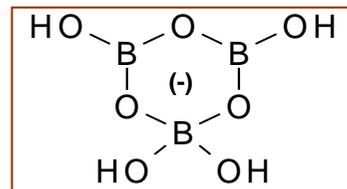
- $[B(OH)_3] > 0.025 \text{ M}$:
 Polymerisation \rightarrow Polyborate



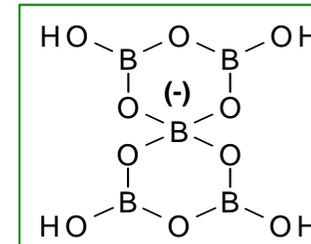
Komplexe Chemie: Viele Boratspezies



Borsäure

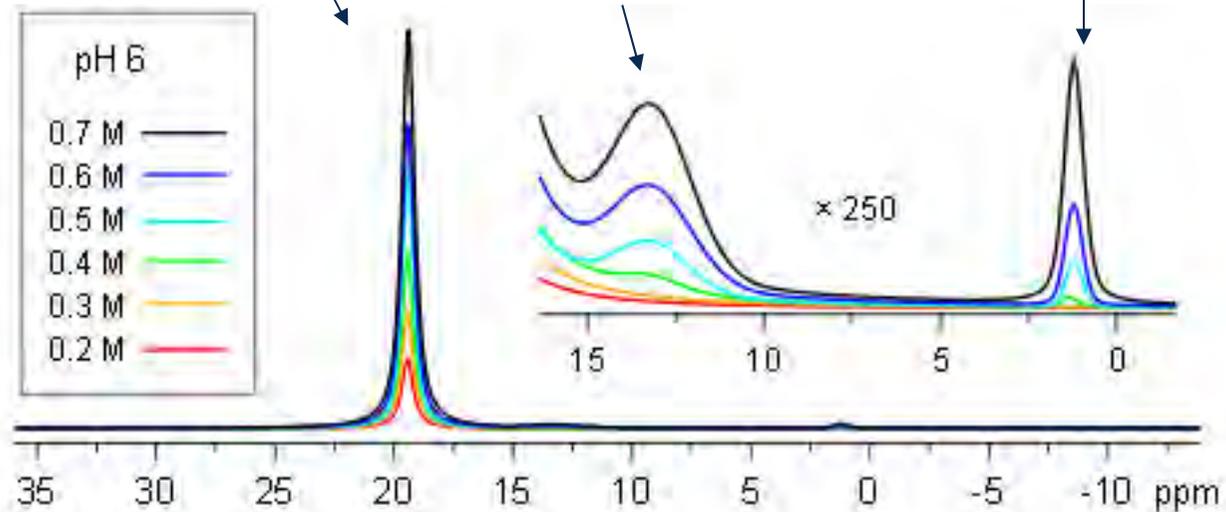


Triborat



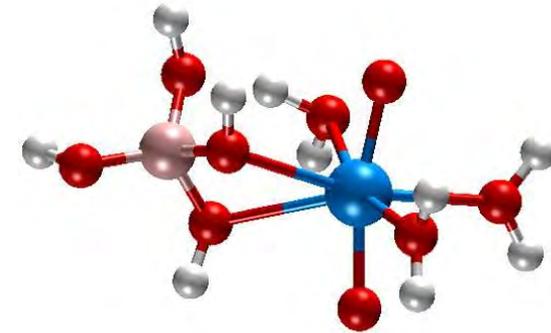
Pentaborat

¹¹B-NMR



Quantenmechanische Modellierung

- $An^{3+} + B(OH)_3 \rightarrow AnB(OH)_3(H_2O)_{n-x}^{(m-1)+}$
- $\Delta G^0 > 0 \Rightarrow$ Reaktion findet nicht statt!
- $B(OH)_4^-$, $[B]_t < 0.025$ M:
 - Monoboratkomplexe mit UO_2^{2+} und Am^{3+}
 - Mono- und bidentate
innersphärische Komplexe
 - mit Acetat vergleichbar:
U(VI): $\Delta G^0 = -99$,
Am(III): $\Delta G^0 = -105$



$UO_2B(OH)_4(H_2O)_3^+$

Komplex	CN	$\Delta G^0(Am)$		$\Delta G^0(U)$
		8	9	5
außersph.		-78	-76	—
mono		-112	-108	-146
bi		-105	-95	-81

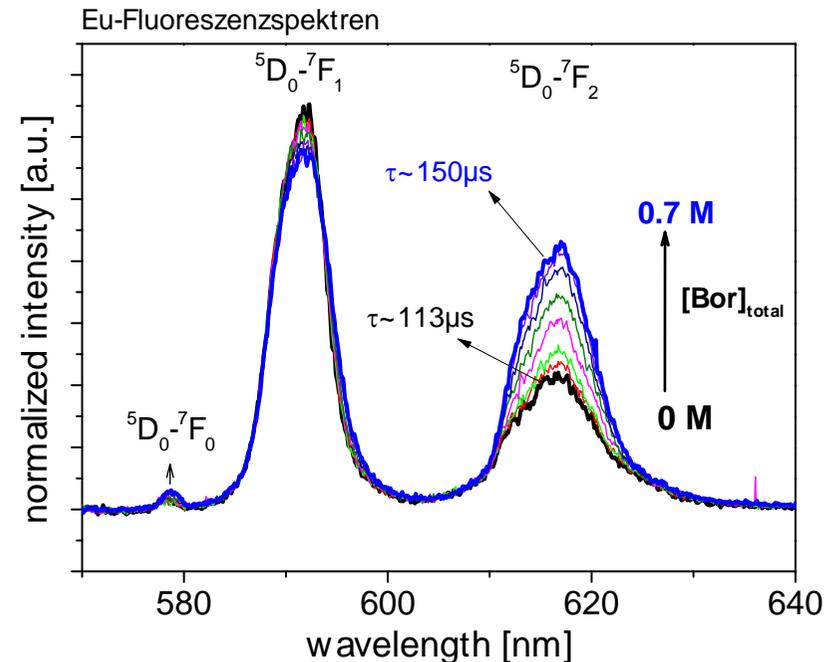
Energien in kJ/mol

Eu(III)-Polyborat-Komplexierung^[1]

- $[B]_t < 0.025 \text{ M}$ (kein Polyborat), $\text{pH} \leq 7$:
keine Wechselwirkung nachweisbar
- TRLFS + PARAFAC-Analyse:
 $[B]_t > 0.1 \text{ M}$, $\text{pH} \sim 6$, $I = 0.1 \text{ M}$:
1:1 Eu-(Poly)borat-Komplex
- Annahme: alle (Poly)boratspezies
„ $B(OR)_4^-$ “ (R = H und/oder (BO_3))
zeigen ähnliches Komplexverhalten

$$\beta_{11} = \frac{[EuB(OR)_4^-]}{[Eu^{3+}][B(OR)_4^-]}$$

$[B(OR)_4^-]$: Summe der Gleichgewichtskonzentrationen aller Polyborate



$$\log \beta_{11} = 2.02 \pm 0.32 \quad (2\sigma) \quad [1]$$

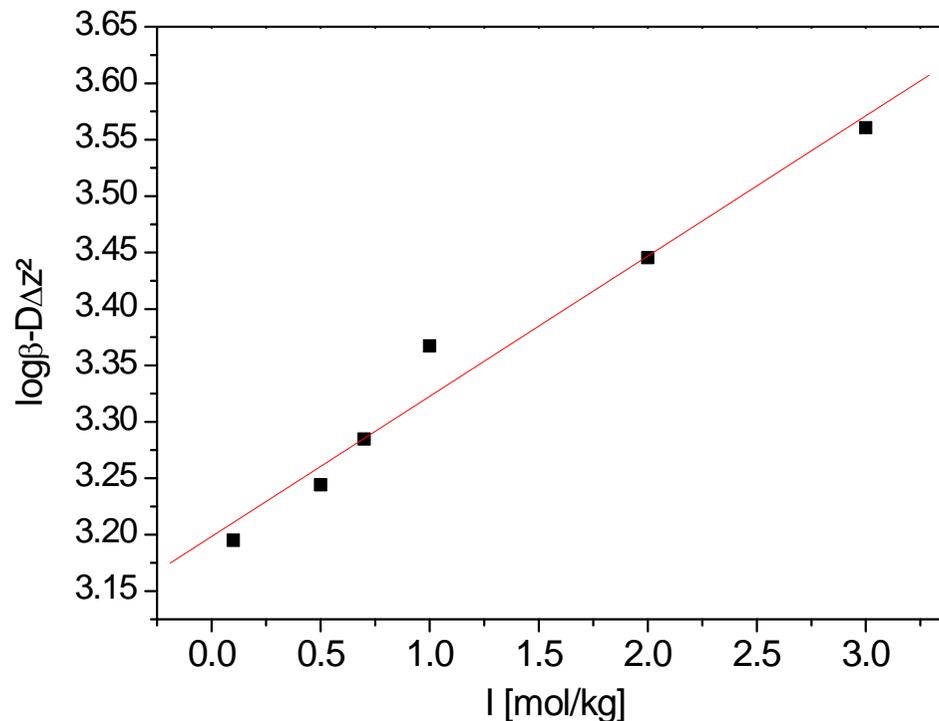
⇒ schwache Komplexierung

[1] J. Schott, J. Kretschmar, M. Acker et. al., Dalton Transaction 2014, 43, 11516

Eu(III)-Polyborat-Komplexierung

- Abhängigkeit von der Ionenstärke (NaCl-Medium)
- Anwendung SIT (*specific ion interaction theory*) für Ableitung $\log\beta^0$ ($I=0$)

$$\log\beta_n(T) - \Delta z^2 D = \log\beta^0(T) - \Delta\epsilon_n I_m$$



$$\log\beta_{11}^0 = 3,20 \pm 0,02$$

$$\Delta\epsilon = (-0,12 \pm 0,01) \text{ kg}\cdot\text{mol}^{-1}$$

Vergleich mit Acetat



$$\log\beta_{11}^0(\text{CmAc}^+) = 3,18 [2]$$

$$\Delta\epsilon = -0,17 \text{ kg}\cdot\text{mol}^{-1} [2]$$

⇒ Passt zu theoret. Rechnungen!

[2] Fröhlich et al., Dalton Trans., 2014, 43, 3958-3965

Eu(III)-Polyborat-Festphase [1]

□ Eu-Polyborat-Komplex:

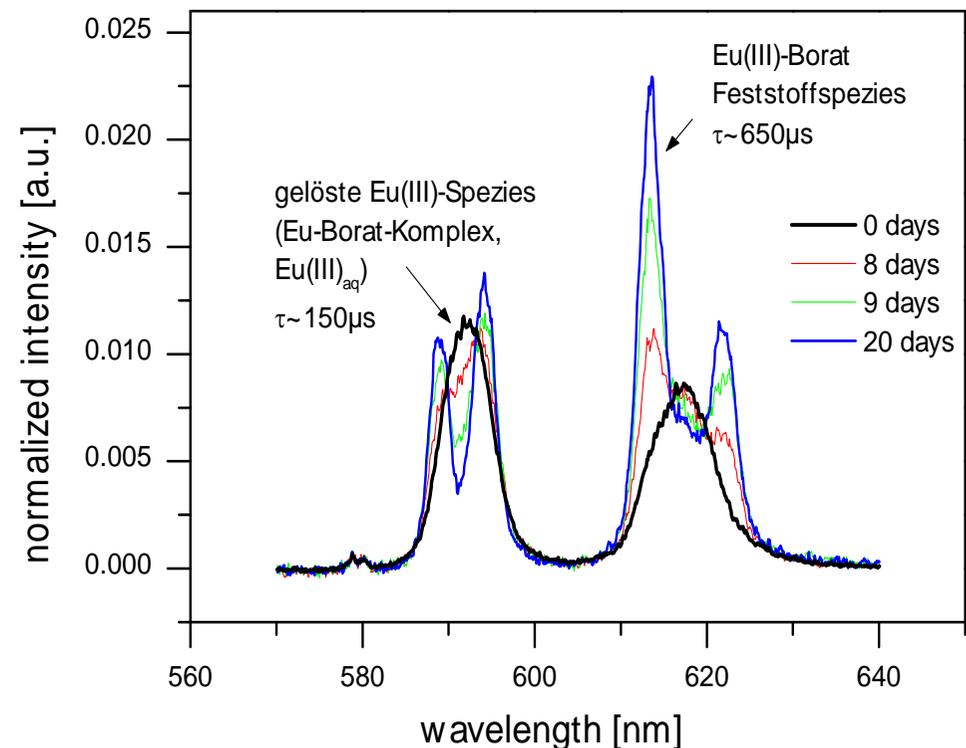
- Vorstufe für Eu-(Poly)borat-Festphase
- Bildung erst nach vielen Tagen

□ Bildung abhängig von

- Polyboratkonzentration
- Ionenstärke (NaCl, NaClO₄)

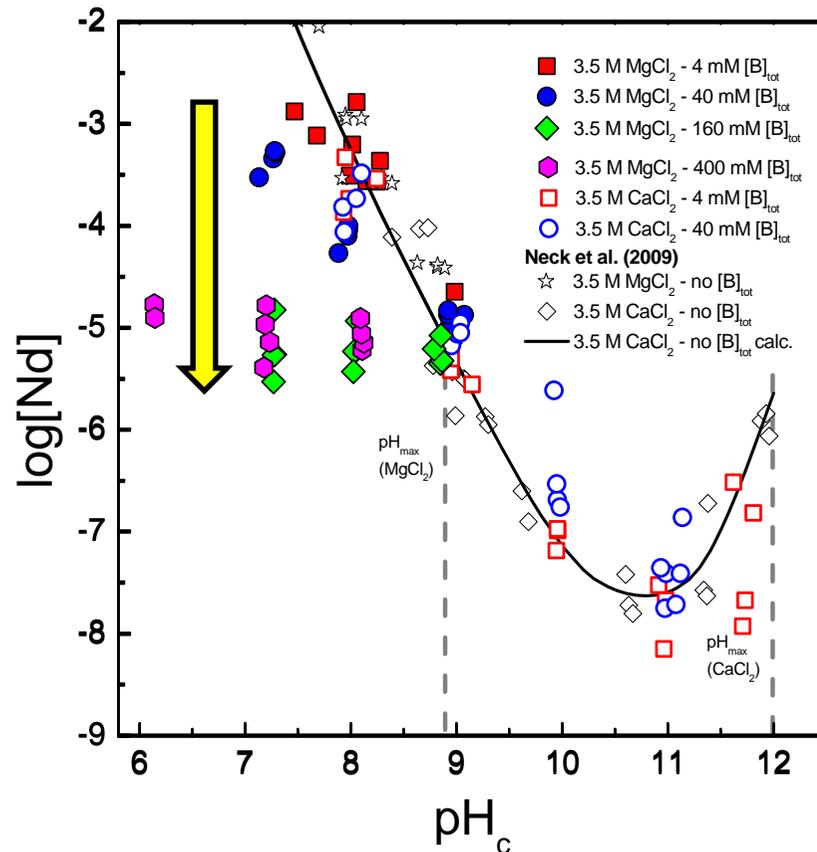
□ Charakterisierung

- amorph, Borat-Struktur,
- Eu:B-Verhältnis: 1:5 (Pentaborateinheit)



[1] J. Schott, J. Kretschmar, M. Acker et. al., Dalton Transaction, **2014**, 43, 11516

Löslichkeit von $\text{Nd}(\text{OH})_3(\text{am})$ in MgCl_2 und CaCl_2 [3]



- $[\text{B}]_{\text{total}} < 40 \text{ mM}$
kein Effekt des Borats
($7 \leq \text{pH}_c \leq 9$)
- $[\text{B}]_{\text{total}} \geq 40 \text{ mM}$
deutliche Löslichkeitserniedrigung
bis 3-4 Größenordnungen
für trivalente Actinide (Analogie)
($7 \leq \text{pH}_c \leq 9$, NaCl , MgCl_2 -Lösungen)
- Hyperalkalische Lösungen ($\text{pH}_c > 10$)
kein Effekt des Borats

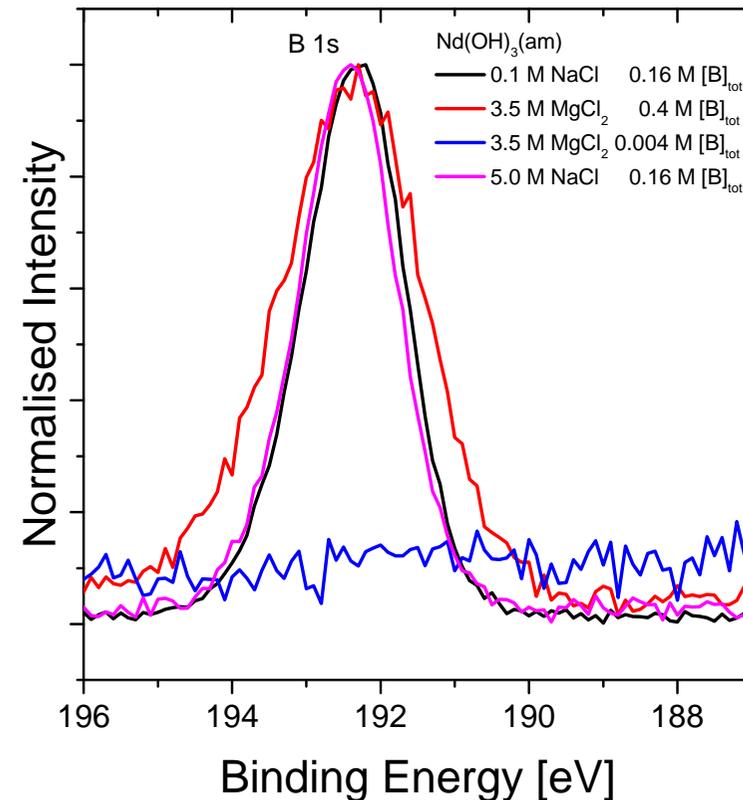
[3] K. Hinz, M. Altmaier, X. Gaona et. al. New Journal of Chemistry, 2014, DOI 10.1039/C4NJ01203H

Feste Nd(III)-Boratphase [3]

- Analyse der Löslichkeitskurve:
 Transformation des initialen $\text{Nd}(\text{OH})_3$
 in weniger lösliche Nd-Boratphase

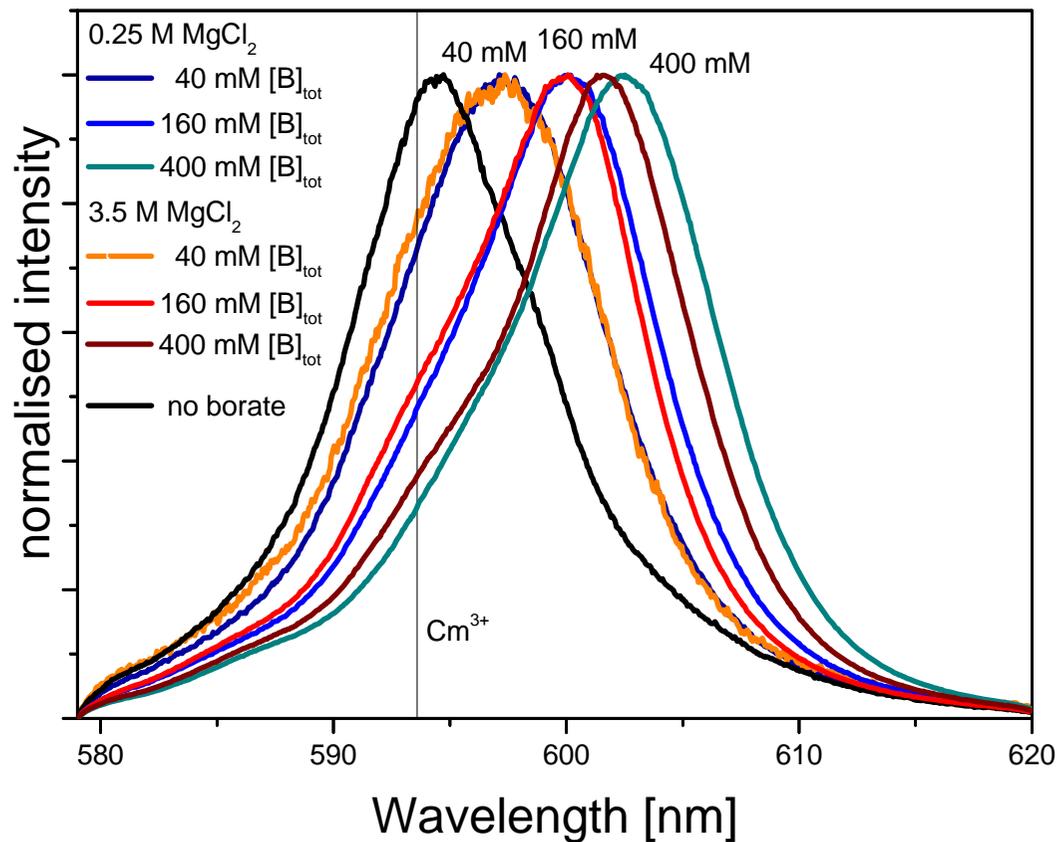
- XRD-Untersuchungen
 keine sekundäre kristalline Phase

- XPS-Untersuchungen
 Nd-Boratphase auf $\text{Nd}(\text{OH})_3$ -Oberfläche!



[3] K. Hinz, M. Altmaier, X. Gaona et. al. New Journal of Chemistry, **2014**, DOI 10.1039/C4NJ01203H

TRLFS-Untersuchungen mit Cm(III) [4]



Beispielspektren: MgCl_2 , $\text{pH}_c \sim 8$, $[\text{Cm(III)}] = 10^{-7} \text{ M}$

- $[\text{B}]_{\text{total}} \leq 40 \text{ mM}$
nur geringe Verschiebung
⇒ kaum Cm(III)-Borat-
komplexierung
- $[\text{B}]_{\text{total}} > 40 \text{ mM}$
deutliche Rotverschiebung
⇒ deutliche Cm(III)-Borat-
Komplexierung
- TRLFS liefert klare
Bestätigung der An(III)-
Boratkomplexierung

[4] K. Hinz, M. Altmaier, X. Gaona et. al. New Journal of Chemistry, **2014**, DOI 10.1039/C4NJ01203H

Zusammenfassung

- ❑ **Exzellente Zusammenarbeit und Synergien verschiedener deutscher Forschungseinrichtungen innerhalb des Actinidenverbunds!**
- ❑ **Erstmalig:**
An(III)-Borat-Wechselwirkung detailliert untersucht ($6 \leq \text{pH} \leq 8$)
schwache An-(Poly)boratkomplexe ($\log\beta$ für 1:1 Komplex bestimmt)
Theorie: schwache Monoboratkomplexe von Am^{3+} und UO_2^{2+}
- ❑ keine Erhöhung der Löslichkeit von $\text{Nd}(\text{OH})_3$ (Analogon für $\text{An}(\text{OH})_3$)
Rückgang der Löslichkeit bei hohen [B]: 3-4 Größenordnungen ($7 \leq \text{pH} \leq 9$)
- ❑ Bildung fester Ln(III)/An(III)-Boratphasen unter endlagerrelevanten Bedingungen

Relevanz für die Endlagersicherheitsanalyse

- ❑ Ableitung thermodynamischer Daten für relevante Subsysteme
(\Rightarrow spätere Implementierung in THEREDA)
- ❑ Qualitativ neues und verbessertes Prozessverständnis gewonnen!
- ❑ keine Mobilisierung von An(III) durch Borate zu erwarten
- ❑ Aber: Immobilisierung durch Bildung sekundärer Boratfestphasen möglich

Danksagung

- Bundesministerium für Wirtschaft und Energie
- Projektträger Karlsruhe, Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)
- allen beteiligten Verbundpartnern und Mitarbeitern



Danke für Ihre Aufmerksamkeit

Quantenmechanische Modellierung

- Modellkomplexe: $AmB(OH)_2R(H_2O)_n^{2+}$

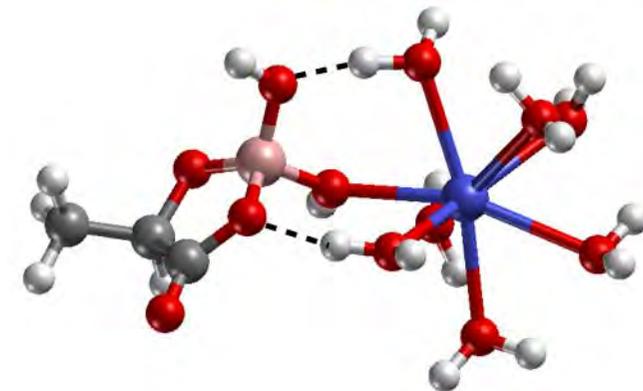
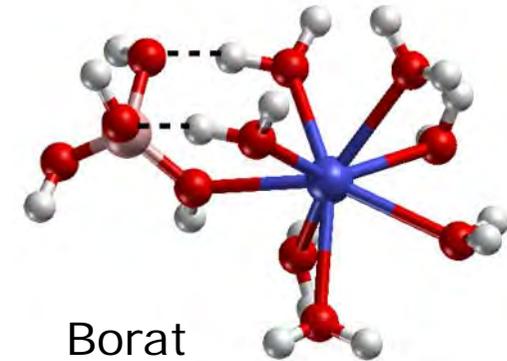
Koordinationszahl 8, monodentat

- $R = (OH)_2$ Borat
- $R = CH_3HCOCOO$ Lactatoborat

- Vergleich ΔG (kJ/mol):

Borat	-112
Acetat	-90
Lactatoborat	-60
Perchlorat	0

⇒ Lactatoborat komplexiert schwächer als Borat



Rückhaltungsmodelle für Spaltprodukte

—

Quantifizierung und Abbau von Unsicherheiten

Verbundvorhaben von GRS, KIT-INE, HZDR, FZJ



Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH



Vinzenz Brendler // 25. November 2014 // PTKA-Karlsruhe

Übersicht

1. Der Verbund
2. Ziele und Schwerpunkte
3. Wichtige Ergebnisse
4. Anwendung in der Langzeitsicherheitsanalyse
5. Sichtbarkeit & Ausblick

Der Verbund

Geochemie-Verbund:

Strategiepapier vom August 2009 mit
den Forschungsschwerpunkten

1. **Temperatureffekte – Thermodynamische Daten für höhere Temperaturen**
2. Radionuklidrückhaltung durch Mischkristallbildung in aquatischen Systemen – Feste Lösungen
3. **Reaktiver Stofftransport**
4. **Verhalten langlebiger Spalt- und Aktivierungsprodukte im Nahfeld eines Endlagers und Möglichkeiten ihrer Rückhaltung**

VESPA = Beginn der Umsetzung

Laufzeit 1.7.2010-30.6.2014

Förderkennzeichen 02 E 107X0

Geochemische Forschungsfelder für den Langzeitsicherheitsnachweis zur Endlagerung hochradioaktiver Abfälle



Vorschläge für gemeinsame Forschungsarbeiten:

Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Institut für Nukleare Entsorgung - Forschungszentrum Karlsruhe (FZK-INE)

Institut für Energieforschung - Forschungszentrum Jülich (FZJ-IEF-6)

Institut für Radiochemie - Forschungszentrum Dresden-Rossendorf (FZD-IRC)

August 2009

Ziele und Schwerpunkte

Prämisse: Viele Langzeitsicherheitsrechnungen für Endlager für hochradioaktive Abfälle in Salz- und in Tonformationen ergeben die Spalt- und Aktivierungsprodukte ^{14}C , ^{36}Cl , ^{79}Se , ^{99}Tc , ^{129}I und ^{135}Cs als bestimmend für die Dosis.

Bedarf: umfassende Wissensbasis zu den o. g. Radionukliden für eine quantitative Beschreibung der Mobilisierung und des Transports auf dem Wasserpfad

Primäres Ziel: Abbau entsprechender Konservativitäten in den Annahmen für Langzeitsicherheitsnachweise



Notwendige Informationen für die o. g. Radionuklide:

- Identifizierung und Charakterisierung relevanter Rückhaltemechanismen
- geochemische / thermodynamische Daten basierend auf Experimenten

Fokussierung auf: Randbedingungen in den Wirtsgesteinen Salz und Ton im Temperaturbereich 25 - 90°C.

Wichtige Ergebnisse

A) Lösungsschemie

- Selen
- Technetium
- Cäsium

B) Rückhaltung an Nahfeld-Phasen

- Fe Sekundärphasen
- Layered Double Hydroxides (LDH)

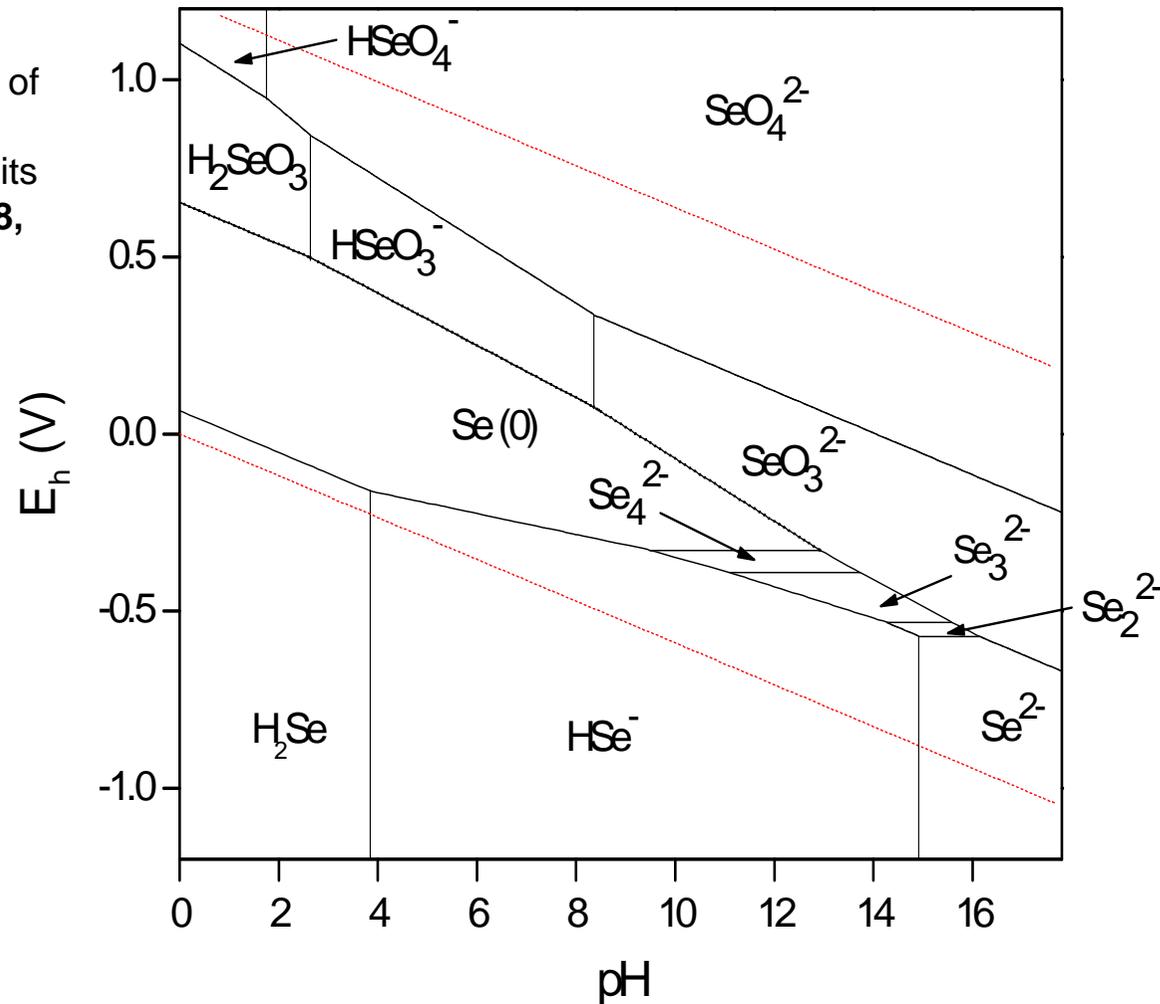
C) Implementierung in Modelle der Langzeitsicherheitsanalyse

Lösungschemie des Selen

Selen-79: β -Emitter, Spaltprodukt des ^{235}U , Halbwertszeit $\sim 3.3 \cdot 10^5$ Jahre

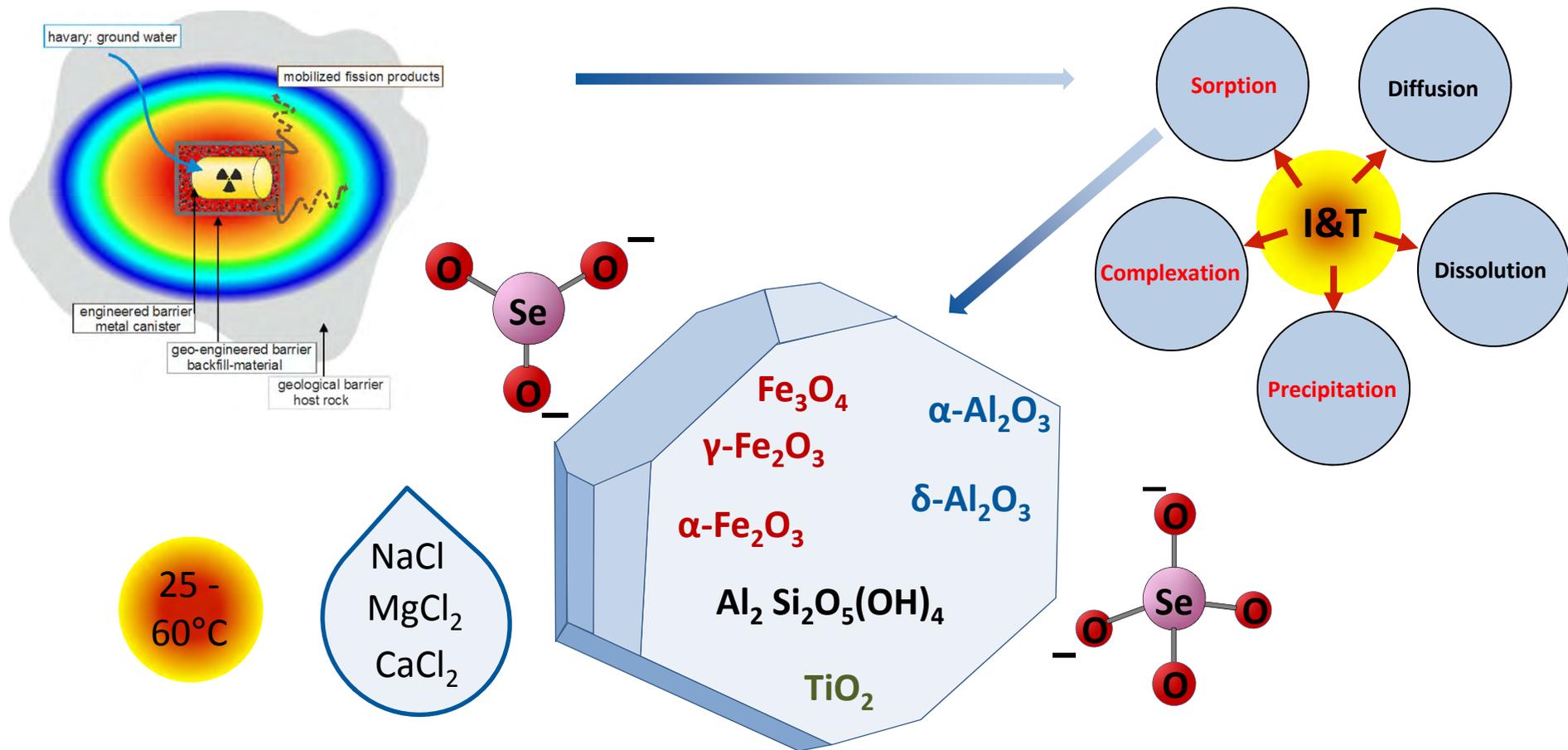
Jörg, G. et al. (2010): Preparation of radiochemically pure Se-79 and highly precise determination of its half-life. *Appl. Radiat. Isotop.* **68**, 2339-2351

Quelle für $\log K^0$ und E^0 :
NEA-TDB (Olin, 2005)



Pourbaix-Diagramm E_h -pH, $[\text{Se}]_{\text{aq}} = 10^{-6} \text{ M}$

Selen: Löslichkeiten, Komplexierung und Sorption

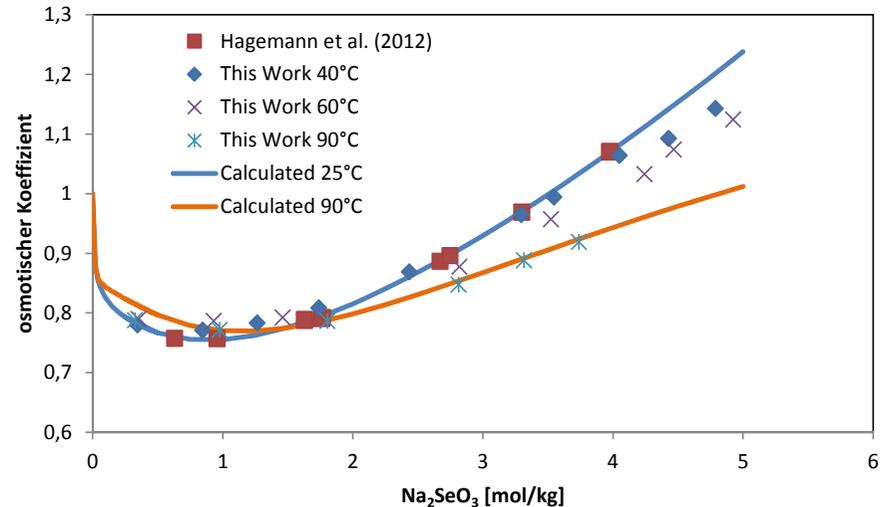


Verständnis des Einflusses von **pH, E_H , Temperatur, Mineral und Ionenstärke** auf die Selen-Speziation ist essentiell für die Langzeitsicherheitsanalyse.

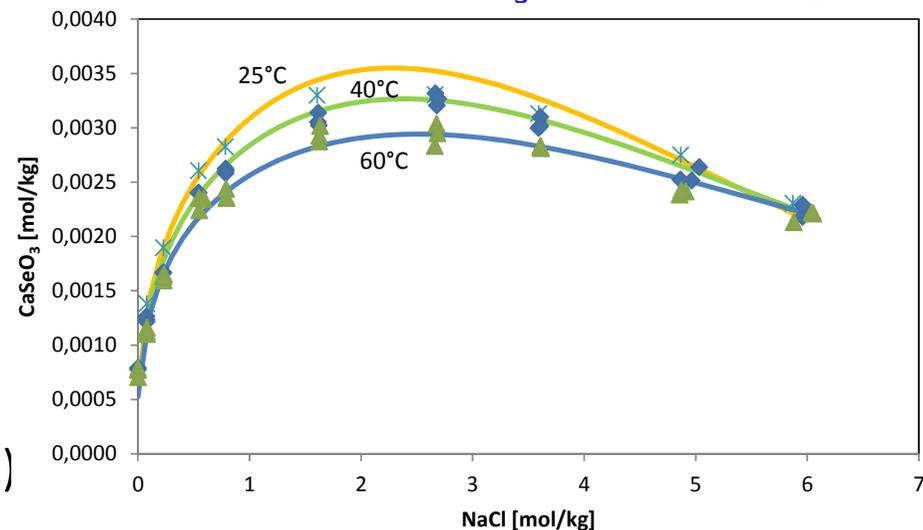
Selenit & Selenat: Aktivitätsmodelle und Löslichkeiten

- **Bewertung Datenlage Selen**
(Oxidationsstufen -II, 0, +IV, +VI)
post-NEA TDB 2005
- **Selen-Speziation** als $f([\text{Se}], \text{pH}, E_{\text{H}}, I, T, [\text{Na}^+], [\text{Ca}^{2+}], [\text{Mg}^{2+}])$
 - Dimerisierung, Nachweis mittels NMR, IR und DFT
 - Strukturelle Parameter
 - Kaum von T abhängig
- **Aktivitätsmodell für Selenit & Selenat** in Lösungen von 25-90°C
(Basis: Isopiestik, Löslichkeit)
- **Löslichkeitsgrenze für Selenit** in Gegenwart von Ca und bei variablem NaCl-Gehalt (\rightarrow Ton/Salz)

Osmotischer Koeffizient von Na_2SeO_3 Lösungen



Löslichkeit von CaSeO_3 in NaCl-Lösungen

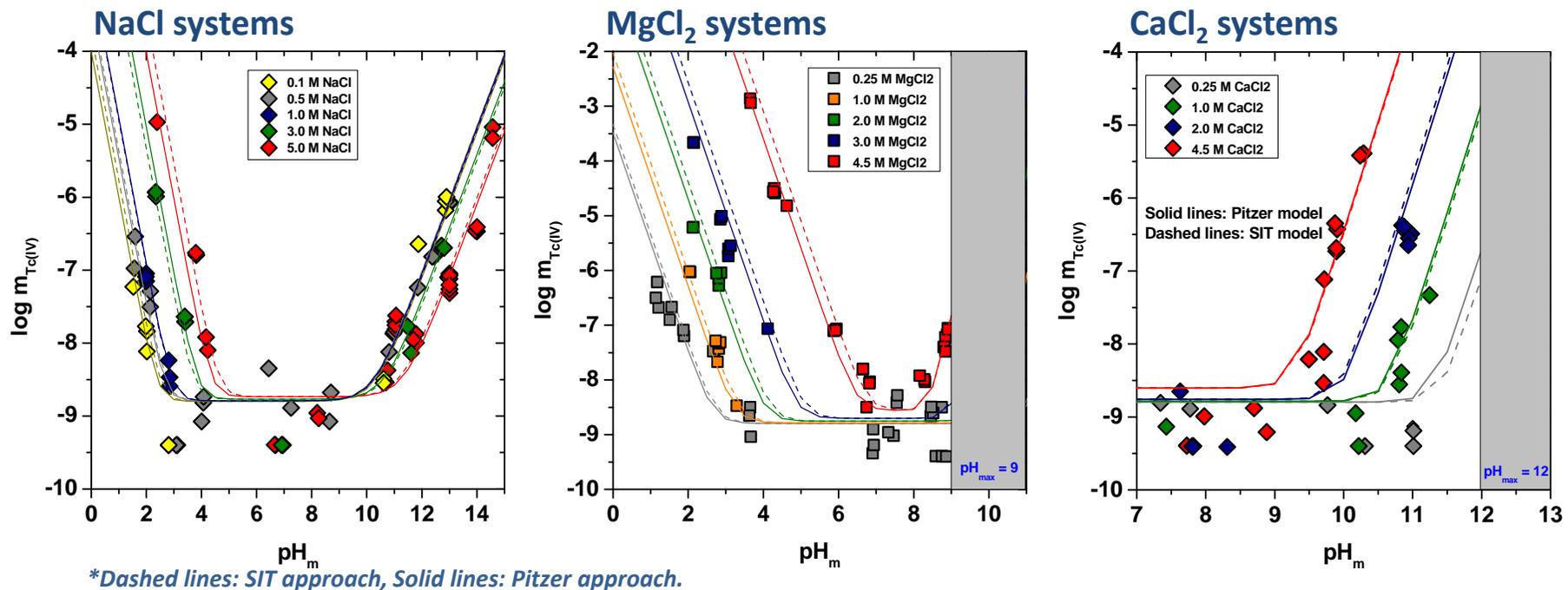


Lösungschemie des Technetiums

- Tc(IV) in NaCl, MgCl₂ und CaCl₂

Technetium-99:

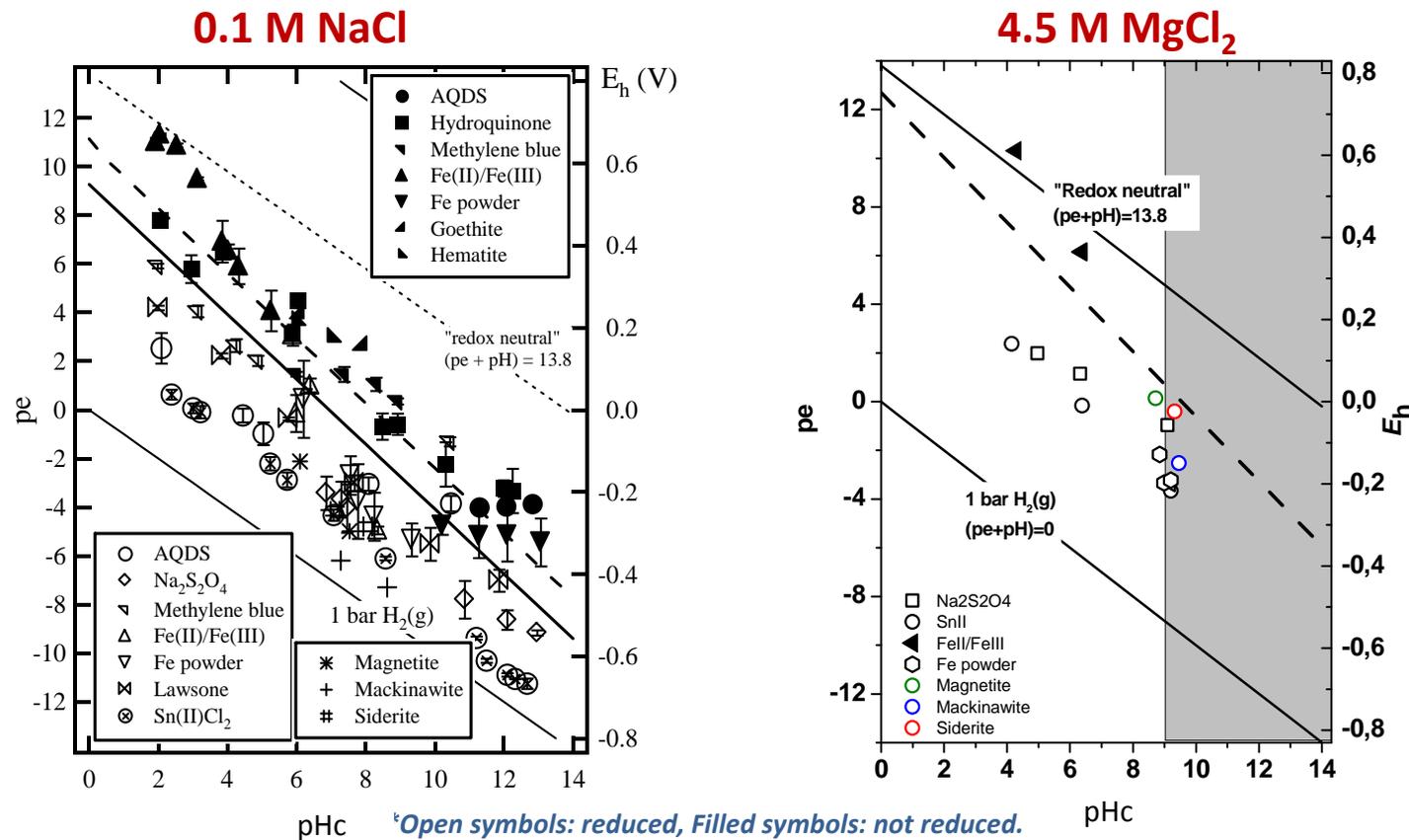
β-Emitter, Spaltprodukt von ²³⁵U und ²³⁹Pu, Halbwertszeit 2,1·10⁵ Jahre



- Chemische, thermodynamische und Aktivitätsmodelle (SIT, Pitzer) für Tc(IV) in salinaren Systemen $\text{H}^+ - \text{Na}^+ - \text{Mg}^{2+} - \text{Ca}^{2+} - \text{OH}^- - \text{Cl}^-$ wurden abgeleitet

PhD thesis E. Yalcintas
Yalcintas et al. (2014) RCA (accepted)

Tc(VII)/Tc(IV) Redoxverhalten in NaCl und MgCl₂ Lösungen

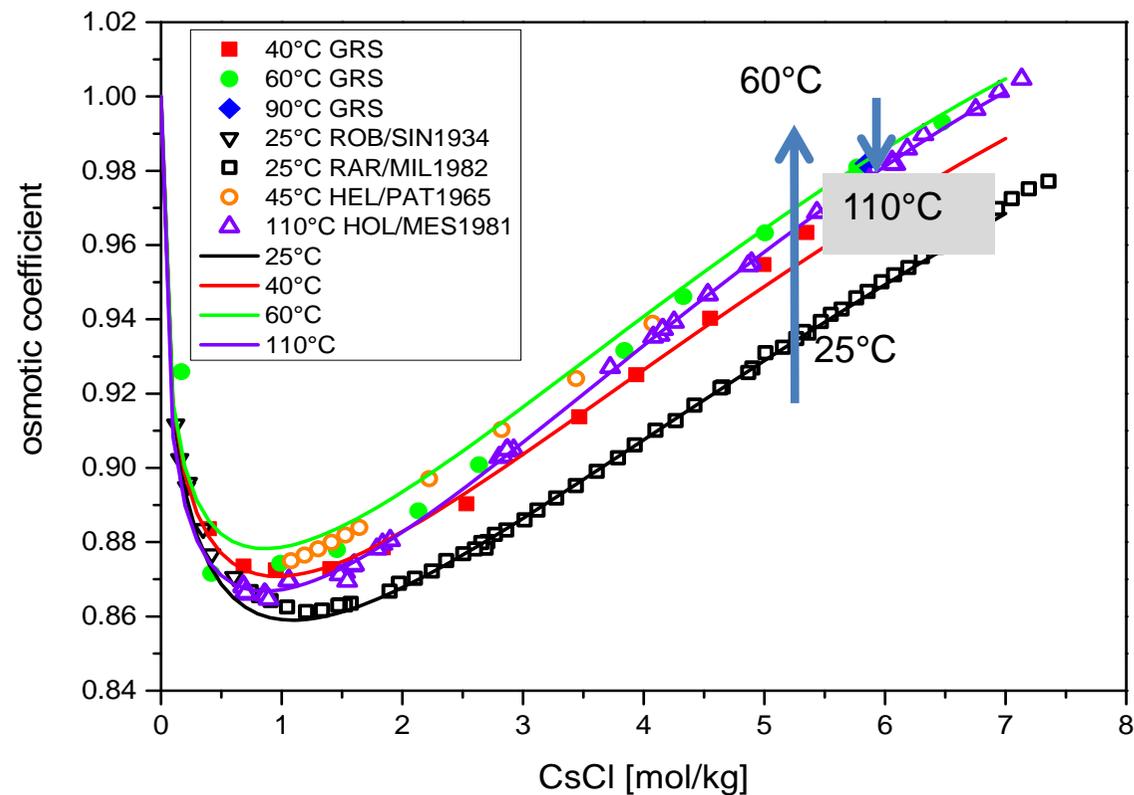


- Tc(VII)/Tc(IV) Redoxgrenzen in verdünnten und salinaren Systemen systematisch charakterisiert => Gute Übereinstimmung mit thermodynamischen Berechnungen.
- Identifizierung von Bedingungen für Tc(IV) und damit starke Tc-Rückhaltung.

Lösungschemie des Cäsiums

Binäre Lösungen CsCl + Cs₂SO₄

- Isopiestik-Experimente: kompletter, konsistent polythermer Parametersatz für das Pitzer-Model für 25-110°C



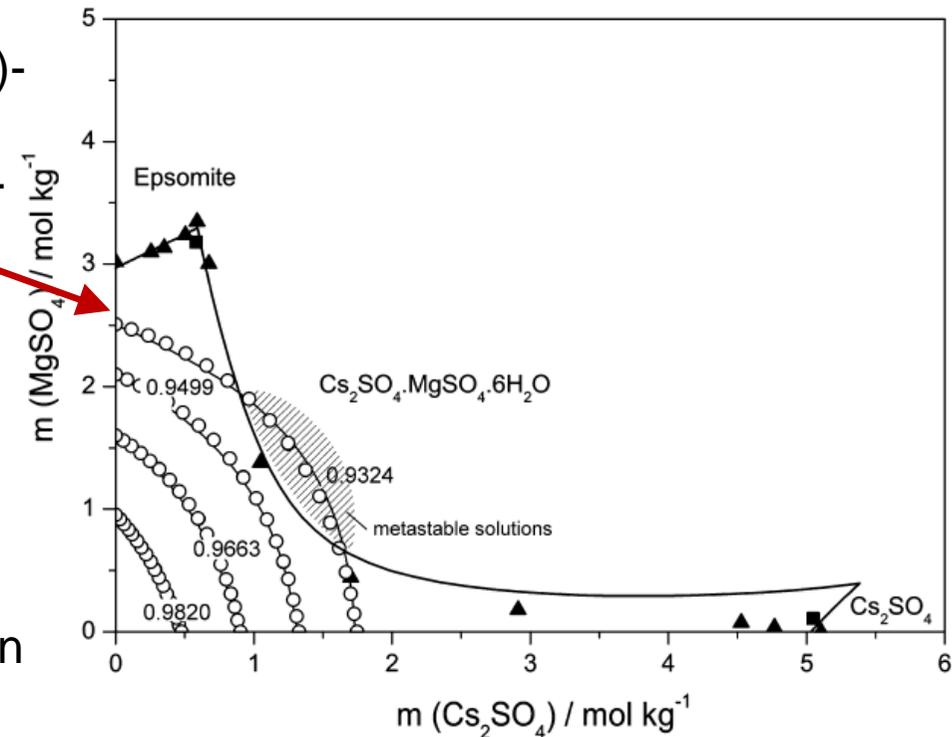
Cs – ternäre Systeme

- Alle ternären Lösungen Cs-(Na,K,Mg)-
(Cl,SO₄) bei 25°C isopiestic
untersucht: stark gekrümmte Wasser-
Isoaktivitätslinien

→ Hinweis auf Komplexbildung
(bislang nicht explizit berücksichtigt)

→ Ternäre Wechselwirkungs-
parameter können nicht aus
Eigenschaften einfacher Salzlösungen
abgeschätzt werden

→ zusätzliche Messdaten benötigt
(Isopiestik oder Mischungswärmen)



T. Scharge, A. G. Muñoz, and H. C. Moog, Journal of Chemical & Engineering Data 2012 57 (6), 1637-1647.

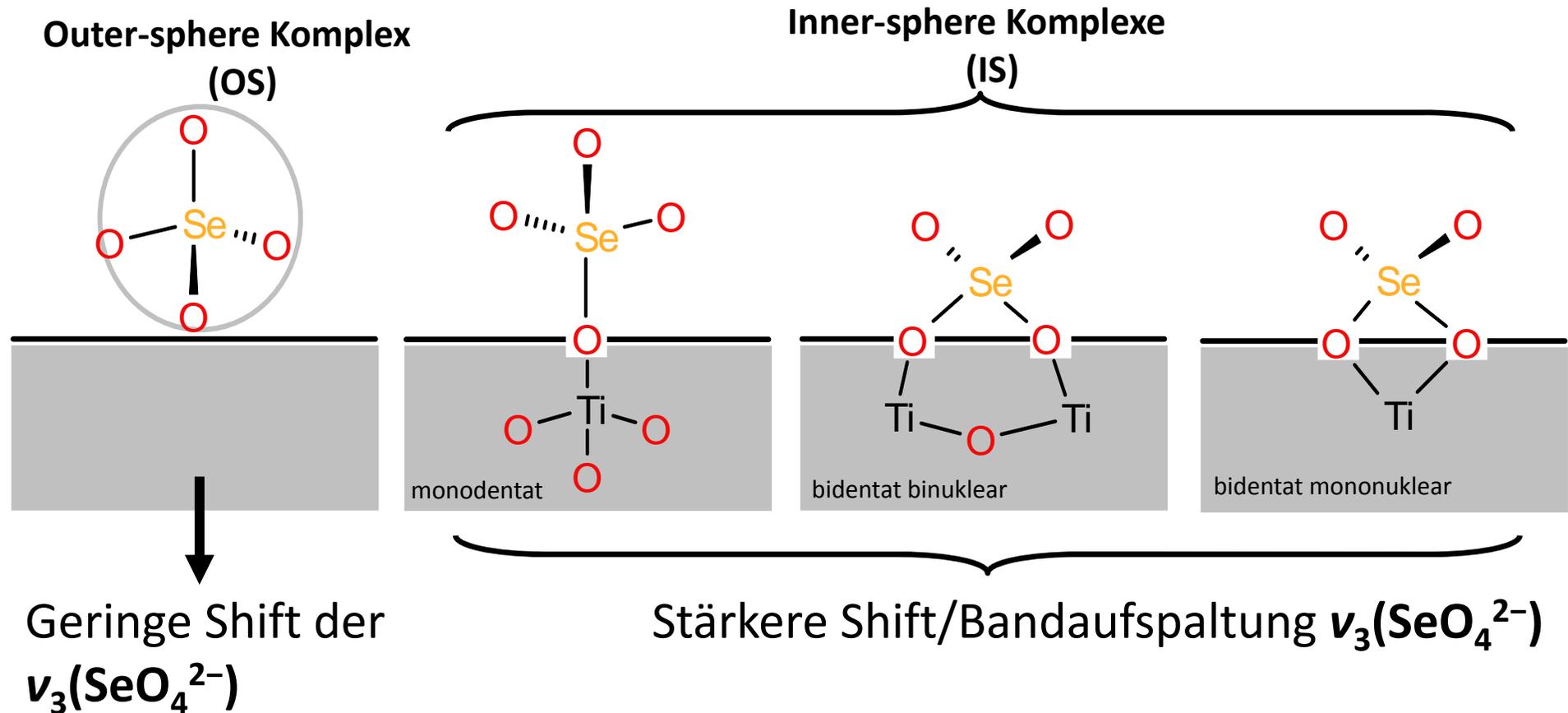
T. Scharge, A. G. Muñoz, and H. C. Moog, Journal of Chemical & Engineering Data 2013 58 (1), 187-188.

Rückhaltung an Fe-Sekundärphasen

Charakterisierung der Sorption von Selen an Hämatit und Maghämilit
(mit Quervergleich zu Kaolinit, δ -Al₂O₃ und Anatas)

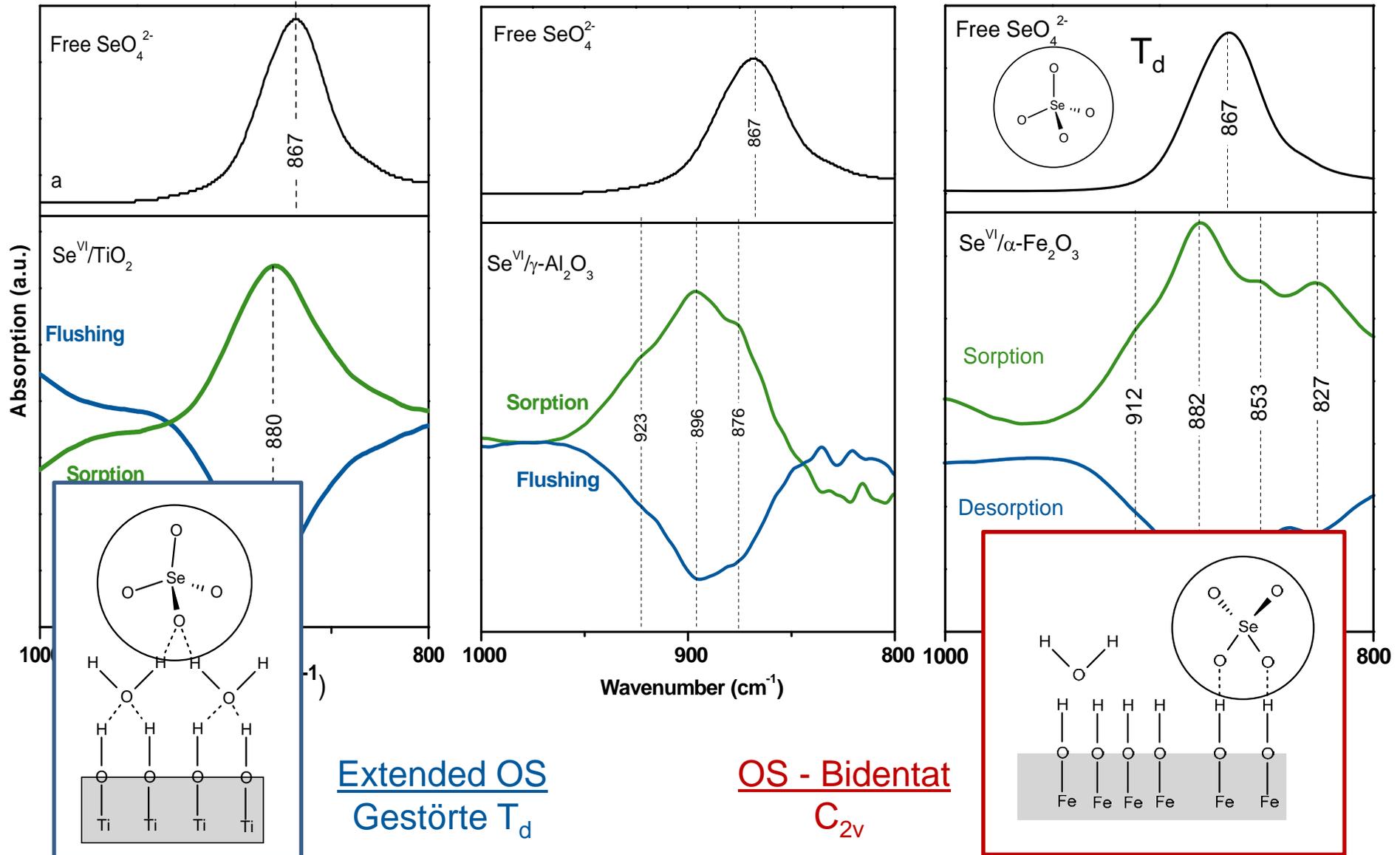
- i. strukturelle Untersuchungen
- ii. Effekte von pH, Redoxpotential, Temperatur und Ionenstärke
- iii. (quasi)thermodynamische Modellierung
(Oberflächenkomplexierungsmodelle - SCM)

Mögliche Typen von Selen-Oberflächenkomplexen - Aufklärung mittels ATR FT-IR



Freies hydratisiertes $\text{SeO}_4^{2-} \rightarrow T_d$ Symmetrie
 $\rightarrow \nu_3$ asymmetrische Se-O Streckschwingung ist IR-aktiv im Mid-IR

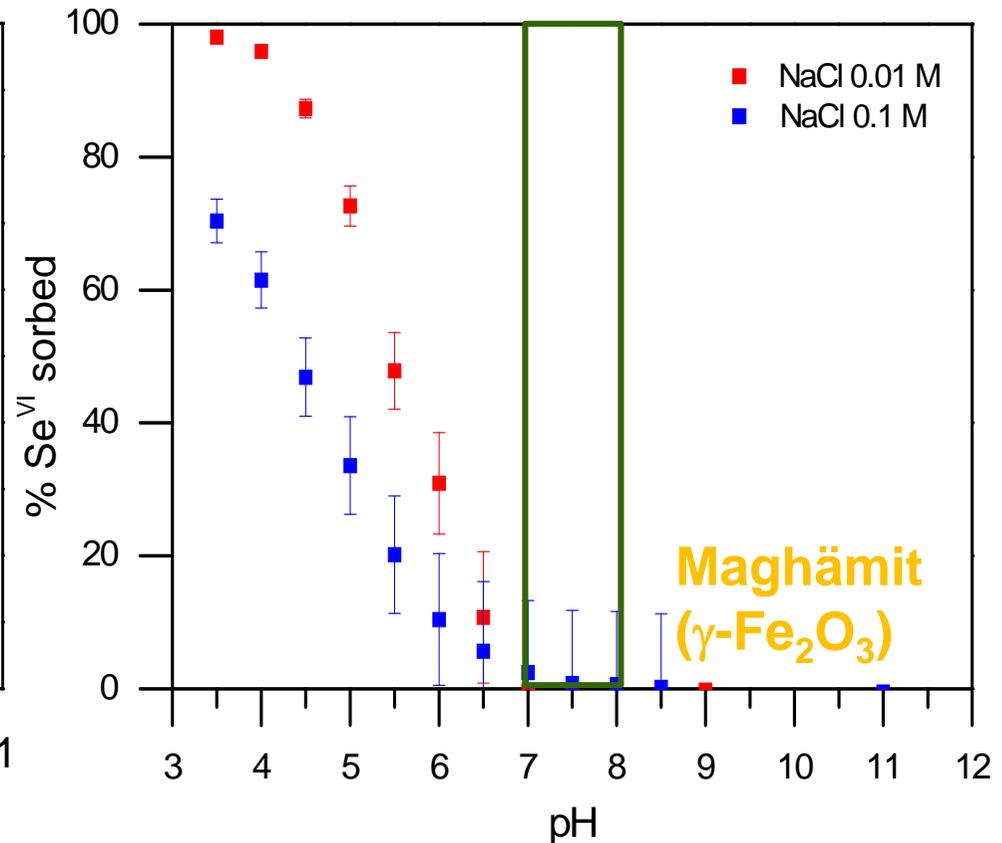
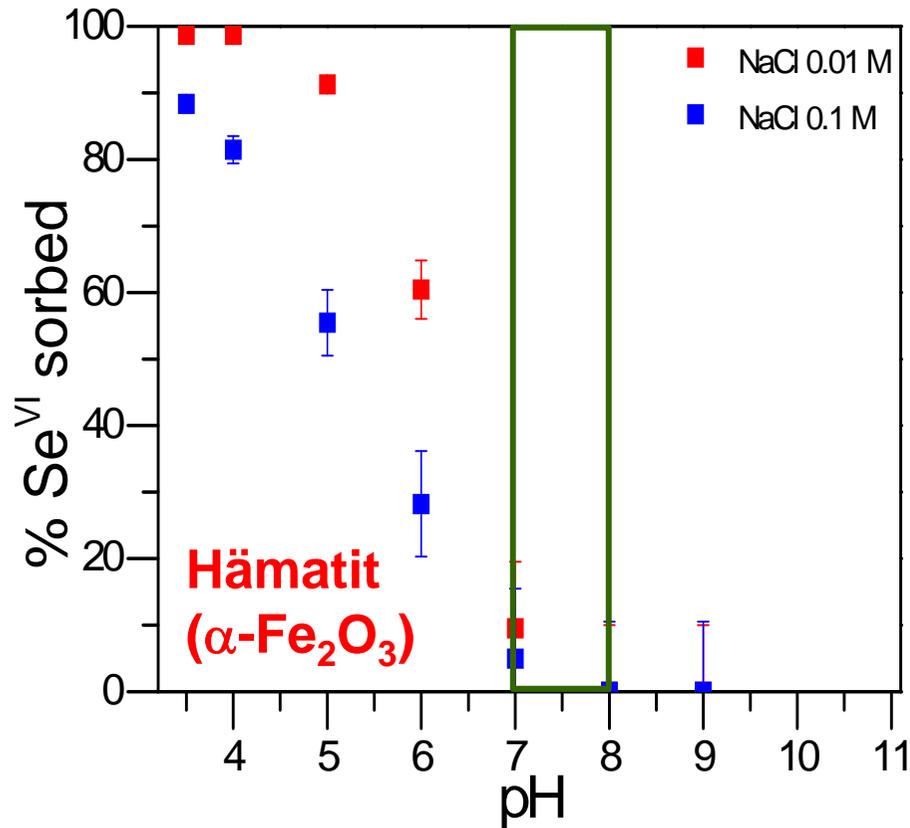
Oberflächenkomplexierung Se(VI)



Extended OS
Gestörte T_d

OS - Bidentat
C_{2v}

Sorption von Se(VI): Effekt von pH & I

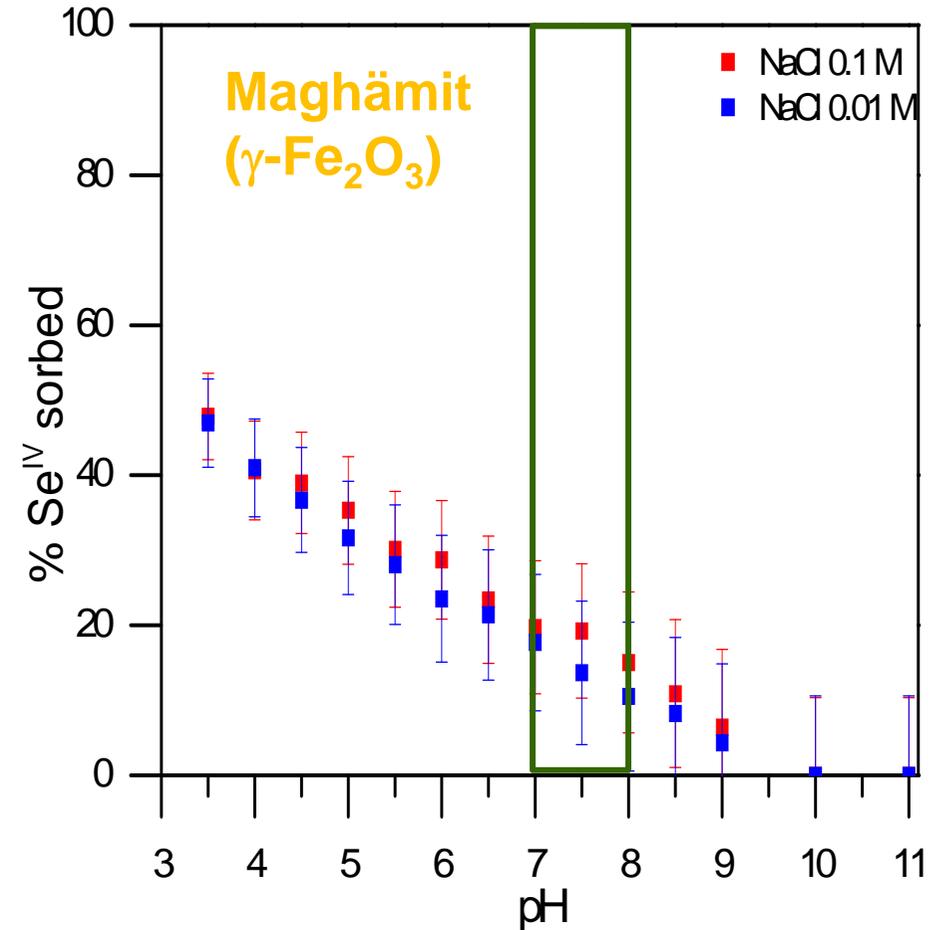
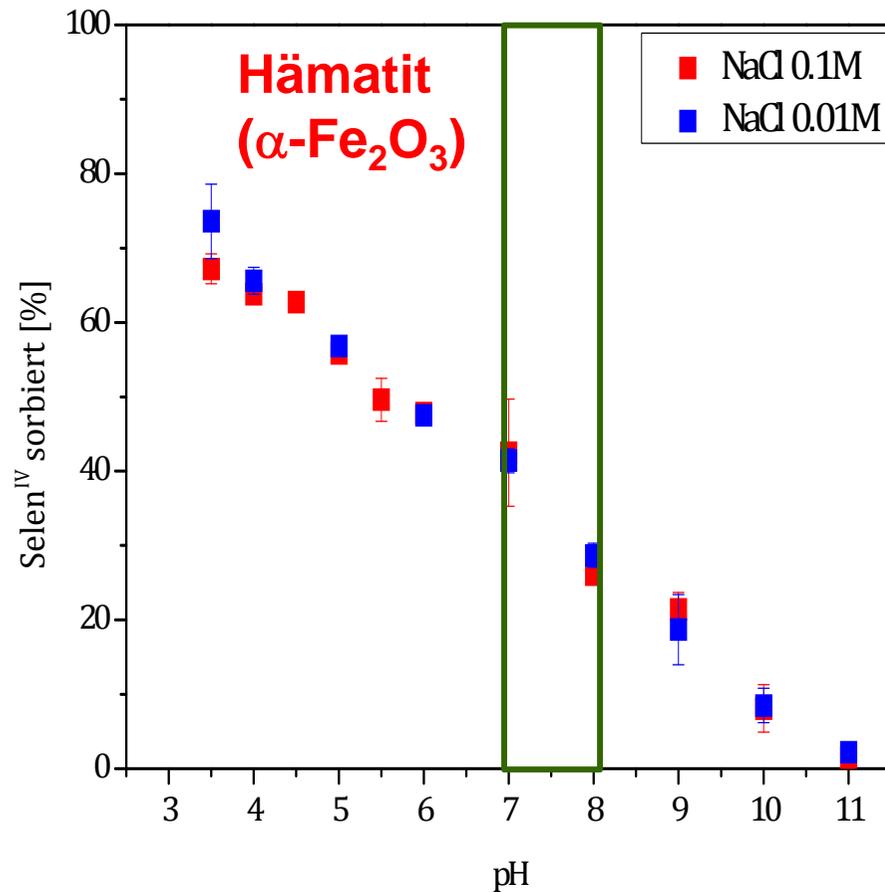


**Steigender pH und Ionenstärke
⇒ Verringerte Se(VI) Sorption**

⇒ OS Komplex

**Keine Sorption @ pH 7-8
⇒ Se(VI) bleibt mobil**

Sorption von Se(IV): Effekt von pH & I



**Höhere Ionenstärke
⇒ Kein Effekt auf
Se(IV) Sorption**

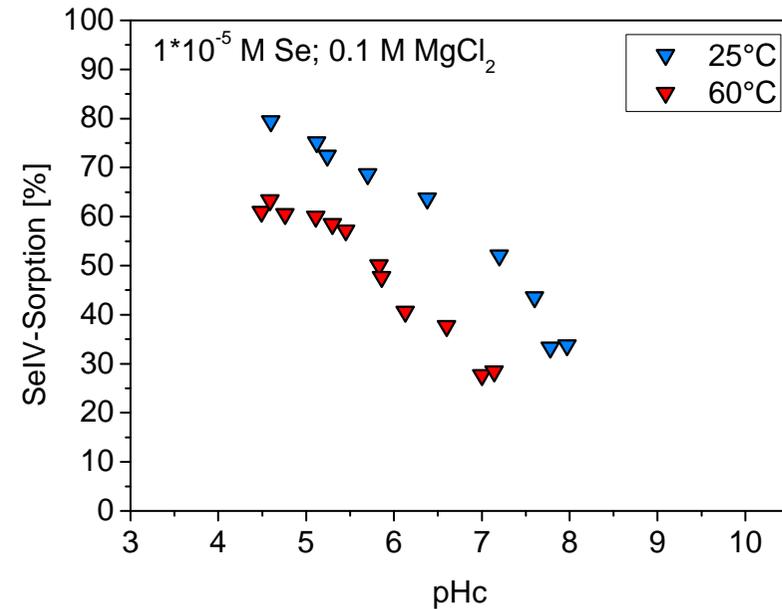
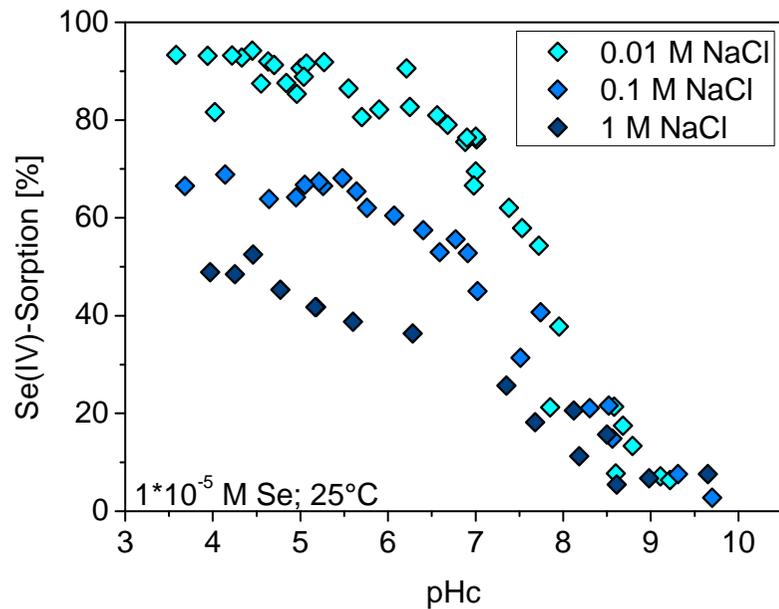
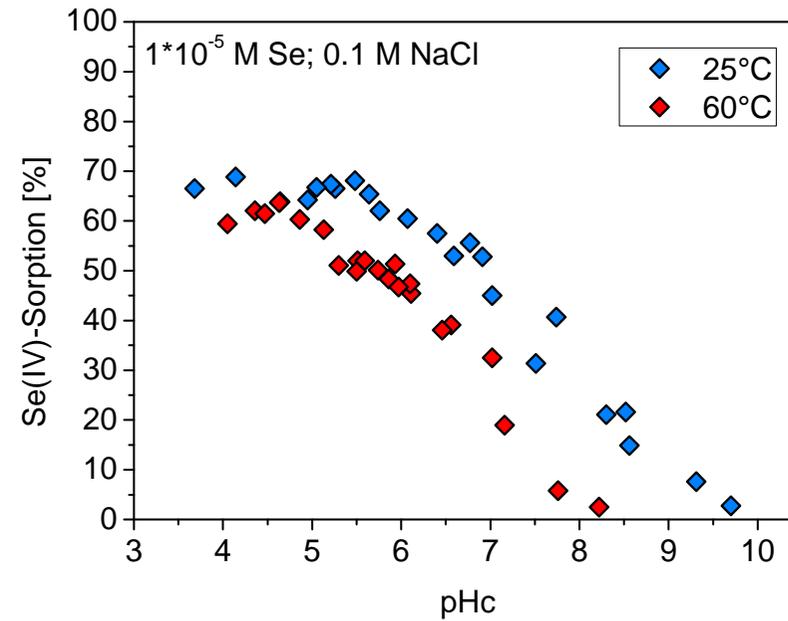
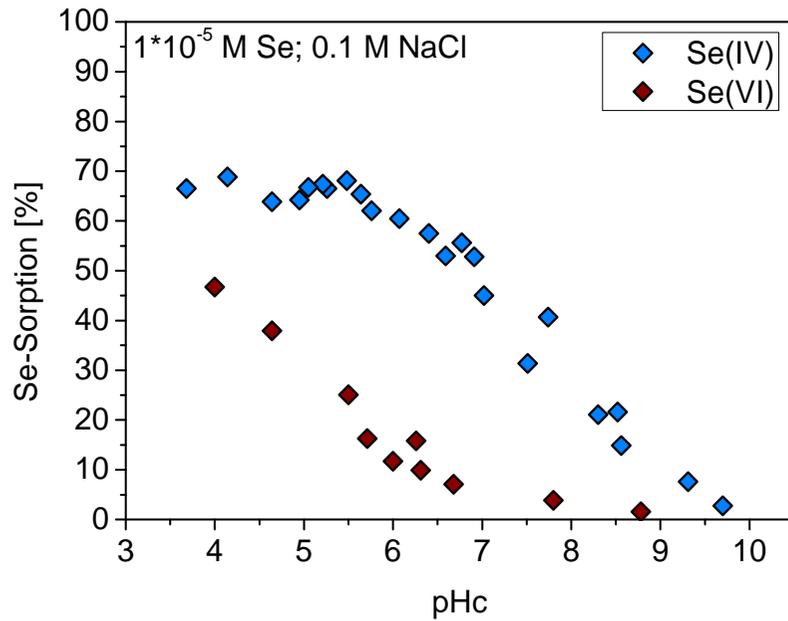
⇒ IS Komplexe

**Sorption @ pH 7-8 ⇒
Immobilisierung von Se(IV)**

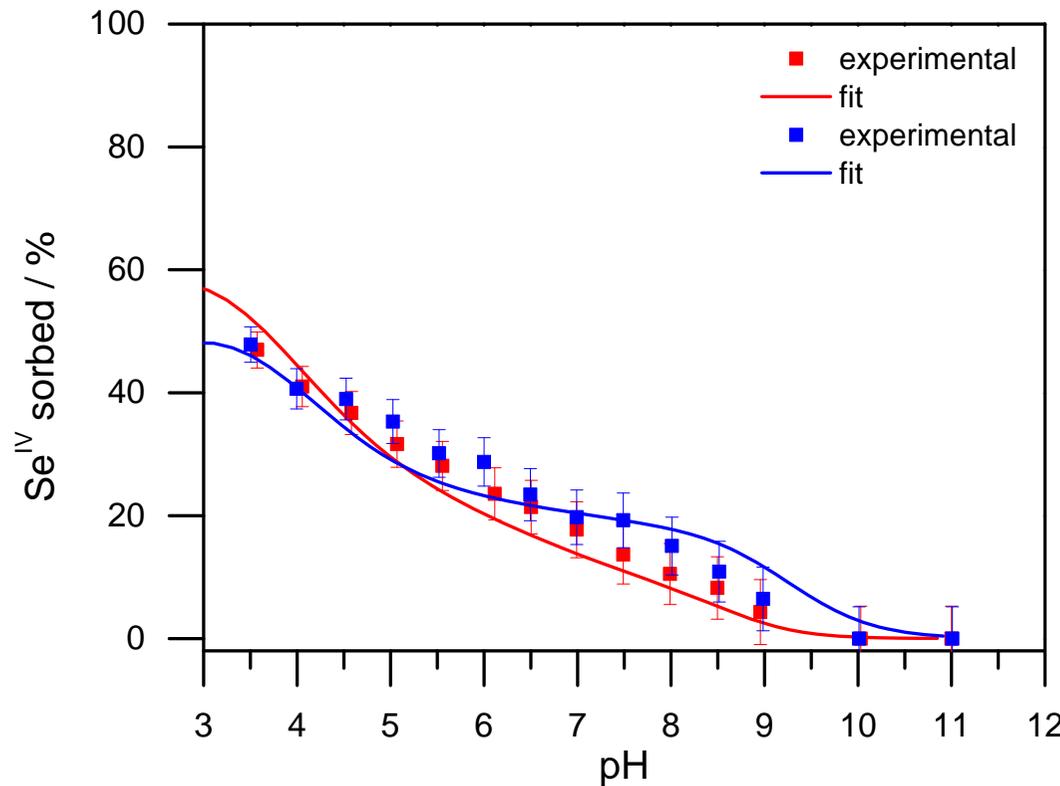
Sorption von Selen: Strukturelle Befunde

- Experimentelle Basis:
Batch als $f(I)$, Zeta-Potential, ATR FT-IR, EXAFS
- **Se(VI)** \Rightarrow vorrangig OS Komplexe = Physisorption
= **hohe Reversibilität**
- **Se(IV)** \Rightarrow vorrangig IS Komplexe = Chemisorption
= Möglichkeit des Einbaus in Festphasen = **geringere Reversibilität**
- Verlässliche Oberflächenspeziation des Se: **solide Basis für SCM**
- **Temperatur-Erhöhung**: Oberfläche von Fe-Mineral wird beeinflusst
 - \Rightarrow Verringerung der Se(VI) und Se(IV)-Sorption
 - \rightarrow **Erhöhte Mobilität von Se**

Se-Sorption auf $\delta\text{-Al}_2\text{O}_3$



Se(IV) Sorption an Maghämmit: Modellierung



**FITEQL
gekoppelt mit
UCode**

**Basic Stern
Model**

**Input von EXAFS
für die
Stöchiometrie**



$\log K_1 = 5.86$

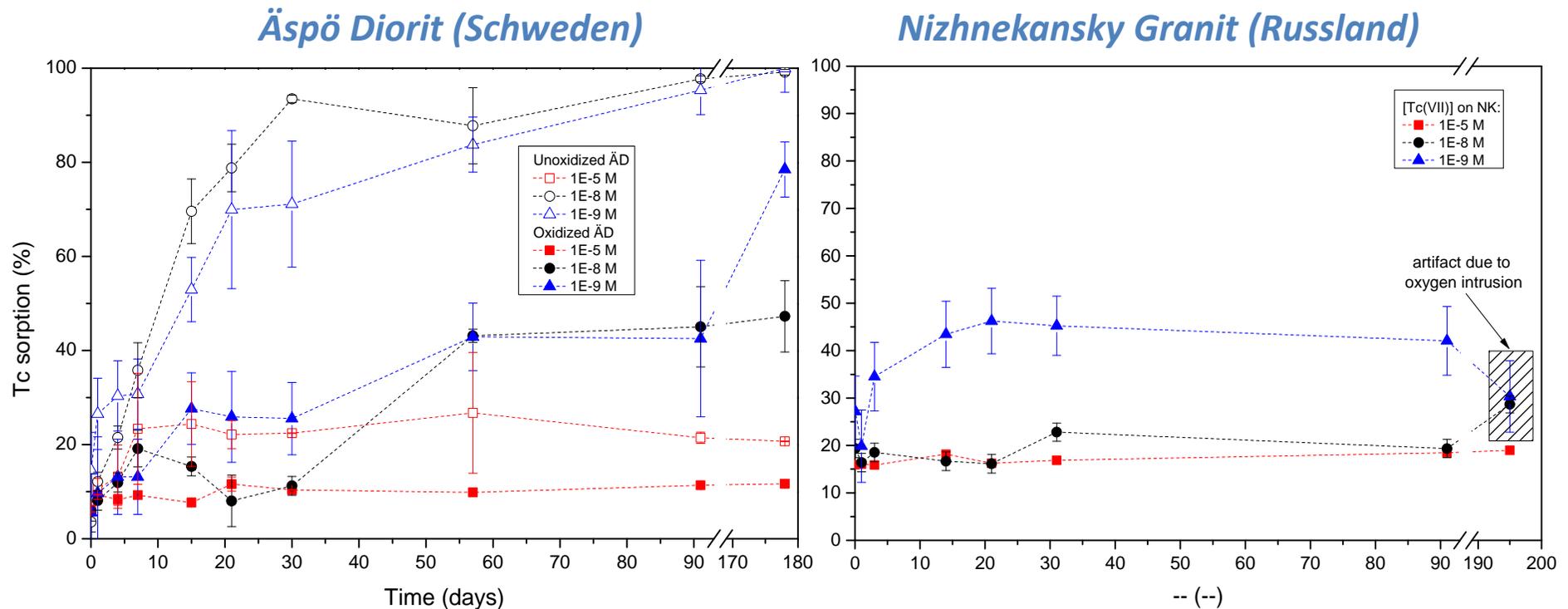


$\log K_2 = 1.17$

Ergebnisse zur Se-Sorption

- ❖ **Vernachlässigbare Se(VI) Sorption** bei typischen pH-Werten im Endlager
- ❖ **Se(IV) Immobilisierung** erwartet bei denselben Bedingungen
- ❖ Rückhaltung von **Se** durch Tone eine Größenordnung niedriger als bei Metal(hydr)oxiden
Sorptionskapazität: Hämatit > Maghämmit > Al₂O₃ > Anatas > Kaolinit
- ❖ **Temperatur** verändert die Oberflächeneigenschaften der Minerale
- ❖ **Temperaturerhöhung** verringert die **Se** Sorption an Mineralen

Tc(VII) Wechselwirkungen mit kristallinem Gestein



- Stärkere Tc-Immobilisierung für nicht-oxidiertes Material wegen höherer Fe(II)-Gehalte.
- Kolloidale Tc-Phasen sind weder für Äspö noch für Nizhnekansky GW-Bedingungen nachweisbar (via Vergleich mit ultra-zentrifugierten Proben).
- Keine Desorption unter natürlichen GW-Bedingungen.

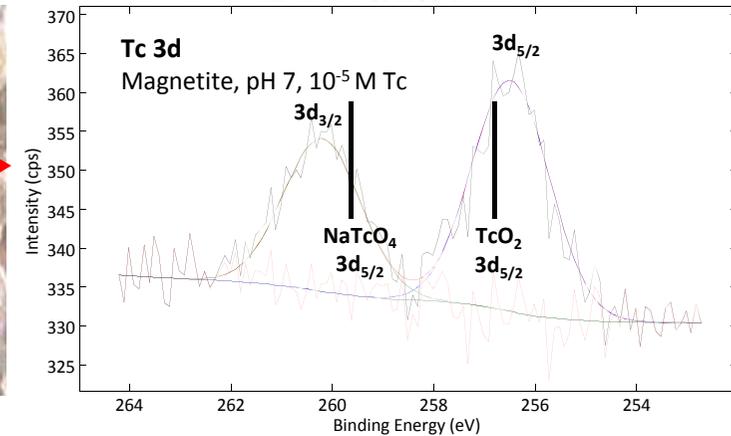
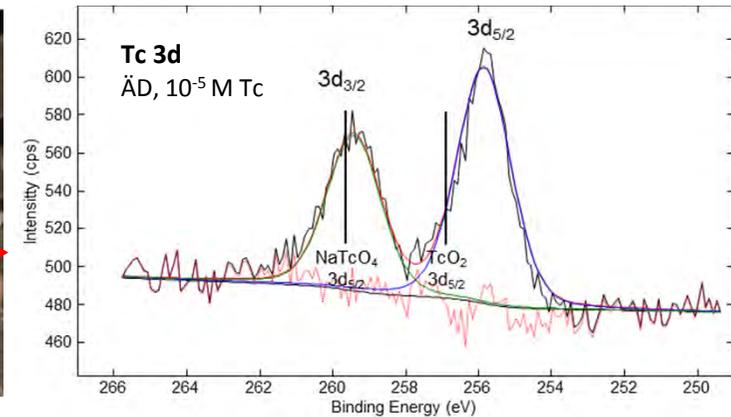
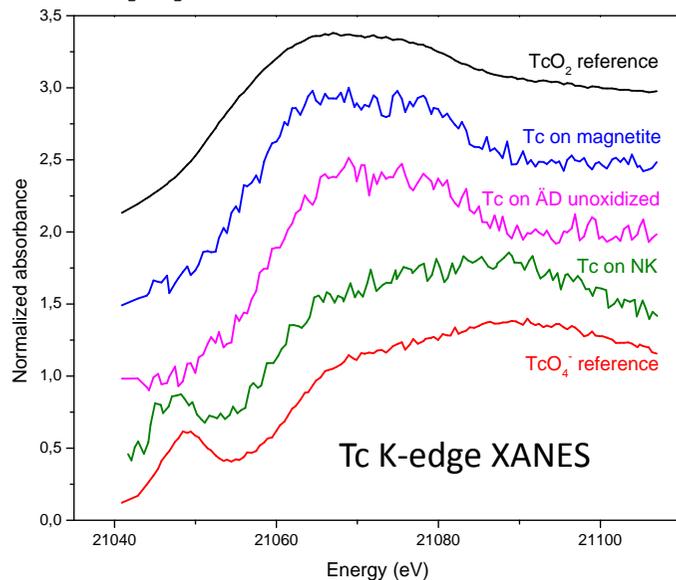
Oberflächenanalysen (XPS & XANES)

Äspö Diorit (ÄD)

- Tc(IV) sammelt sich an dunklen Fe(II)-haltigen Glimmern (z.B. Biotit).

Magnetit

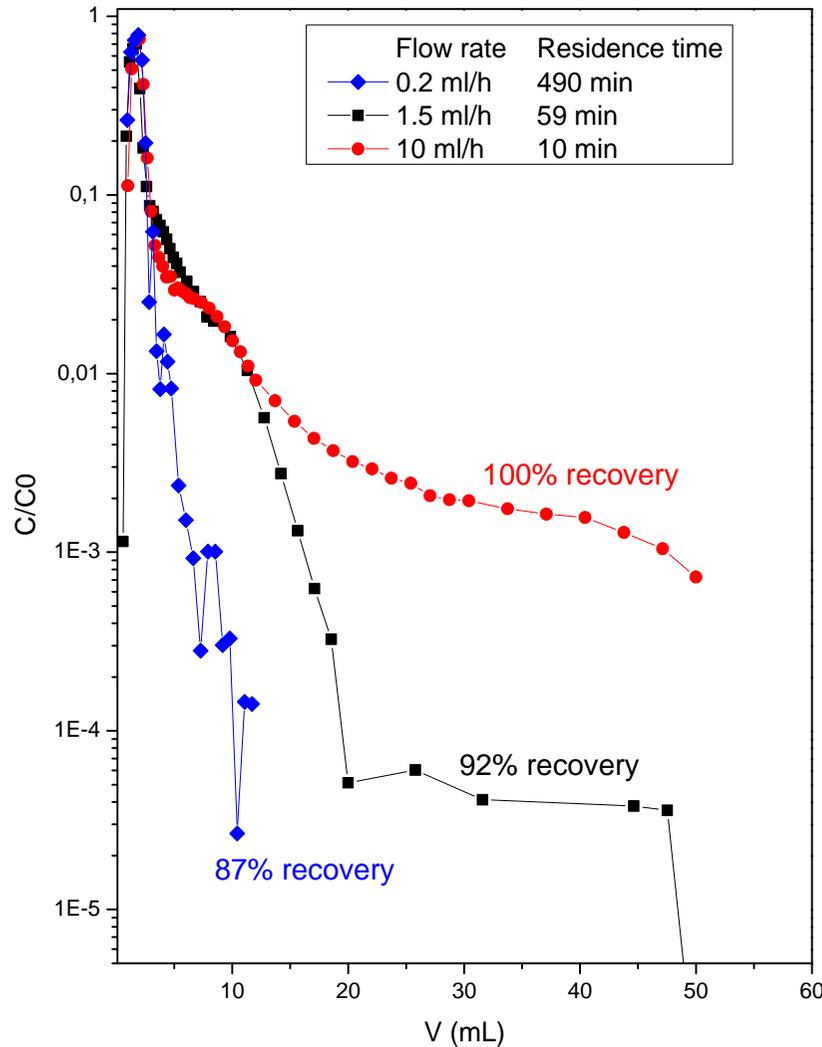
- Fe(II)/Fe(III) Verhältnis im Magnetit bleibt konstant.
- Hohe Sorption @ pH 7 und 8 selbst bei $[Tc]_{max} = 10^{-5} M$: $K_d > 105$.



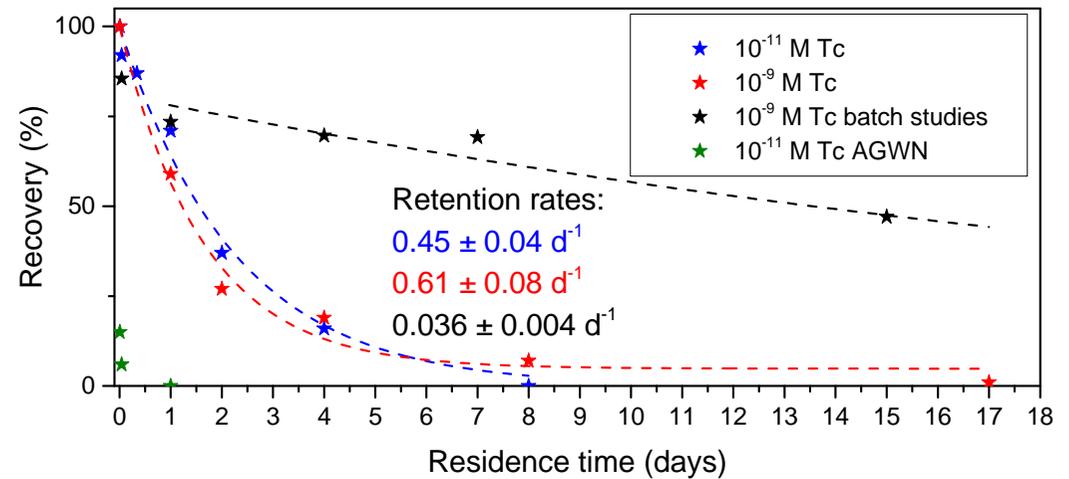
- Nur Tc(IV) ist an ÄD und Magnetit nachweisbar, Tc(IV)/Tc(VII) Mischungen hingegen an NK (gelöstes TcO_4^- im Porenwasser?).
- Keine Tc-Aufnahme wurde für Maghämät gefunden (Fe(III)-Oxid isostrukturell zu Magnetit).

Tc(VII) Kern Migration

Tc-Durchbruchskurven



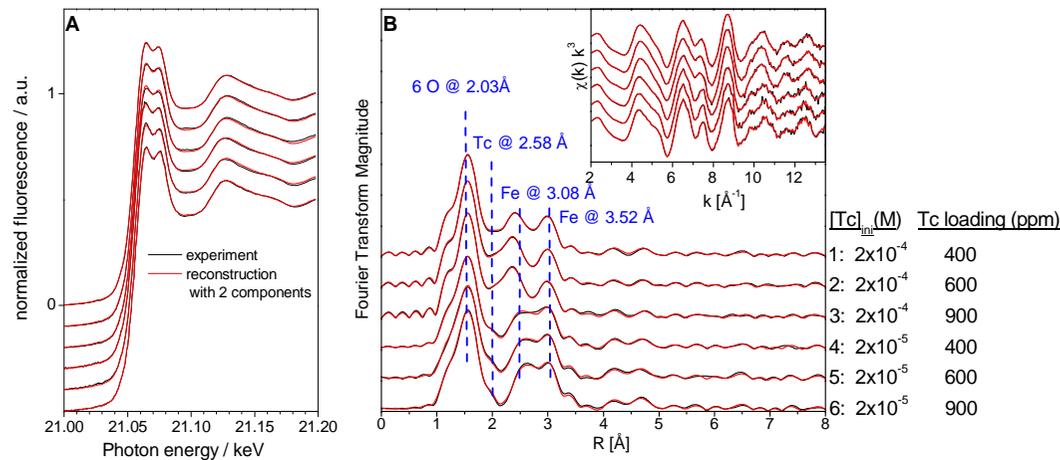
- ^{95m}Tc -Isotop ($T_{1/2} = 61\text{d}$) \approx **10^{-11} M**
- Langes Tailing mit mehreren Schultern => präferentielle Fließwege
- Stop-flow Experimente für längere Verweilzeiten.



- Rückhalte-Kinetik in Transport-Experimenten ist schneller als in 10^{-9} M Tc Batch-Sorption.
- Raschere Aufnahme in natürlichem GW wegen geringerer E_h Werte.

Tc Reduktion / Sorption an Fe(II)-Mineralen in 0.1M NaCl

Magnetit

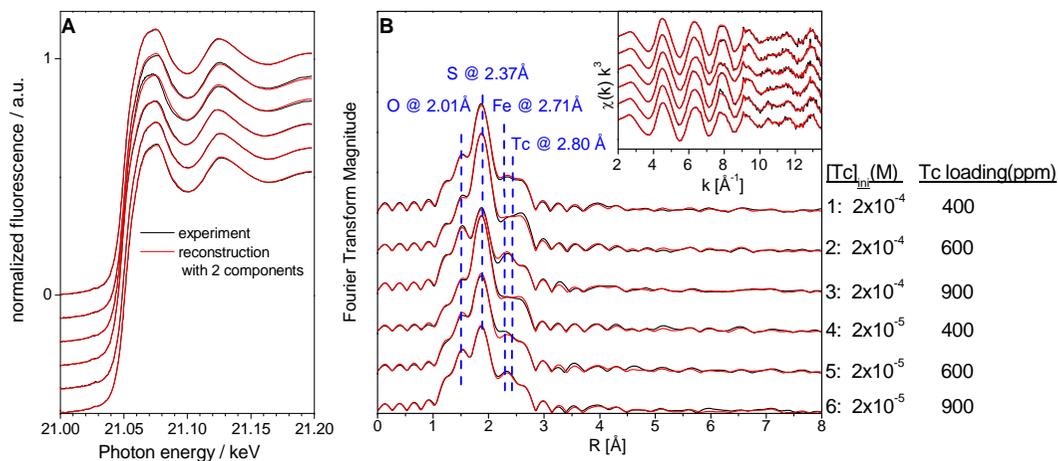


Vollständige Reduktion von Tc(VII) zu Tc(IV) in beiden Fällen.

■ Magnetit:

- Keine Beladungseffekte
- Geringe [Tc]_{ini}: partieller Einbau in die Magnetit-Struktur
- Hohe [Tc]_{ini}: Sorption von [TcO₂]-Dimeren zusätzlich zum strukturellen Einbau des Monomers

Mackinawit

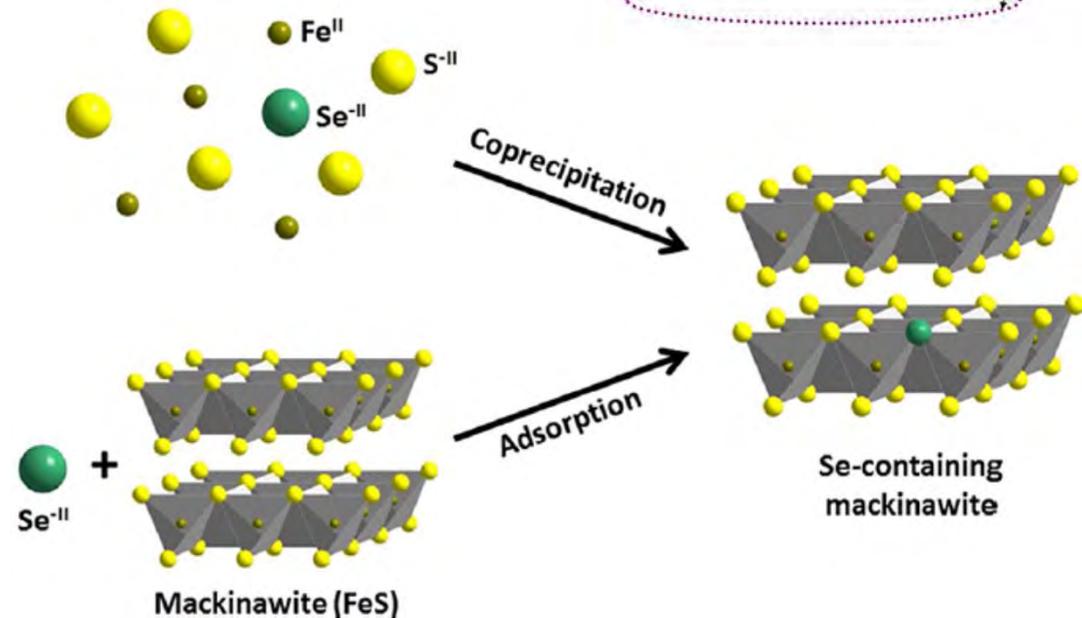
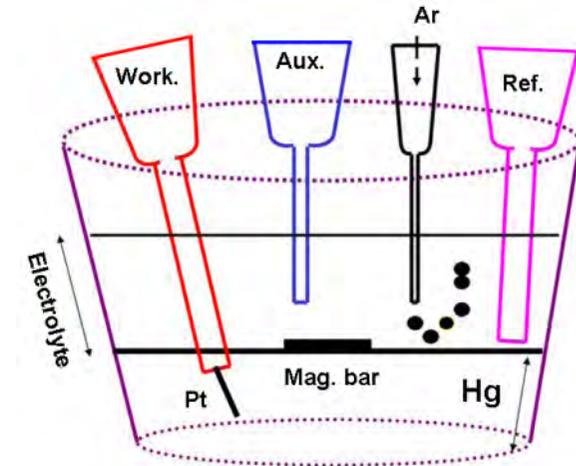


■ Mackinawit:

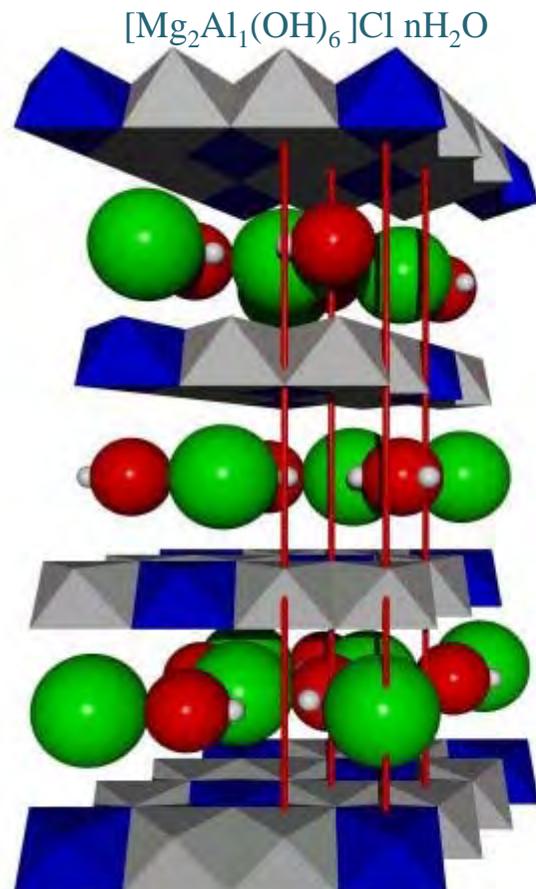
- Kein [Tc]_{ini} Konzentrationseffekt
- Niedrige Beladung: TcS₂-analoge lokale Struktur auf Mackinawit-Oberfläche
CN_{Tc-S}: 4, CN_{Tc-O}: 2
- Hohe Beladung: zusätzliche O-Koordination CN_{Tc-S}: 3, CN_{Tc-O}: 3

Se(-II) – FeS/FeS₂, Kopräzipitation und Adsorption

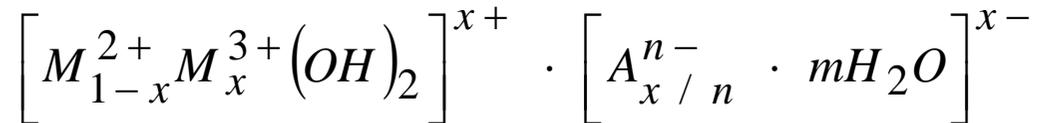
- Elektrochemische Reduzierung von Se(IV) zu Se(-II) wurde etabliert und optimiert.
- Se(-II) ersetzt S(-II) in Mackinawit (FeS) durch Kopräzipitation, ähnlich zu Sorptionsexperimenten.
- Bildung einer FeSe_xS_{1-x} Mischkristallreihe
- Weiterreaktion mit H₂S zu FeS₂ (Pyrit) - thermodynamisch stabilstes Fe(II)-Sulfid, kann in der Natur signifikante Mengen an Se enthalten.
- Einbau von Se in den Precursor FeS könnte ein wichtiger Schritt zur Langzeitrückhaltung von Se in FeS₂ sein.



Rückhaltung an **Lamellaren Doppelhydroxid-Verbindungen (LDHs)** – Anionische Tonminerale



Graue Oktaeder: $Mg(OH)_6$
 Blaue Oktaeder: $Al(OH)_6$
 Grüne Kugel: Cl^-
 Rot-weiße Kugel: H_2O



M^{2+}

(Mg^{2+} , Mn^{2+} , Fe^{2+} , Co^{2+} , Ni^{2+} , Zn^{2+} ,)

M^{3+}

(Al^{3+} , Cr^{3+} , Fe^{3+} , Co^{3+} , Ni^{3+} , La^{3+})

A^{n-}

(CO_3^{2-} , Cl^- , OH^- , SO_4^{2-})

Hauptschicht: **zwei-** und dreiwertige Metallkationen
 (oktaedrische Koordination (OH-Gruppen))
 Zwischenschicht: **Anion** und **Wasser**

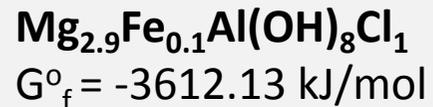
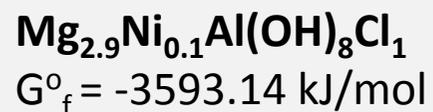
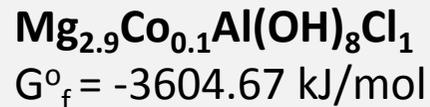


Bildung unterschiedlichster LDH-Phasen als
 Korrosionsprodukte im Nahfeld

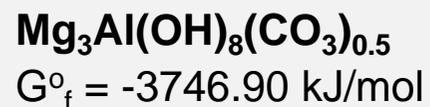
- ⇒ Behälter
- ⇒ Geotechnische Barriere
- ⇒ Forschungsreaktorbrennelemente

Synthese, strukturelle und thermodynamische Charakterisierung von LDH-Phasen

- „reine“ $\text{Mg}_3\text{Al}_1\text{-Cl-LDH}$ Phase
 - Erstmals!
Mischkristallsysteme: $\text{Mg}_{2.9}\text{Co}_{0.1}\text{Al}_1\text{-Cl-LDH}$, $\text{Mg}_{2.9}\text{Ni}_{0.1}\text{Al}_1\text{-Cl-LDH}$, $\text{Mg}_{2.9}\text{Fe}_{0.1}\text{Al}_1\text{-Cl-LDH}$
- ⇒ Selektive LDH Phasenbildung (keine kristallinen Nebenprodukte!)
- ⇒ Struktureller Einbau von Co, Ni und Fe (XRD, EXAFS)
- ⇒ Thermodynamische Daten: Bestimmung der freien Gibbs Bildungsenergien



Der strukturelle Einbau von Fe, Co, Ni hat keinen signifikanten Einfluss auf die Stabilität (Löslichkeit)



Einfluss des Zwischenschichtanions!
Carbonat-haltiger LDH ist stabiler (geringer löslich)

Rückhaltung von Iodid, Pertechnetat, Selenit über Anionen-Austausch

Versuchsbedingungen: statisch, Ar-Atmosphäre, r.t., pH 7-8, 10g/L → Ermittlung K_d -Werte

LDH	Lösung	$^{129}\text{I}^-$: K_d -Werte in (L/kg) und (log K_d)	$^{99}\text{TcO}_4^-$: K_d -Werte in (L/kg) und (log K_d)	$^{75}\text{SeO}_3^{2-}$: K_d -Werte in (L/kg) und (log K_d)
MgAl-LDH	Wasser	79.43 (1.90)	25.12 (1.40)	630.96 (4.80)
Fe-LDH	Wasser	338.84 (2.53)	162.181 (2.21)	1995.26 (6.38)
Co-LDH	Wasser	190.55 (2.28)	114.81 (2.06)	1584.89 (6.20)
Ni-LDH	Wasser	251.19 (2.40)	102.33 (2.01)	1047.13 (6.02)
MgAl-LDH	Opalinus	-	-	100.00 (1.35)
Fe-LDH	Opalinus	2.24 (0.35)	5.62 (0.75)	316.23 (1.80)
Co-LDH	Opalinus	2.24 (0.35)	5.62 (0.75)	158.49 (1.65)
Ni-LDH	Opalinus	2.24 (0.35)	5.62 (0.75)	199.52 (1.60)
MgAl-LDH	Lauge 2	-	-	22.38 (1.35)
Fe-LDH	Lauge 2	-	-	63.10 (1.80)
Co-LDH	Lauge 2	-	-	44.69 (1.65)
Ni-LDH	Lauge 2	-	-	39.81 (1.60)

→ Mischkristall-LDH Phasen besitzen signifikant höhere Rückhaltepotentiale

→ In Tonporenwasser (Opalinus-Ton): nur Mischkristall-LDH Phasen bedingen Rückhaltung für Iodid und Pertechnetat



K_d -Wert: 0,1 L/kg
 Diffusionskonstante: ca. $5 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$
 Diffusionsstrecke in Ton: 50 m
 ⇒ **Verlängerung der Migrationszeit von 140.000 auf 700.000 Jahre***

* Andra, (2005) CRP.ASTR.04.0032.

Ergebnisse zur Rückhaltung an LDH-Phasen

- Co, Ni und Fe dotierte LDH Mischkristalle besitzen effizientere Retentionspotentiale über Anionen-Austausch als „reine“ LDH Phase in Tonporenwasser (Opalinus) und in Salzlauge (Lauge 2).
- Anionen-Austausch
Ranking: divalente Anionen (SeO_3^{2-}) > monovalente Anionen (TcO_4^- , I^-)

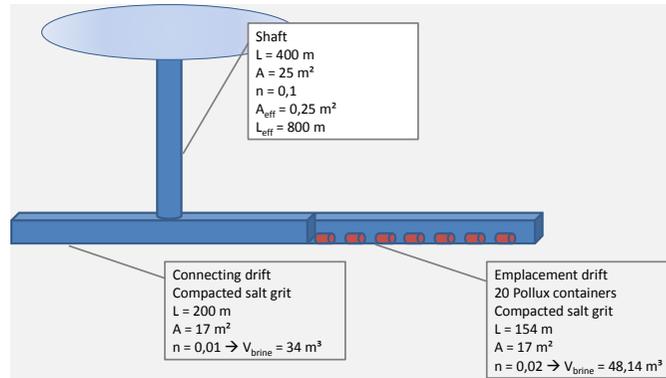
Langzeitstabilität der LDH-Phasen

- Strukturelle Einbau von Fe, Co, Ni durch Substitution von Mg (0,033 mol) hat keinen signifikanten Einfluss auf die Stabilität (Löslichkeit)
- Zwischenschicht-Anion beeinflusst erheblich die Stabilität (Löslichkeit) der LDH-Phase:
divalentes Anion (CO_3^{2-}) > monovalentes Anion (Cl^-)

Implementierung der Erkenntnisse aus VESPA in Modelle der Langzeitsicherheitsanalyse

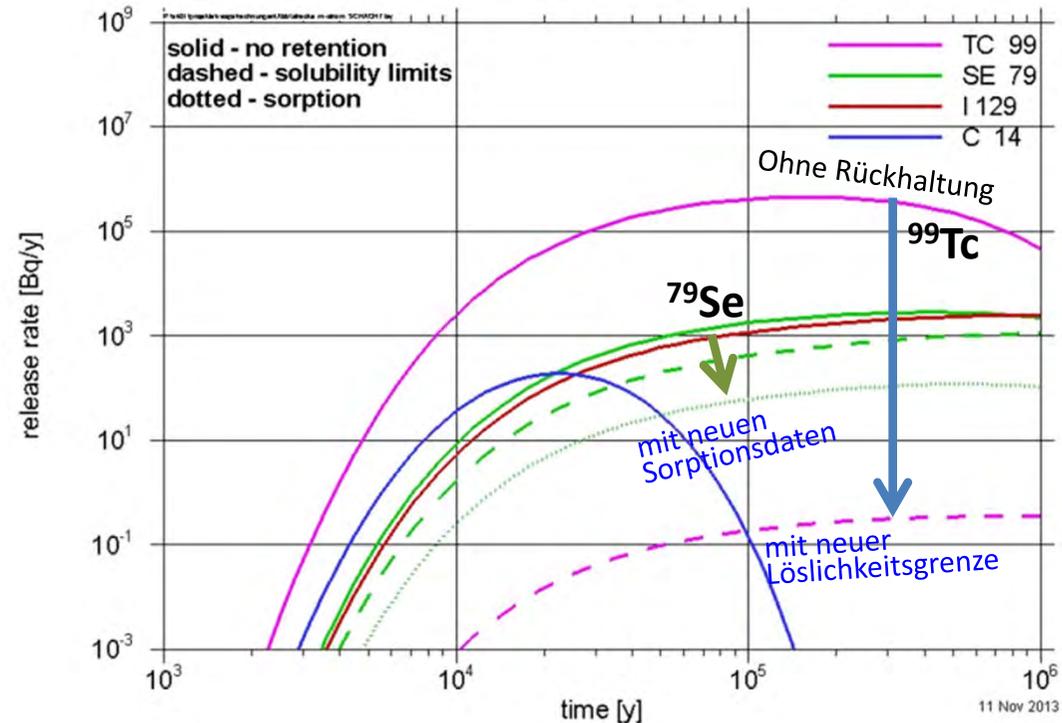
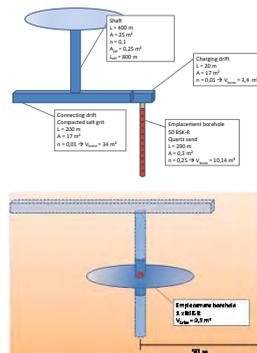
- ❖ Definition von geochemischen Systemzuständen bei der Lagerung von hochradioaktiven Abfällen in Ton- oder Salzformationen (Strecken- oder Bohrlochlagerung)
- ❖ Für diese Randbedingungen: Ableitung von Sorptionskoeffizienten und Löslichkeitsgrenzen für Technetium, Selen und Iod
- ❖ Bestimmung konsistenter und spektroskopisch abgesicherter Datensätze für Komplexbildungskonstanten, Löslichkeitsprodukte und Aktivitätskoeffizienten
- ❖ Bereitstellung der Daten für die Datenbanken THEREDA (www.thereda.de) und RES³T (www.hzde.de/res3t)
- ❖ Bereitstellung der Daten für die Datenbanken RES³T und THEREDA
- ❖ Vergleichende Langzeitsicherheitsrechnungen (Vorher-Nachher-Analysen)

Vergleichende Langzeitsicherheitsrechnungen



Streckenlagerung Salz

Ebenfalls betrachtet:
Bohrlochlagerung in
Salz und Ton



Zeitabhängige Aktivitätsfreisetzung für die
Streckenlagerung im Salz:
Drastische Reduzierung für ⁷⁹Se und ⁹⁹Tc
aufgrund VESPA-Daten

Kompetenzerhalt

Im Ergebnis von VESPA wurden Fähigkeiten und Fertigkeiten junger Nachwuchskräfte im Bereich der Actinidenchemie weiterqualifiziert (in Kooperation mit der Uni Heidelberg, der Hochschule Zittau/Görlitz und der Hochschule Fresenius, Zwickau):

- Zwei Bachelor
- Ein Diplom
- Zwei Promotionen
- Sechs PostDocs

Sichtbarkeit: Beiträge in Zeitschriften mit Peer-Review

1. Finck, N., Dardenne, K., Bosbach, D., Geckeis, H. (2012) „Selenide Retention by Mackinawite“, *Environmental Science & Technology* 46: 10004-10011.
2. Scharge, T., Muñoz, A.G., Moog, H.C. (2012) “Activity Coefficients of Fission Products in Highly Salinary Solutions of Na⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Cl⁻, and SO₄²⁻: Cs⁺”, *Journal of Chemical & Engineering Data* 57: 1637-1647.
3. Jordan, N.; Müller, K.; Franzen, C.; Brendler, V. (2013), “Temperature impact on the sorption of selenium(VI) onto anatase“. *Journal of Colloid and Interface Science* 390: 170-175.
4. Curtius, H., Kaiser, G., Rozov, K., Neumann, A., Dardenne, K., Bosbach, D. (2013), „Preparation and characterization of Fe-, Co-, and Ni-containing MgAl-layered double hydroxides“. *Clays and Clay Minerals* 61: 424-439.
5. Franzen, C.; Hering, D.; Jordan, N. (2013), “Retention of selenate at the water-mineral interface in the context of salt dome repositories“. *Mineralogical Magazine, Goldschmidt Abstracts 2013*, 77(5): 1107.
6. Totskiy, Y., Schäfer, T., Huber, F., Schild, D., Geckeis, H. Kalmykov, S., (2013) “Tc(VII) sorption on natural granitic rocks and synthetic magnetite.“ *Final Workshop Proceedings, 7th EC FP CP-CROCK*, KIT Scientific Reports.
7. Jordan, N., Ritter, A., Foerstendorf, H., Scheinost, A.C., Weiß, S., Heim, K., Grenzer, J., Mücklich, A., Reuther, H. (2013), “Adsorption mechanism of selenium(VI) onto maghemite“. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 103: 63-75.
8. Kobayashi, T., Scheinost, A.C., Fellhauer, D., Gaona, X., Altmaier, M. (2013), „Redox behavior of Tc(VII)/Tc(IV) under various reducing conditions in 0.1 M NaCl solutions“, *Radiochimica Acta* 101: 323-332.
9. Jordan, N., Ritter, A., Scheinost, A.C., Weiss, S., Schild, D., Hübner, R. (2014), “Selenium(IV) uptake by maghemite (γ -Fe₂O₃)“. *Environmental Science & Technology* 48: 1665-1674.
10. Totskiy, Y., Huber, F., Schild, D., Schäfer, T., Kalmykov, S., Geckeis, H. (2014), “Tc(VII) immobilization on granitic rocks from Äspö HRL (Sweden) and Nizhnekansky massif (Russia)“ *Goldschmidt 2014, Book of Abstracts*, p. 2506.
11. Heberling, F., Vinograd, V.L., Polly, R., Gale, J.D., Heck, S., Rothe, J., Bosbach, D., Geckeis, H., Winkler, B. (2014) “A thermodynamic adsorption/entrapment model for selenium(IV) coprecipitation with calcite.“ *Geochimica et Cosmochimica Acta* 134: 16-38.
12. Yalcintas, E., Gaona, X., Scheinost, A., Kobayashi, T., Altmaier, M., Geckeis, H. (2014) “Redox chemistry of Tc(VII)/Tc(IV) in dilute to concentrated NaCl and MgCl₂ solutions.“ *Radiochimica Acta (accepted)*.

+ 25 Poster und 18 Vorträge auf internationalen Konferenzen

Die nächsten Schritte ...

VESPA war ausgesprochen erfolgreich!

Die Forschung ergab geänderte Schwerpunkte für eine weitere signifikante Verringerung von Ungewissheiten in Langzeitsicherheitsanalysen für nukleare Endlager:

- Entscheidende Verbesserung des Verständnisses der Lösungseigenschaften und der Rückhaltung von mobilen Spalt- und Aktivierungsprodukten **besonders unter reduzierenden Bedingungen**
- Bereitstellung zuverlässigerer chemische Eingangsdaten für langzeitanalytische Modellrechnungen
 - **Stoffinventar und den Quellterm für ^{129}Iod**
 - **Löslichkeitsgrenzen für reduzierte Selen- und Technetium-Spezies**
 - **Sorptionskoeffizienten für Selen-, Iod- und Technetium-Spezies**
- Skizze für Nachfolgeprojektes **VESPA II** wurde bereits positiv vorbegutachtet

Danksagung

Dem Forscher-Team:

- Barbara Bischofer & Sven Hagemann (GRS, Projektkoordination)
 - Marcus Altmaier, Yuri Totskiy, Frank Heberling, Ezgi Yalcintas, Nicolas Finck (KIT-INE)
 - Hilde Curtius, Konstantin Rozov (FZJ)
 - Norbert Jordan, Carola Franzen, Katharina Müller, Jérôme Kretzschmar (HZDR)
 - Tina Scharge, Dieter Buhmann, Jonathan Kindlein (GRS)
- plus viele andere insbesondere bei Spektroskopien, Analysen und Modellierung ...

Dem Projektträger Karlsruhe:

- Holger Bittdorf, Ellen Ernst, Silvia Martin

Dem Geldgeber:

- Bundesministerium für Wirtschaft und Energie



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie

Von VESPA ...



... zu **VESPA II**

Quelle: <http://www.italiangoodnews.com/>

Eine neue Methode zur Integration von Sorptionsprozessen in die Langzeitsicherheitsanalyse

Ulrich Noseck, Vinzenz Brendler, Susan Britz, Judith Flügge, Alexander Schulze, Madlen Stockmann, Constanze Richter, Frank Bok

11. Projektstatusgespräch zu BMWi-geförderten FuE-Projekten
bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle
Karlsruhe 25.11. - 26.11.2014

Gliederung

Hintergrund

Ziel

Betrachtetes System

- Hydrogeologie
- Geochemie / Mineralogie

Beschreibung der Sorption

- Ansatz
- Batchexperimente zur Vervollständigung der Datenbasis
- Überprüfung
 - Batchexperimente
 - Säulenexperimente

Transportmodellierung

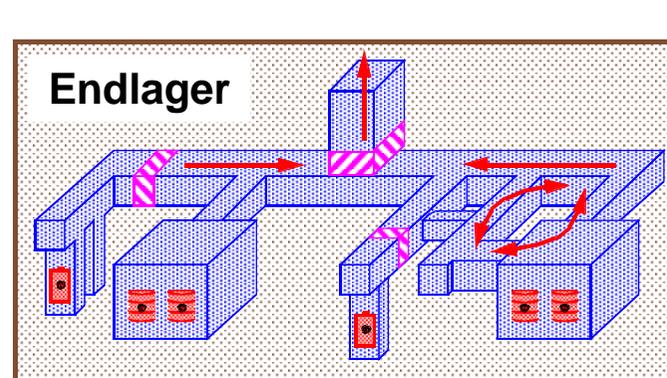
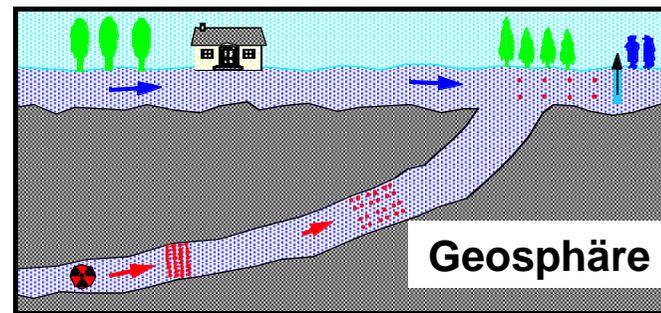
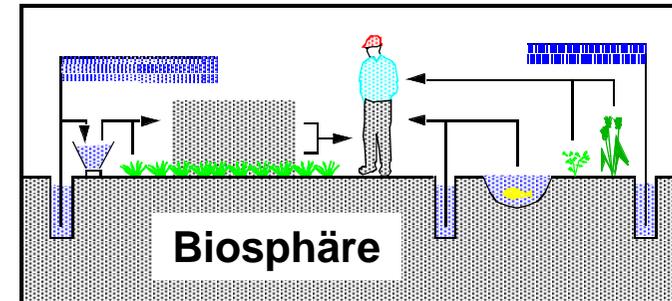
Fazit und Ausblick

Langzeitsicherheitsanalyse für tiefe geologische Endlager

Startpunkt: Endlager

Numerische Modellierung des Radionuklid-
transports durch die Geosphäre

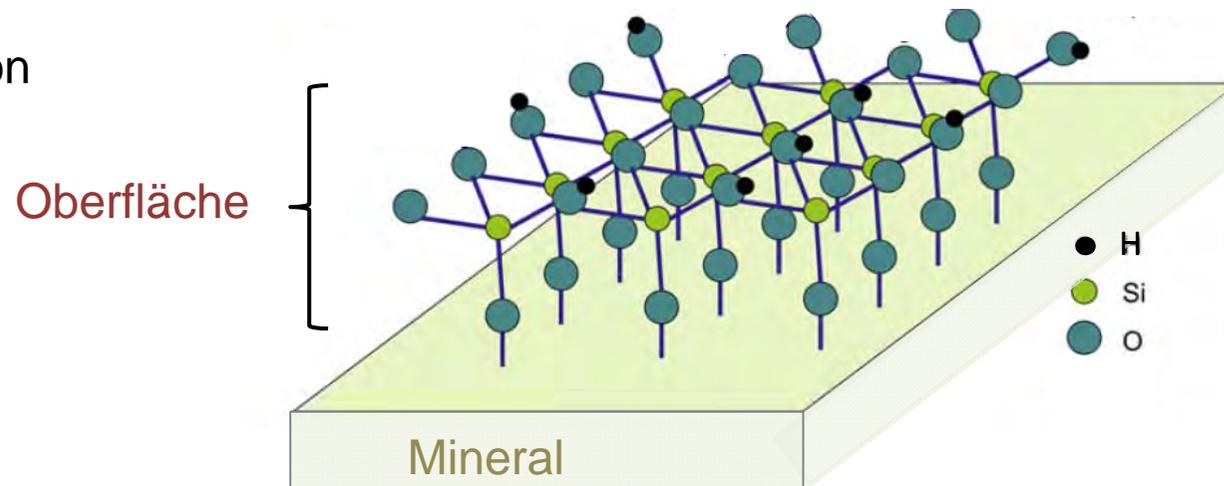
- Komplexe (nicht-lineare) Systeme mit gekoppelten Prozessen
- Modellabstraktionen notwendig
- Verschiedene Transport- und Rückhalteprozesse
- Transportcode r^{3t}



Radionuklidrückhaltung durch Sorption

Sorption retardierte den Radionuklidtransport

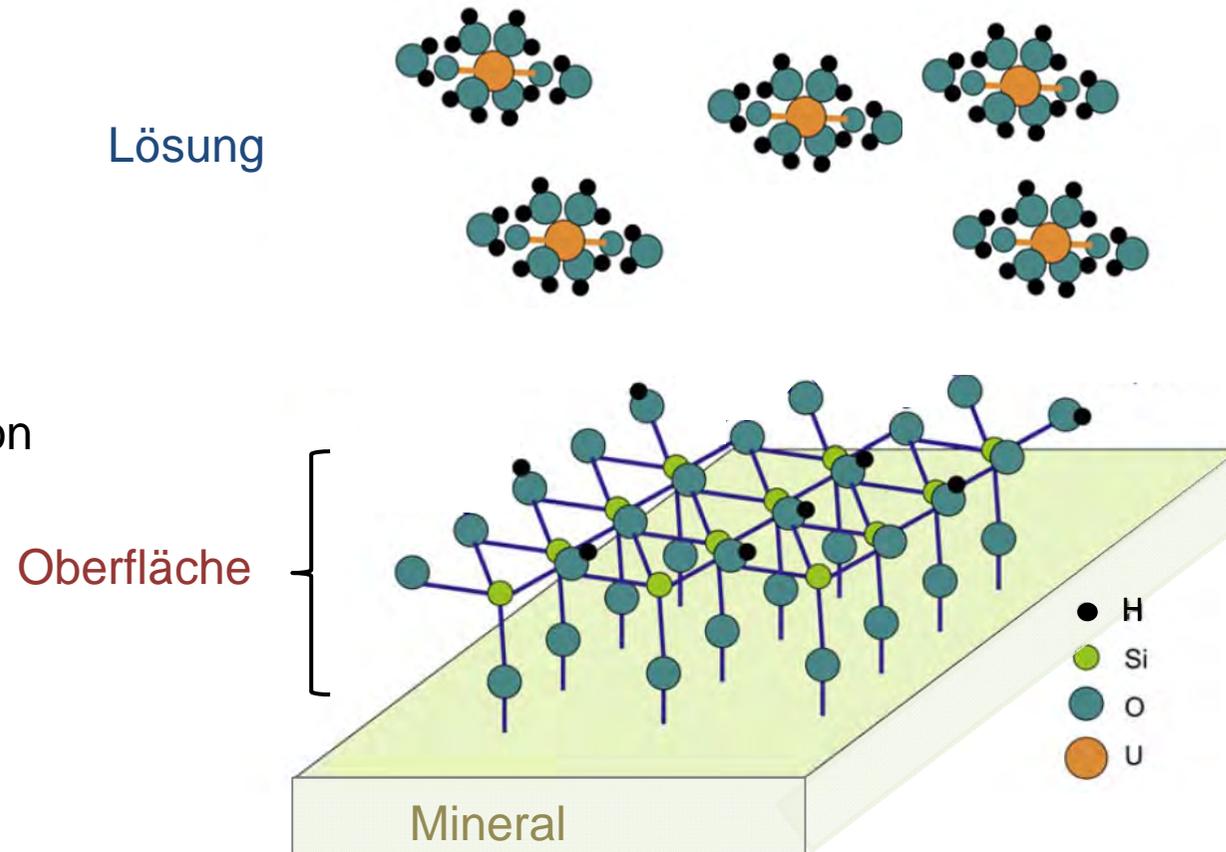
- Wichtiger Prozess
- Verlängerung der Transportzeit von Radionukliden
- Radioaktiver Zerfall reduziert die Konzentration vieler Radionuklide



Radionuklidrückhaltung durch Sorption

Sorption retardierte den Radionuklidtransport

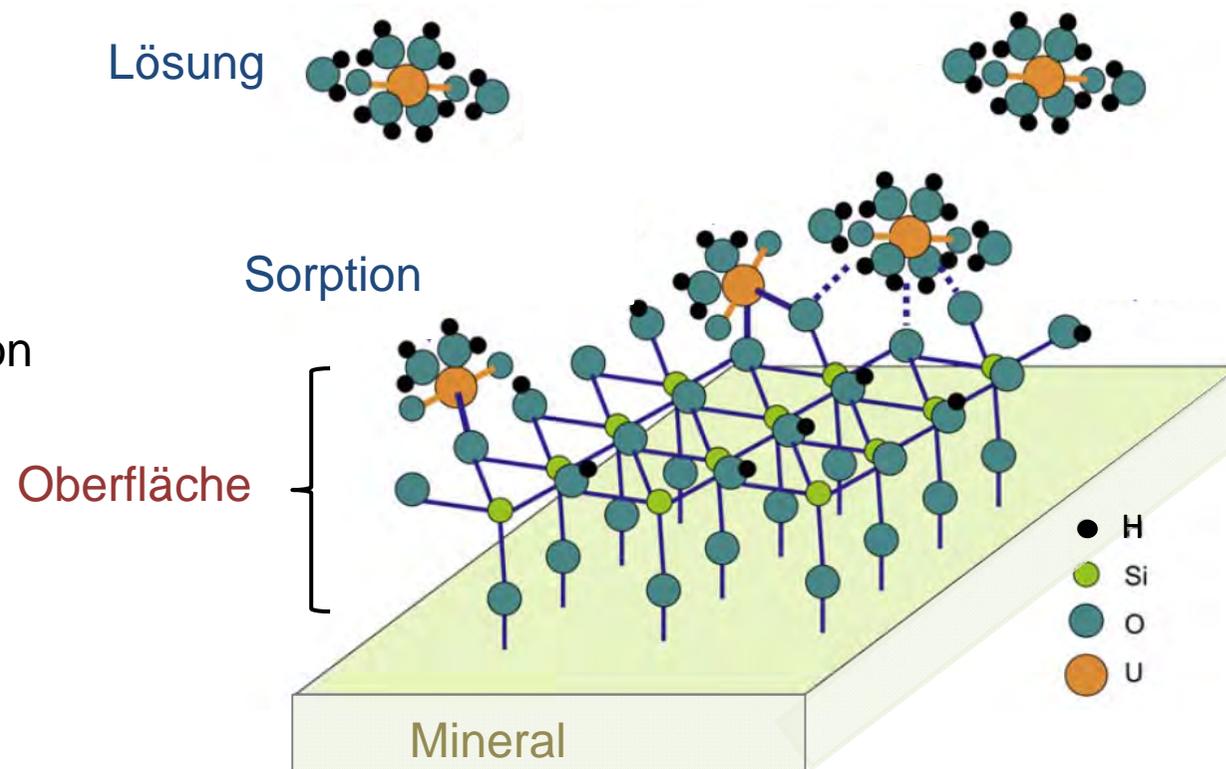
- Wichtiger Prozess
- Verlängerung der Transportzeit von Radionukliden
- Radioaktiver Zerfall reduziert die Konzentration vieler Radionuklide



Radionuklidrückhaltung durch Sorption

Sorption retardierte den Radionuklidtransport

- Wichtiger Prozess
- Verlängerung der Transportzeit von Radionukliden
- Radioaktiver Zerfall reduziert die Konzentration vieler Radionuklide



Integration von Sorptions-Prozessen in Langzeitsicherheitsanalysen

Ziel

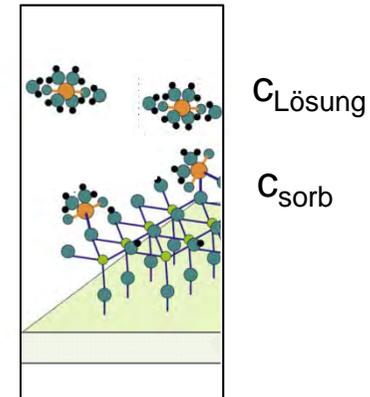
- Beschreibung des Radionuklidtransports in **großen** Modellgebieten über **sehr lange** Zeiträume, (Variation geochemischer Bedingungen)

Bisherige Modellansätze

- Zeitlich und räumlich konstante K_d -Werte in den Rechencodes für Langzeitsicherheitsanalysen
- Kopplung des Transportcodes r^3t mit PHREEQC: Begrenzung durch CPU Zeit

Neuer Ansatz

- Entwicklung und Implementierung einer neuen Methode zur Verwendung zeitlich und räumlich variabler Sorptionskoeffizienten (“Smart K_d -Werte”)
- Beschreibung der Radionuklid-Sorption als Funktion relevanter geochemischer Einflussparameter
unter Verwendung mechanistischer Sorptionsmodelle



Voraussetzung für die Anwendung des Smart K_d -Konzepts

Kenntnis des geologischen Systems

- Hydrogeologisches System
- Geochemische Bedingungen
- Mineralogische Zusammensetzung der Sedimente

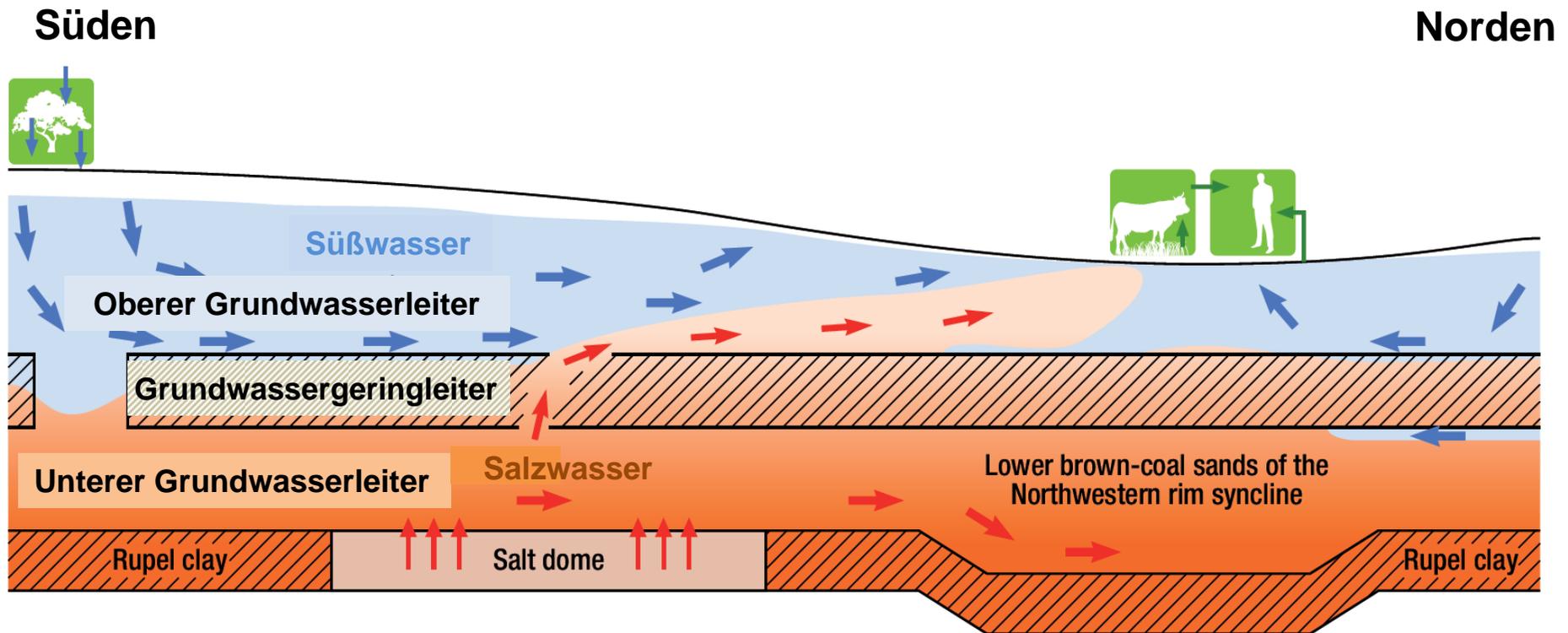
Daten für mechanistische Sorptionsmodelle

- Geochemische Parameter, die die Sorption beeinflussen
- Thermodynamische Daten

Vereinfachtes hydrogeologisches Modell für den Referenzstandort

Typische Eigenschaften hydrogeologischer Systeme in Norddeutschland:

- Sedimente: Grundwasserleiter und Grundwassergeringleiter
- Teilweise hochsalinare Wässer → dichtegetriebener Transport



[nach Klinge et al., 2007]

Mineralogische Zusammensetzung der Sedimente

Auswahl relevanter Minerale und Sedimente

- Auswahl der Minerale und Sedimentzusammensetzungen [GRIMM, 1982 – 1994]

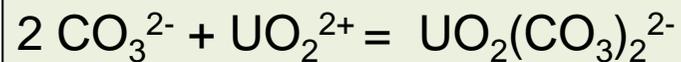
Hydrogeol. Einheit (Sediment)	Oberer Grundwasserleiter	Grundwasser- geringleiter	Unterer Grundwasserleiter
Lithostratigraphie*	Saale- und weichsel- zeitliche Sande	Lauenburger- Ton-Komplex	Braunkohlesande und Elstersande
Quarz	85 %	25 %	85 %
Orthoklas	10 %	5 %	10 %
Muskovit	0.5 %	3 %	0.5 %
Gibbsit	0.5 %	-	0.5 %
Goethit	0.5 %	2 %	0.5 %
Calcit	2 %	10 %	-
Kaolinit	1.5 %	15 %	3.5 %
Illit	-	40 %	-

*Alle Angaben in Gew.%

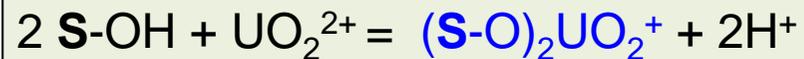
Ansatz: Thermodynamische Beschreibung der Sorption

Oberflächenkomplexmodelle

Komplexe in Lösung, z.B.



Oberflächenkomplexe, z.B.



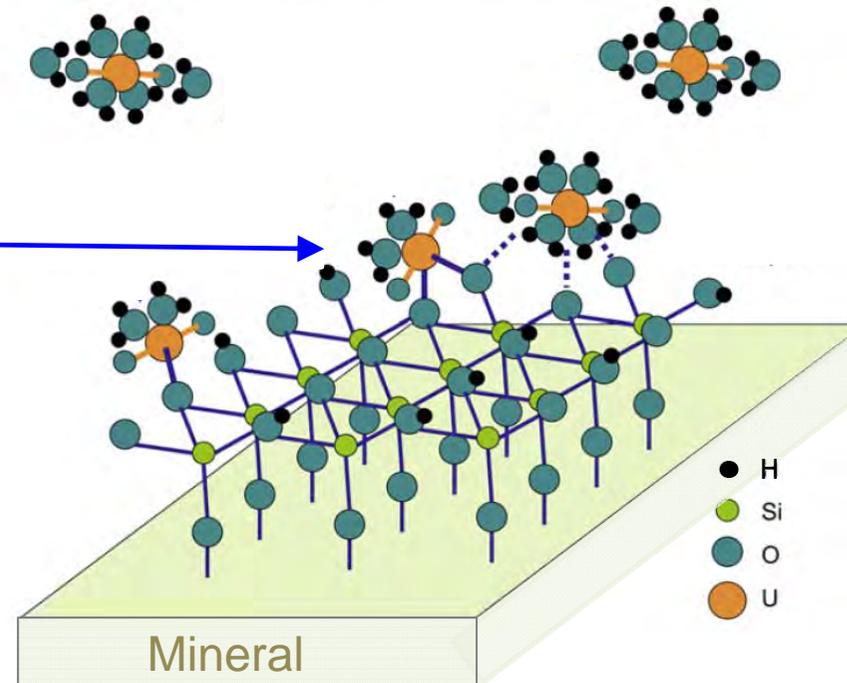
S Oberflächengruppe eines Minerals

Wichtige Parameter

- Spezifische Oberfläche
- Sorptionsplatzdichte
- Protolyse- und Stabilitätskonstanten der Komplexe

Thermodynamische Datenbasis

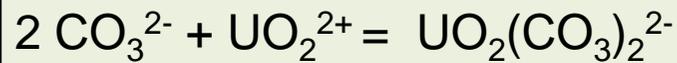
NAGRA-TDB, RES³T → WEIMAR.DAT



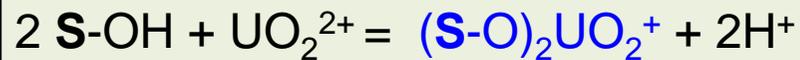
Ansatz: Thermodynamische Beschreibung der Sorption

Oberflächenkomplexmodelle

Komplexe in Lösung, z.B.



Oberflächenkomplexe, z.B.



S Oberflächengruppe eines Minerals

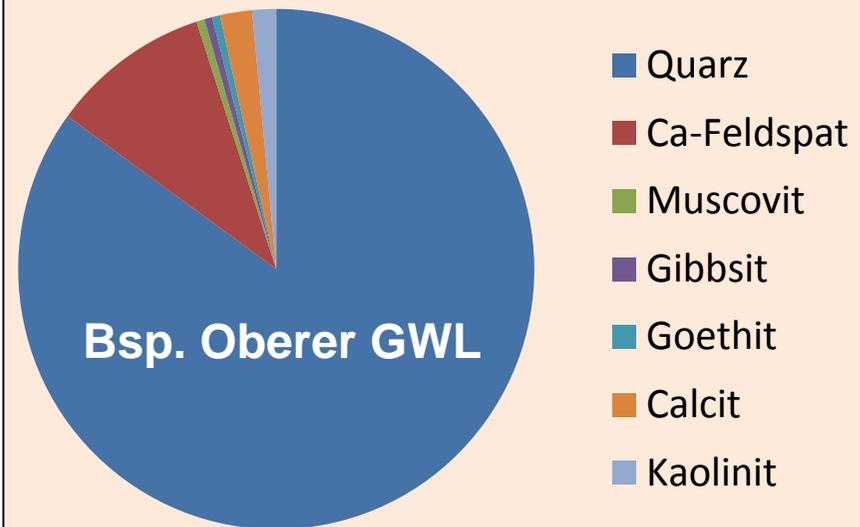
Wichtige Parameter

- Spezifische Oberfläche
- Sorptionsplatzdichte
- Protolyse- und Stabilitätskonstanten der Komplexe

Thermodynamische Datenbasis
NAGRA-TDB, RES³T → WEIMAR.DAT

„Component Additivity“ Ansatz

- Sedimente: zusammengesetzt aus einzelnen Mineralen
- Sorption als Summe der konkurrierenden Sorption an den Einzelmineralen



Datensituation für die ausgewählten Minerale (RES³T)

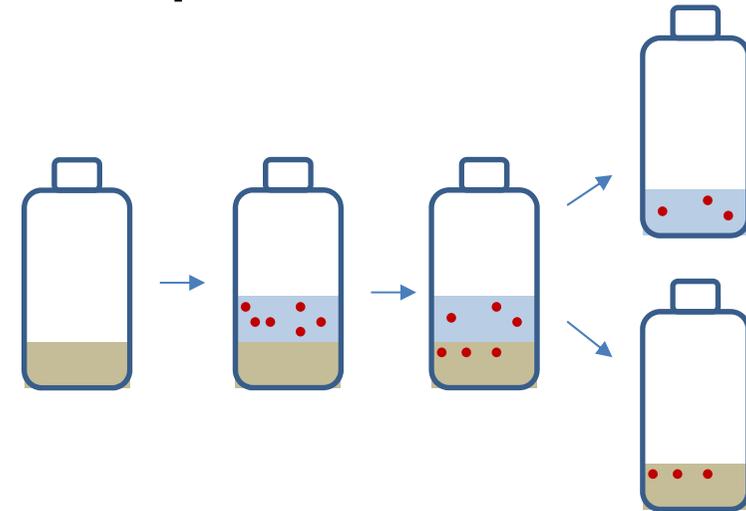
Mineral / Mineralgruppe	Quarz	Feldspat	Mica	Fe(III)-oxid/hydroxid	Aluminiumhydroxid	2-Schicht-Tonminerale	3-Schicht-Tonminerale	Summe
Radionuklide								
Cs ⁺ , (Rb ⁺)	14	1		15 [3]	2		5	37 [3]
Ra ²⁺ , (Sr ²⁺ , Ba ²⁺)	10 [2]			44 [15]		7	8 [1]	69 [18]
Ni ²⁺	7			13 [9]	1 [2]	5	31	57 [11]
Am ³⁺ , Cm ³⁺ , (Eu ³⁺ , Nd ³⁺ , ...)	19 [3]			54 [21]		9 [6]	81 [8]	163 [38]
Pu ⁴⁺ , Th ⁴⁺ , Np ⁴⁺ , U ⁴⁺ , (Ce ⁴⁺ , Zr ⁴⁺)	8 [3]			71 [16]	2 [2]	4	39	124 [21]
NpO ₂ ⁺	3 [1]		6 [6]	26 [12]	11 [8]	2 [2]	9 [7]	57 [36]
UO ₂ ²⁺	97 [35]	3 [3]	9 [9]	343 [160]	10 [3]	18 [12]	51 [13]	531 [235]
SeO ₄ ²⁻				18 [4]	1 [1]			19 [5]
Matrixkomponenten								
Ca ²⁺	15			37 [7]	1 [1]	4	7 [1]	64 [9]
Mg ²⁺	19			13 [1]				32 [1]
Al ³⁺	9 [3]			3			7	19 [3]
Fe ³⁺	2			3				5
CO ₃ ²⁻	17 [3]		3 [3]	131 [23]		4 [2]	6 [1]	161 [32]
Si(OH) ₄	2 [2]			31 [8]	3 [1]		4	40 [11]
SO ₄ ²⁻	1			39 [18]	7 [5]	3		50 [23]
Summe	223 [52]	4 [3]	18 [18]	841 [297]	38 [23]	56 [22]	248 [31]	1428 [443]

Ableitung wichtiger Sorptionsdaten aus Batch-Experimenten

Für Feldspäte und Glimmer fehlen Sorptionsparameter für relevante Systeme

Durchführung von Batch-Sorptionsexperimenten

- mit Cs(I), Sr(II), Eu(III), U(VI), Np(V), Nd(III),
- an Orthoklas und Muskovit
- Variation von ...

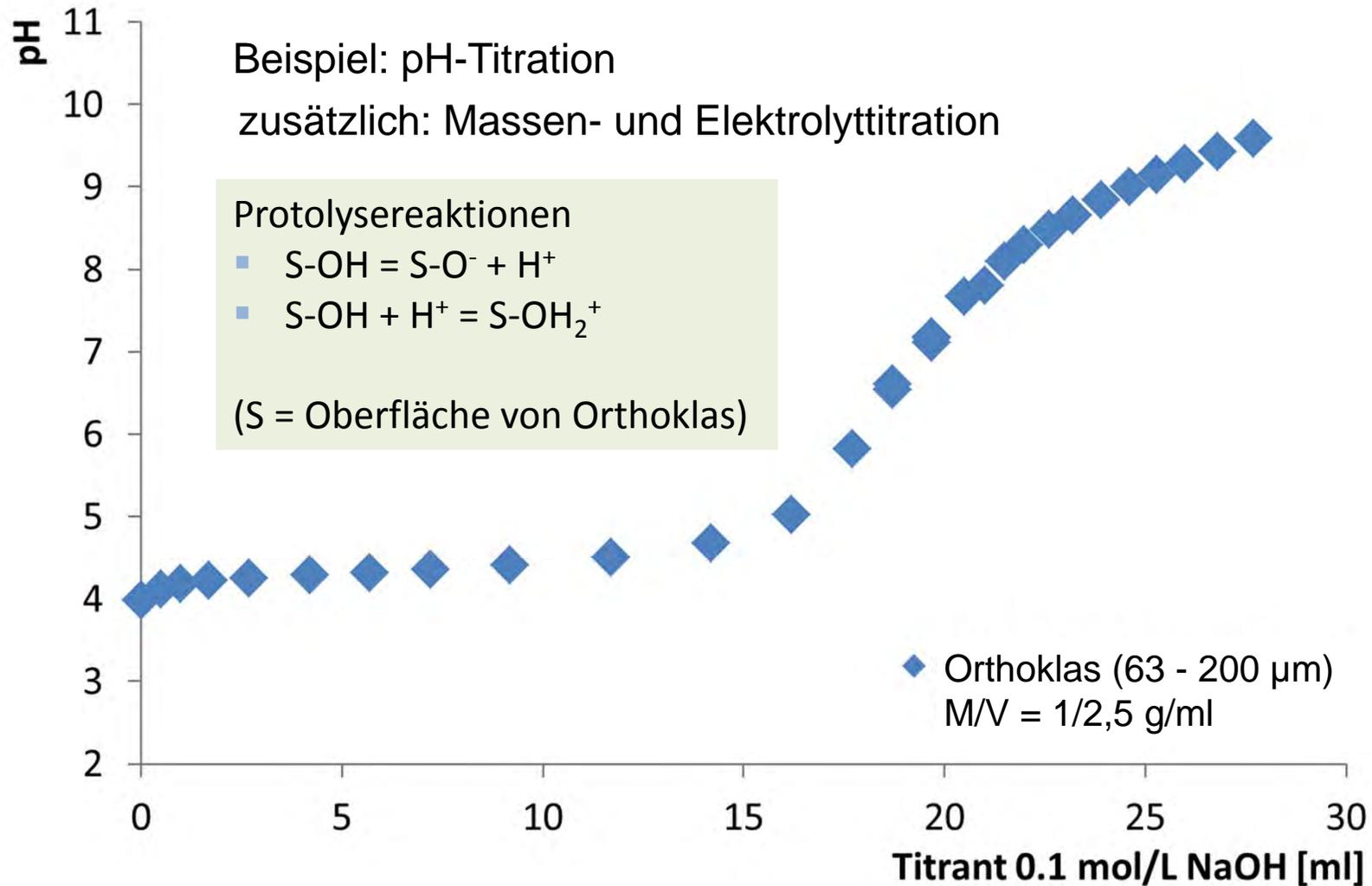


Ermittlung von thermodynamischen Sorptionsparametern aus den experimentellen Daten mit PHREEQC und UCODE

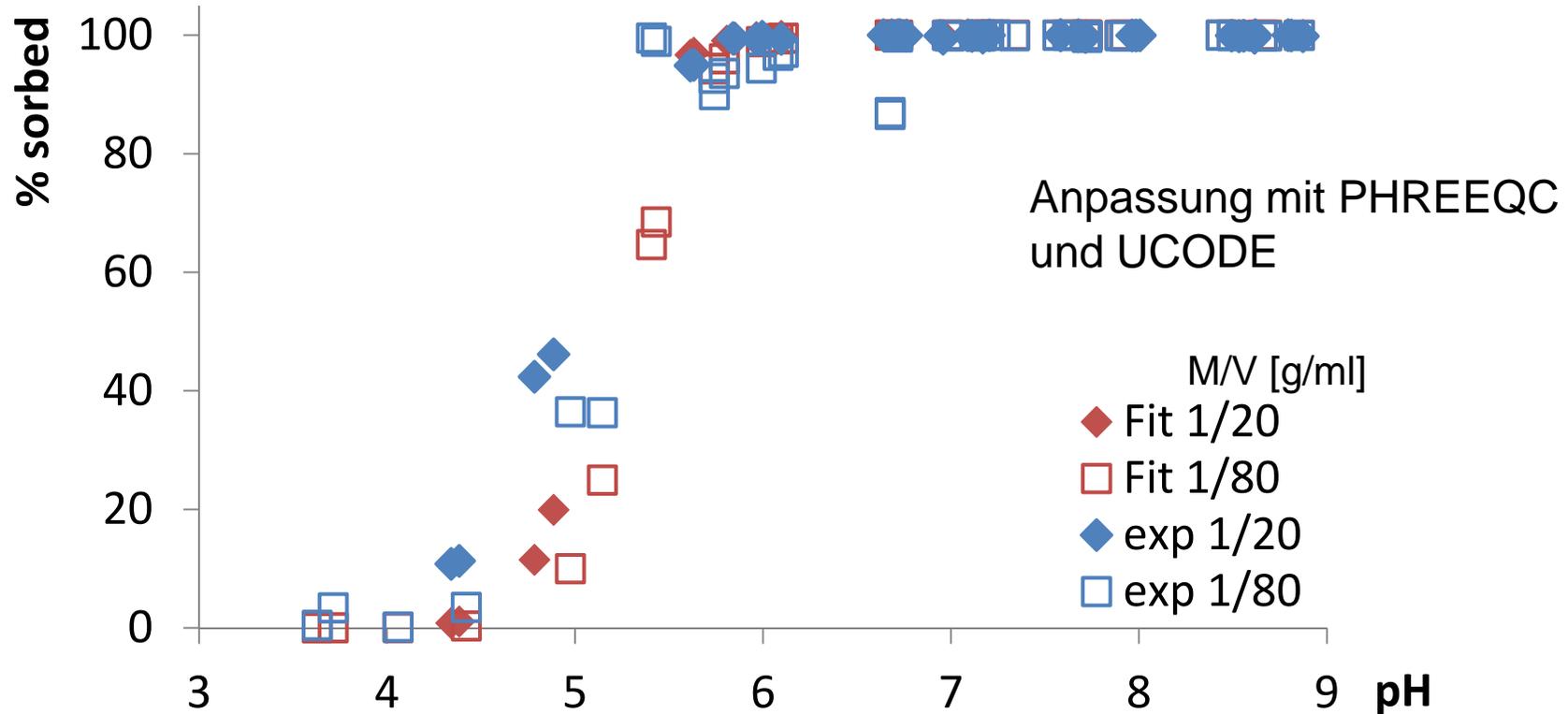
- Sorptionsplatzdichte (Titrationsexperimente)
- Protolysekonstanten (Titrationsexperimente)
- Stabilitätskonstanten für Oberflächenkomplexe (Batch-Sorptionsexperimente)
- (Spezifische Oberfläche, BET)

für jedes Mineral

Titrationsskurve Orthoklas: Ermittlung von Protolysekonstanten



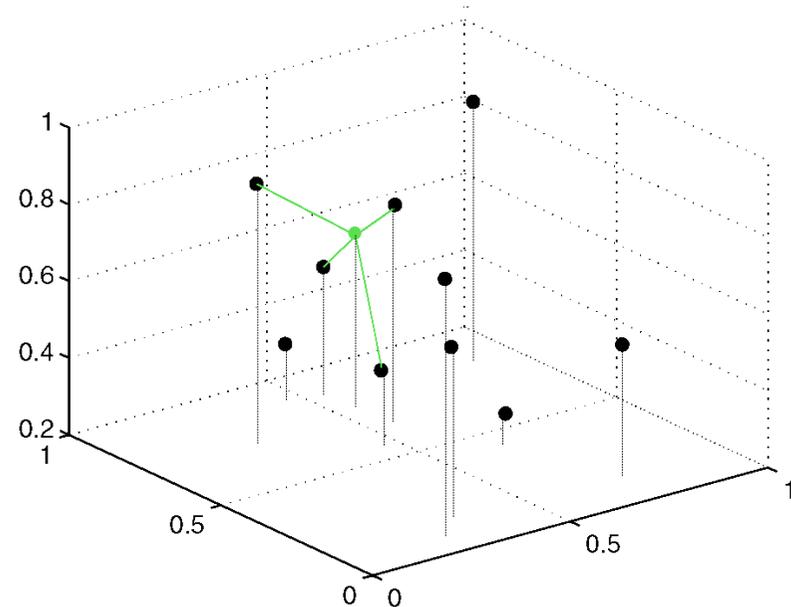
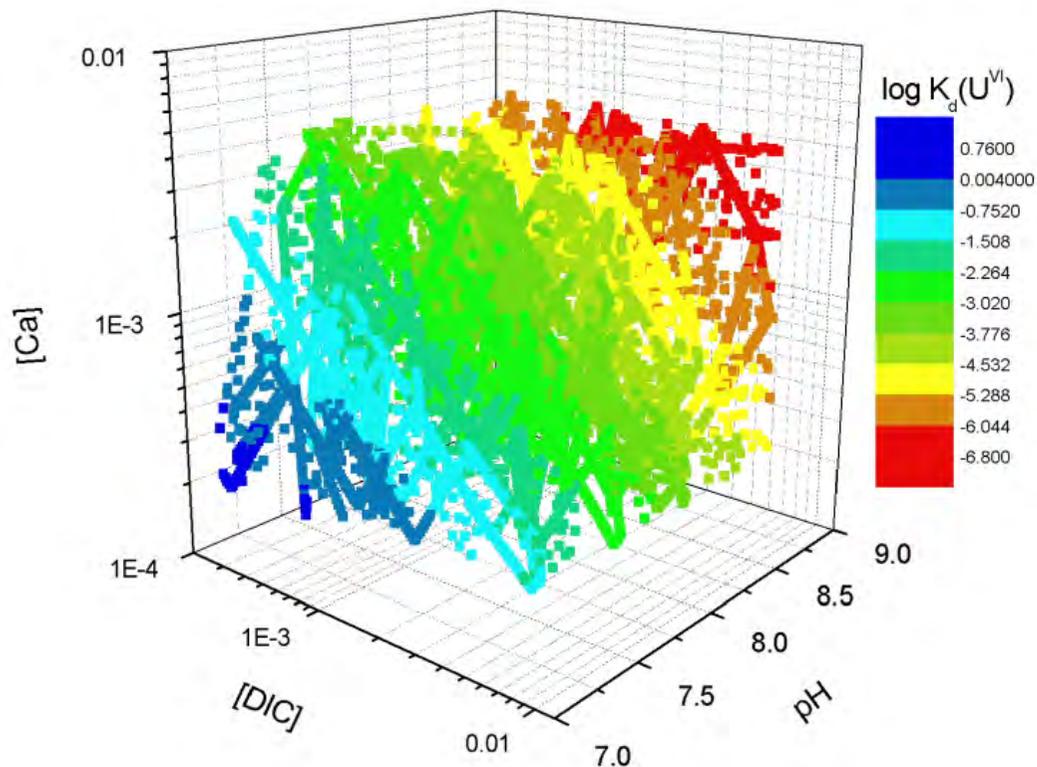
Batchexperimente Eu-Sorption an Orthoklas: Ableitung von Stabilitätskonstanten



Multidimensionale K_d -Wert Matrizen

Code-Anpassung

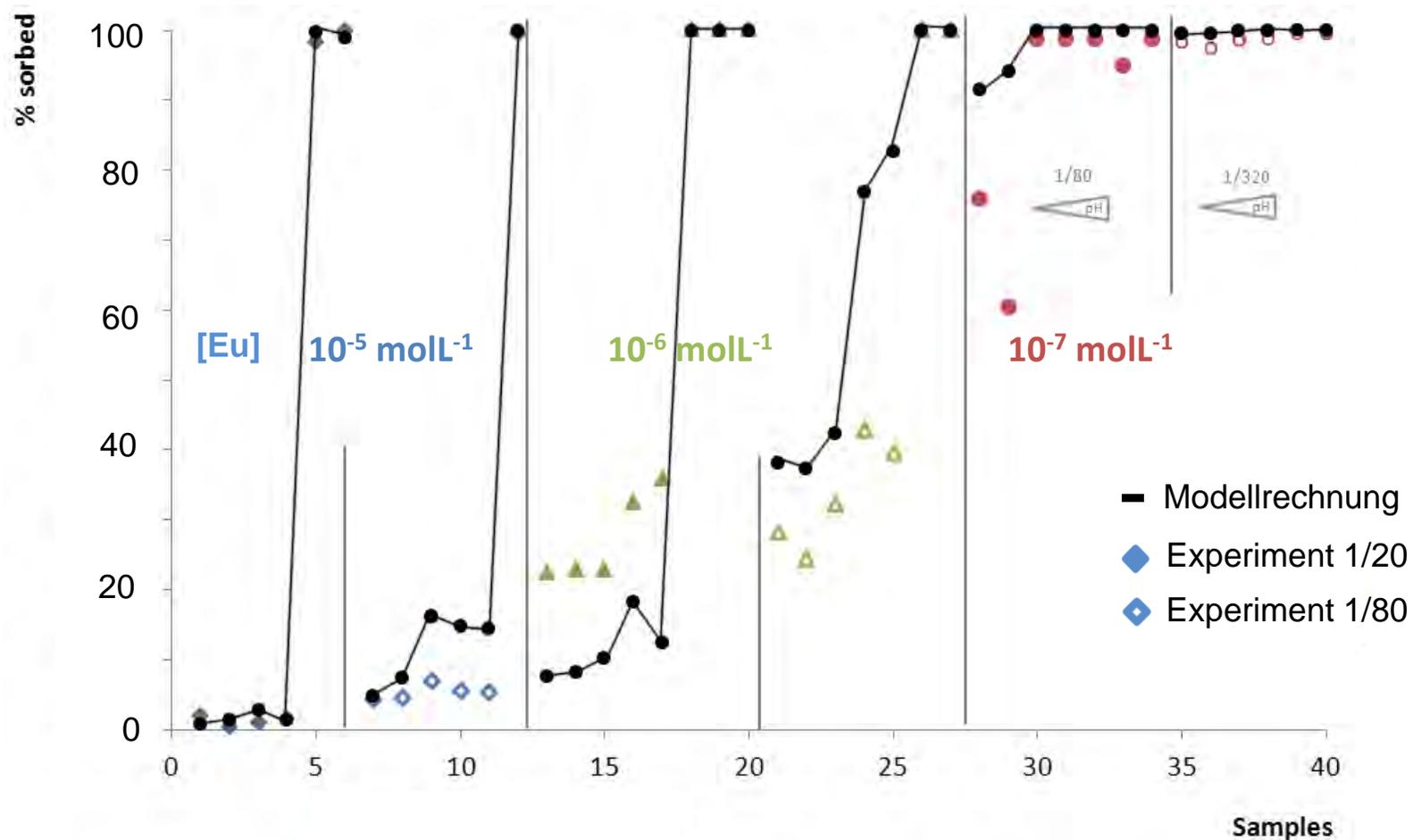
- Implementierung der geochemischen Einflussgrößen (pH, IS, [DIC], [Ca]) in r³t
- Vorberechnung der Smart K_d -Werte als Funktion der geochemischen Einflussgrößen
- Interpolation für die spezifischen Bedingungen an jedem Ort für jeden Zeitpunkt



Überprüfung des „Component Additivity“ Ansatzes

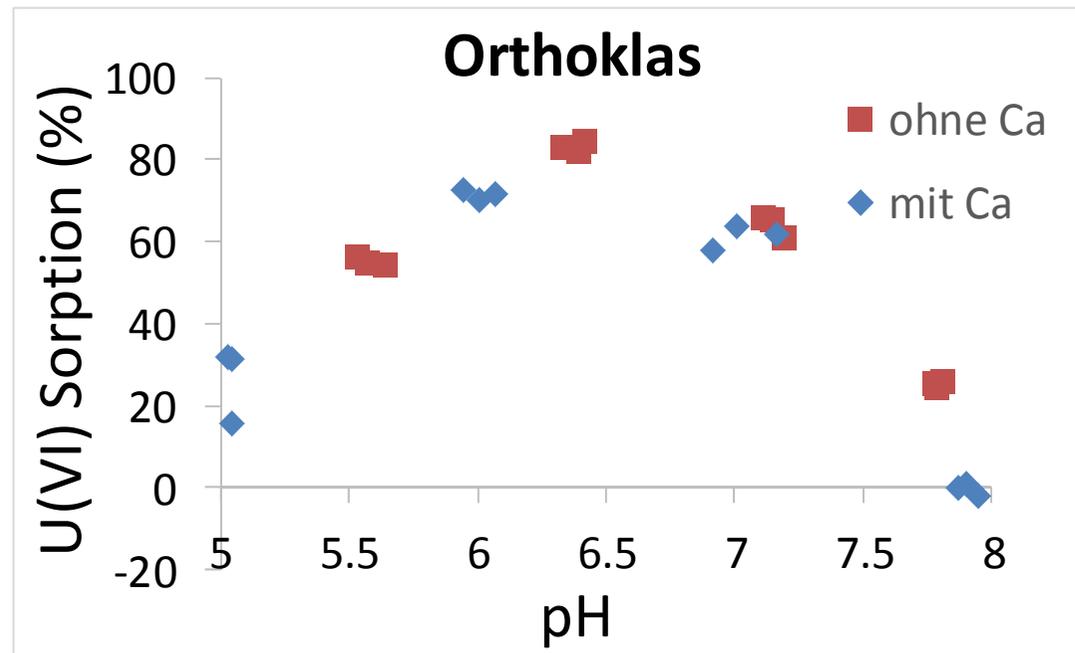
Anwendung des Modells:

Eu-Sorption an einem synthetischen Sediment (80% Quarz, 10% Muskovit, 10% Orthoklas)

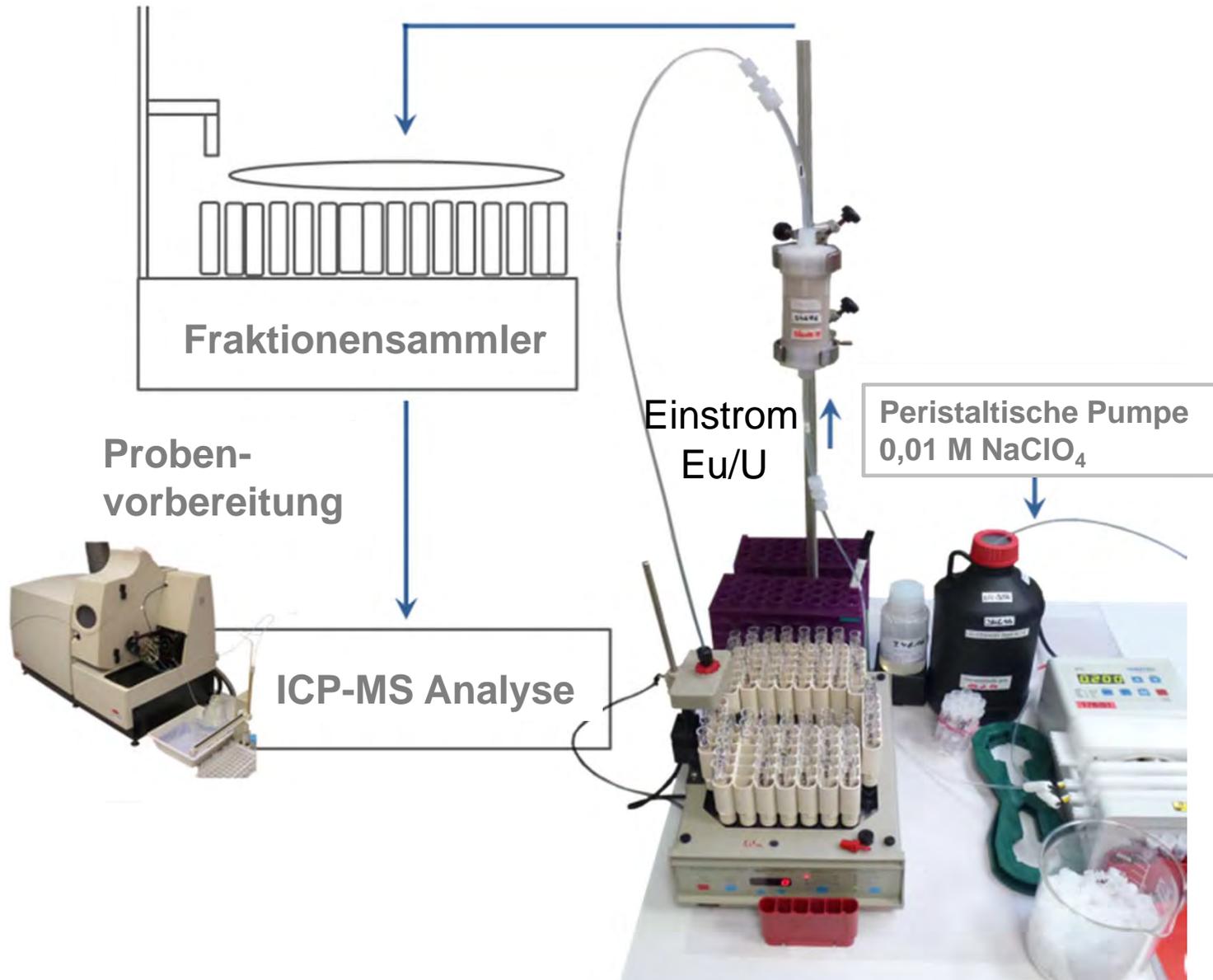


Überprüfung des Einflusses von Konkurrenz-Kationen: Batch-Experiment

10^{-6} M U(VI)
 $1,5 \cdot 10^{-3}$ M Ca
 M/V 1/20 g/ml
 0,01 M NaClO₄
 Sorptionszeit 7d

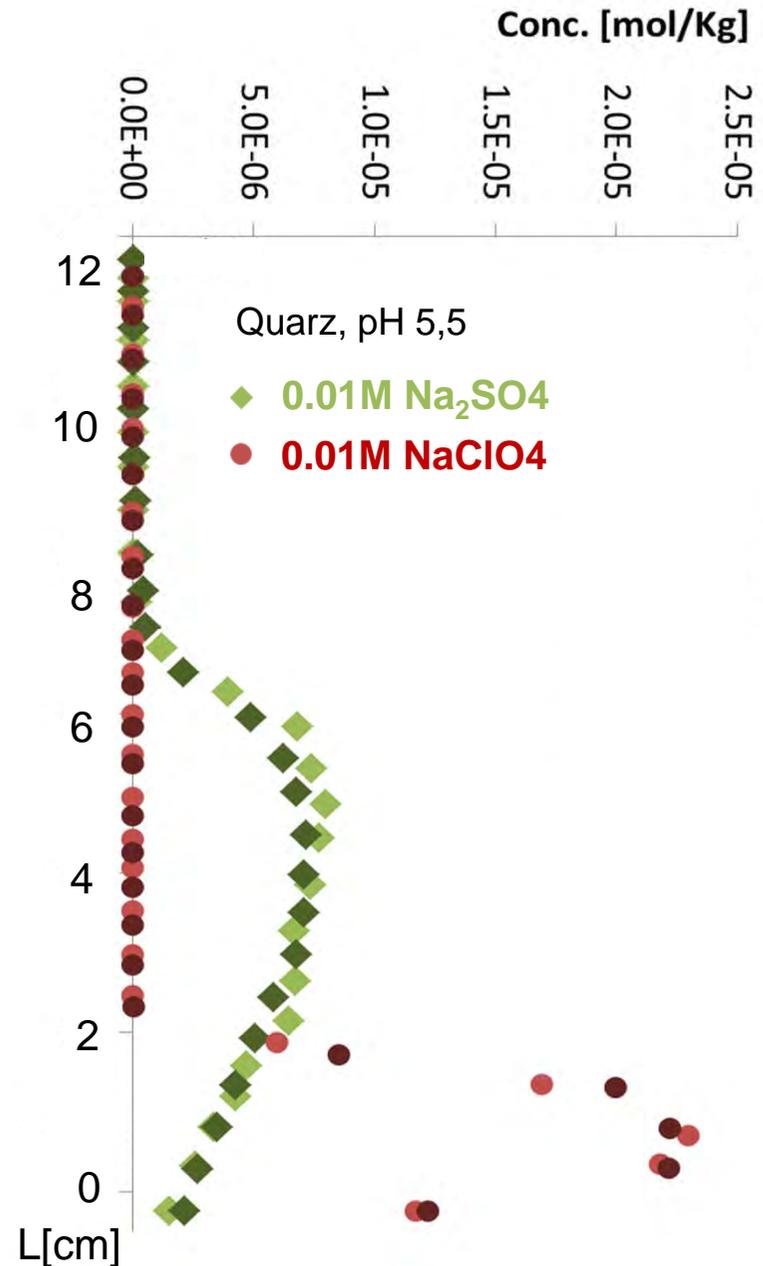


Säulenexperimente

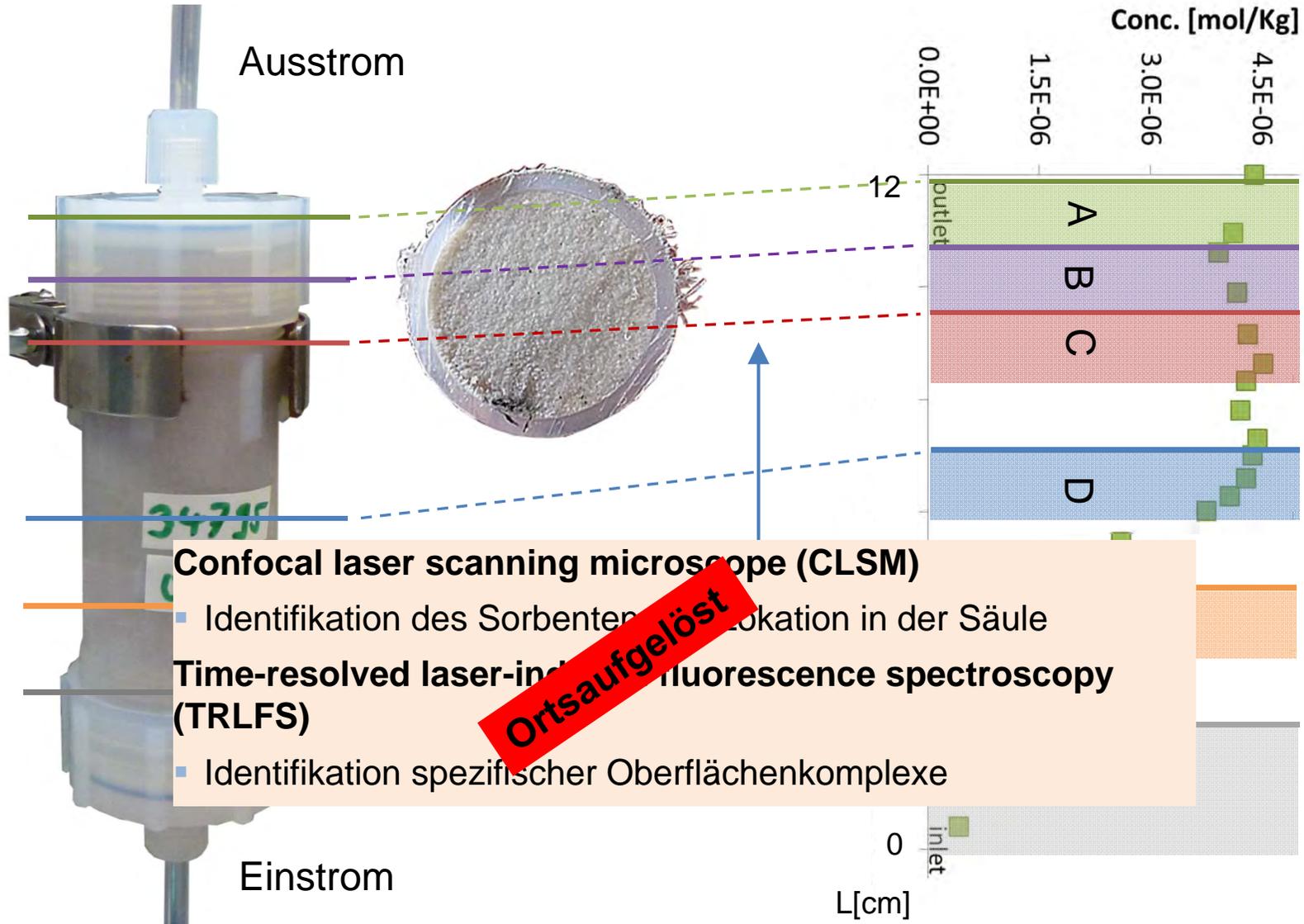


Einflusses von Liganden in Säulenexperimenten

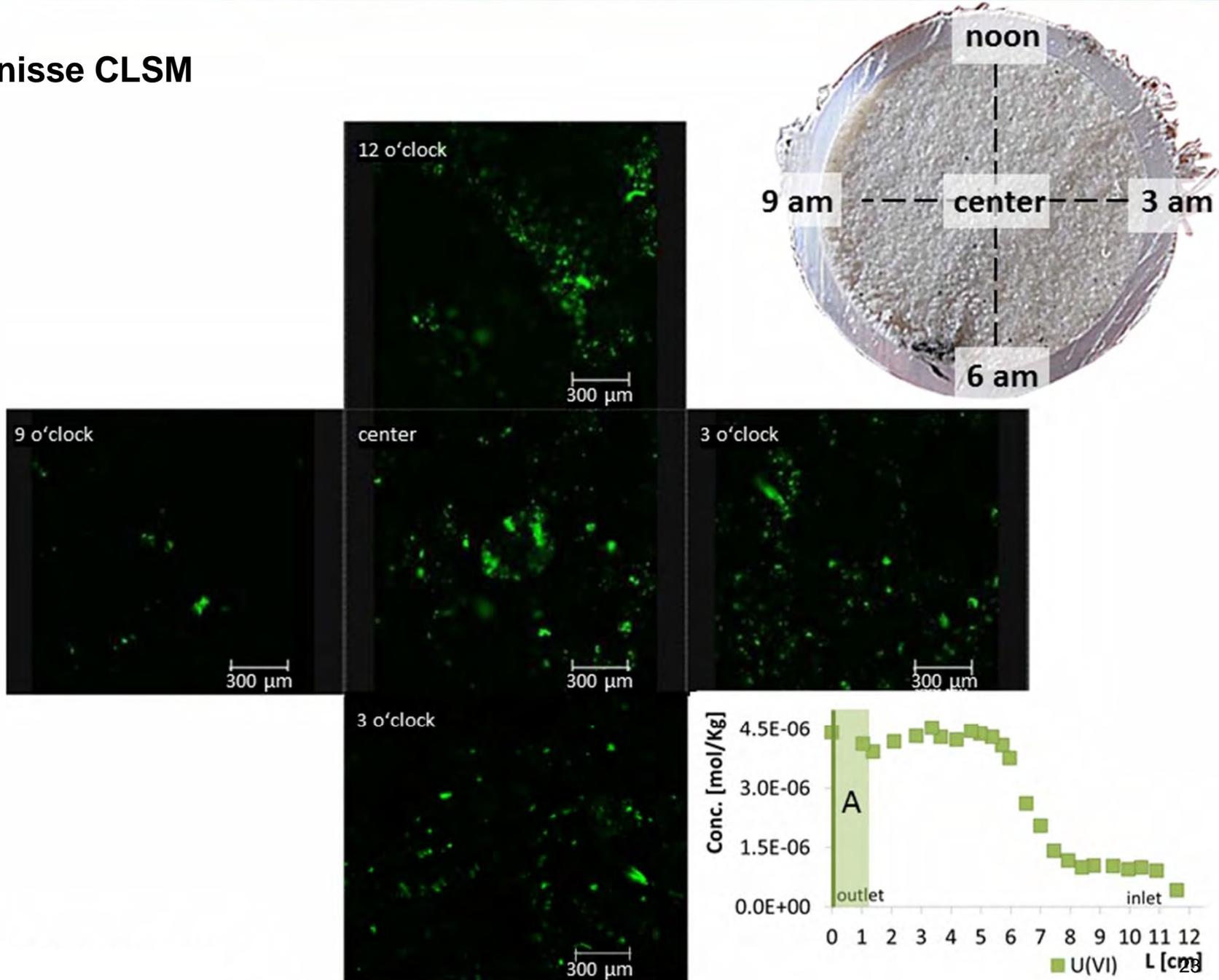
Bildung von Komplexen
 EuSO_4^+ , $\text{Eu}(\text{SO}_4)_2^-$
 → Geringere Sorption
 → Schnellerer Transport
 gegenüber Eu^{3+}



Methodenentwicklung: Charakterisierung von Oberflächenkomplexen

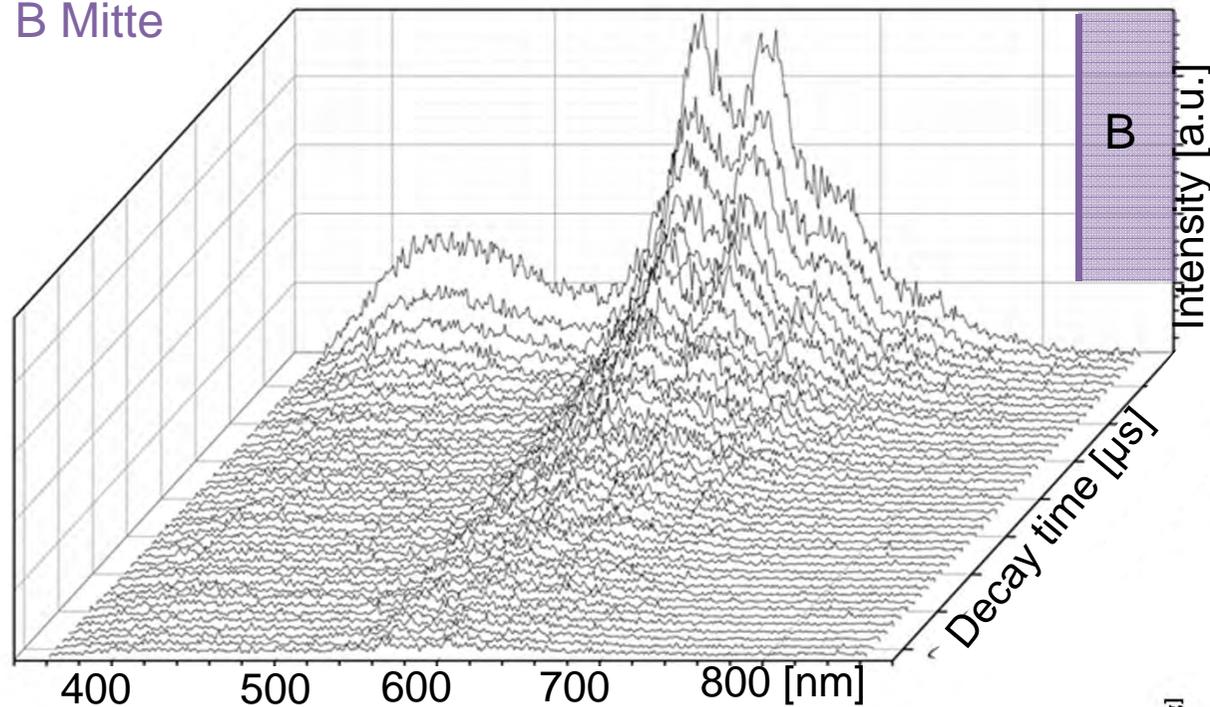


Ergebnisse CLSM



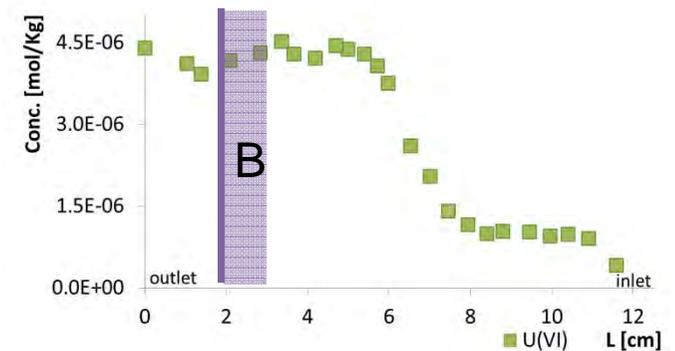
Ergebnisse TRLFS

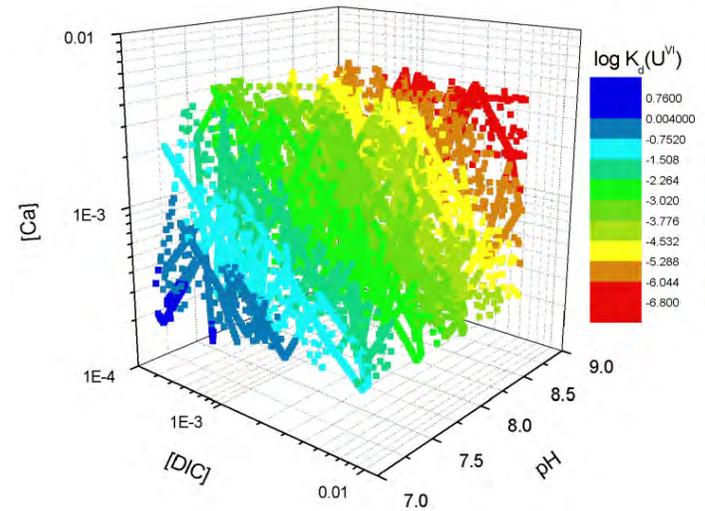
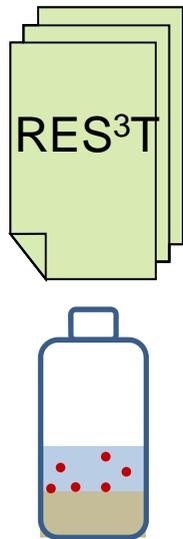
B Mitte



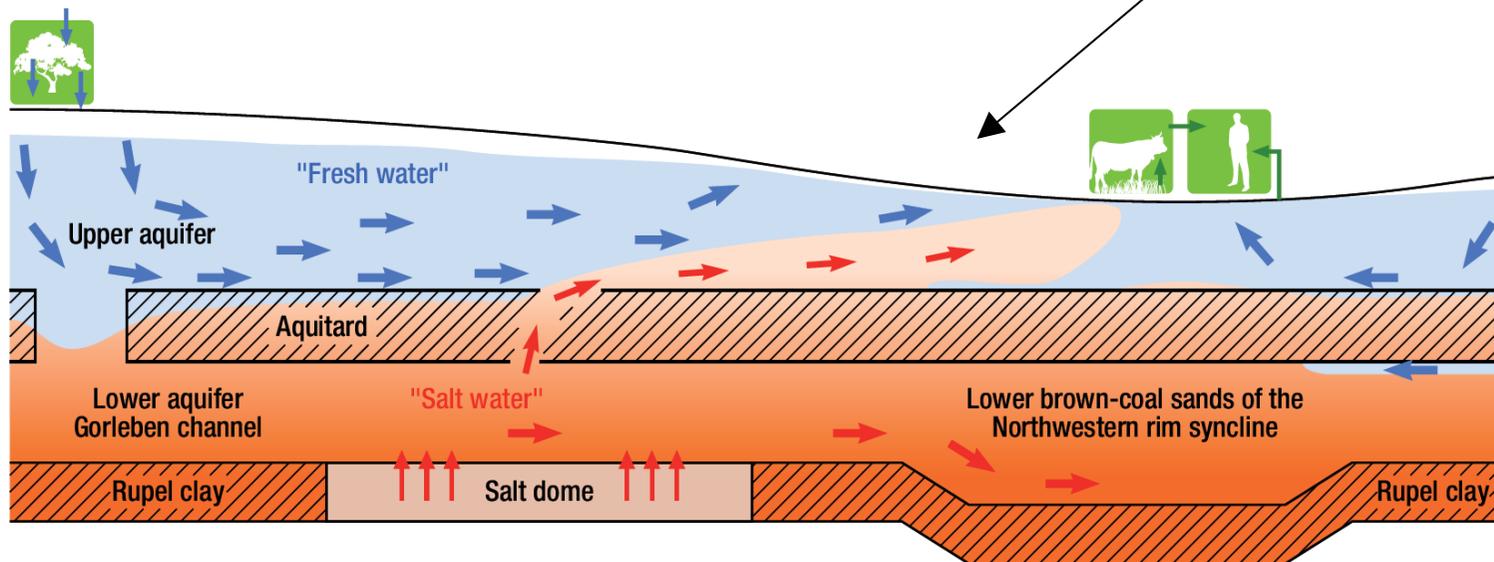
Zwei Spezies nachgewiesen

- Si-O₂-UO₂, Si-O₂-UO₂OH⁻
- entsprechend variierender geochemischer Parameter





Transportmodellierung

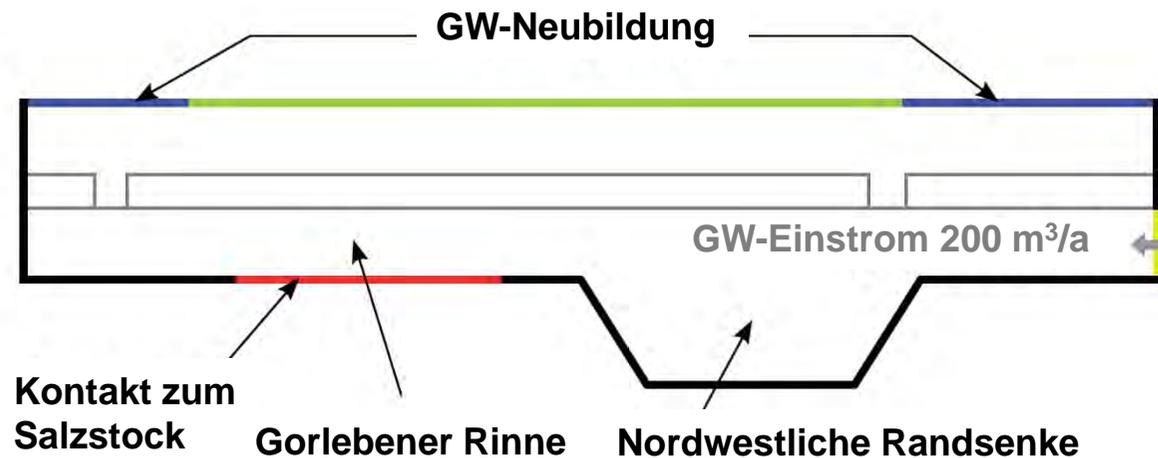


[nach Klinge et al., 2007]

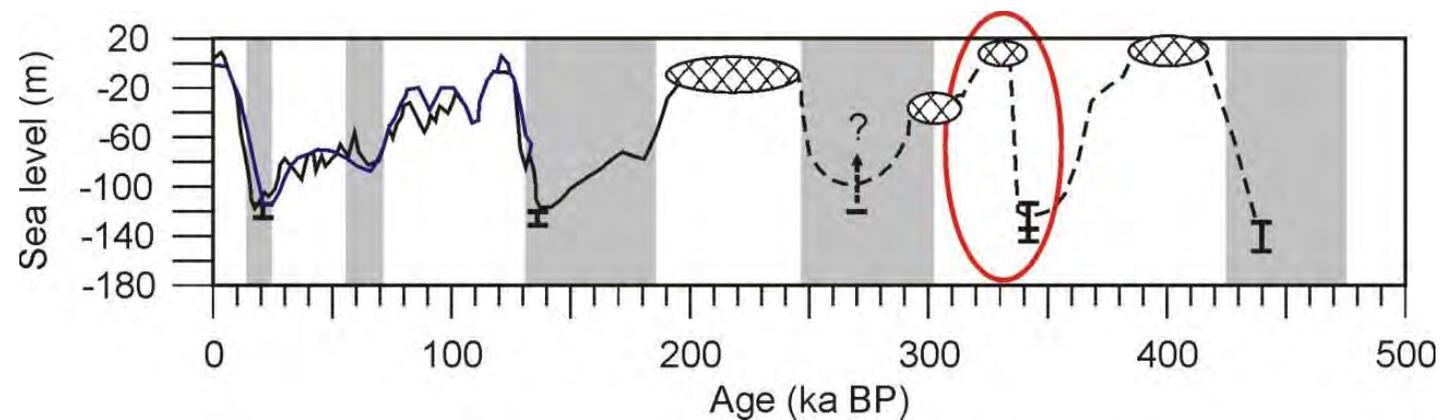
Grundwasserströmung: Modell

Annahmen

- Heutiges Klima / zukünftiges „konstantes Klima“



- Meerwasser-Überflutung

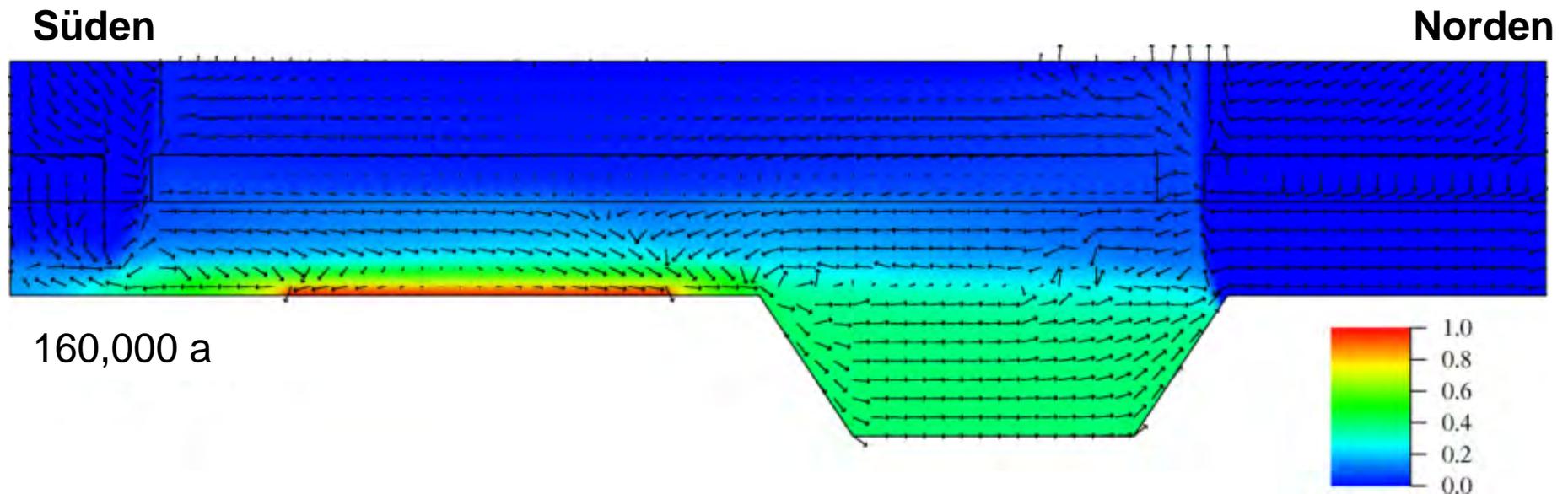


[nach Rohling et al., 1998]

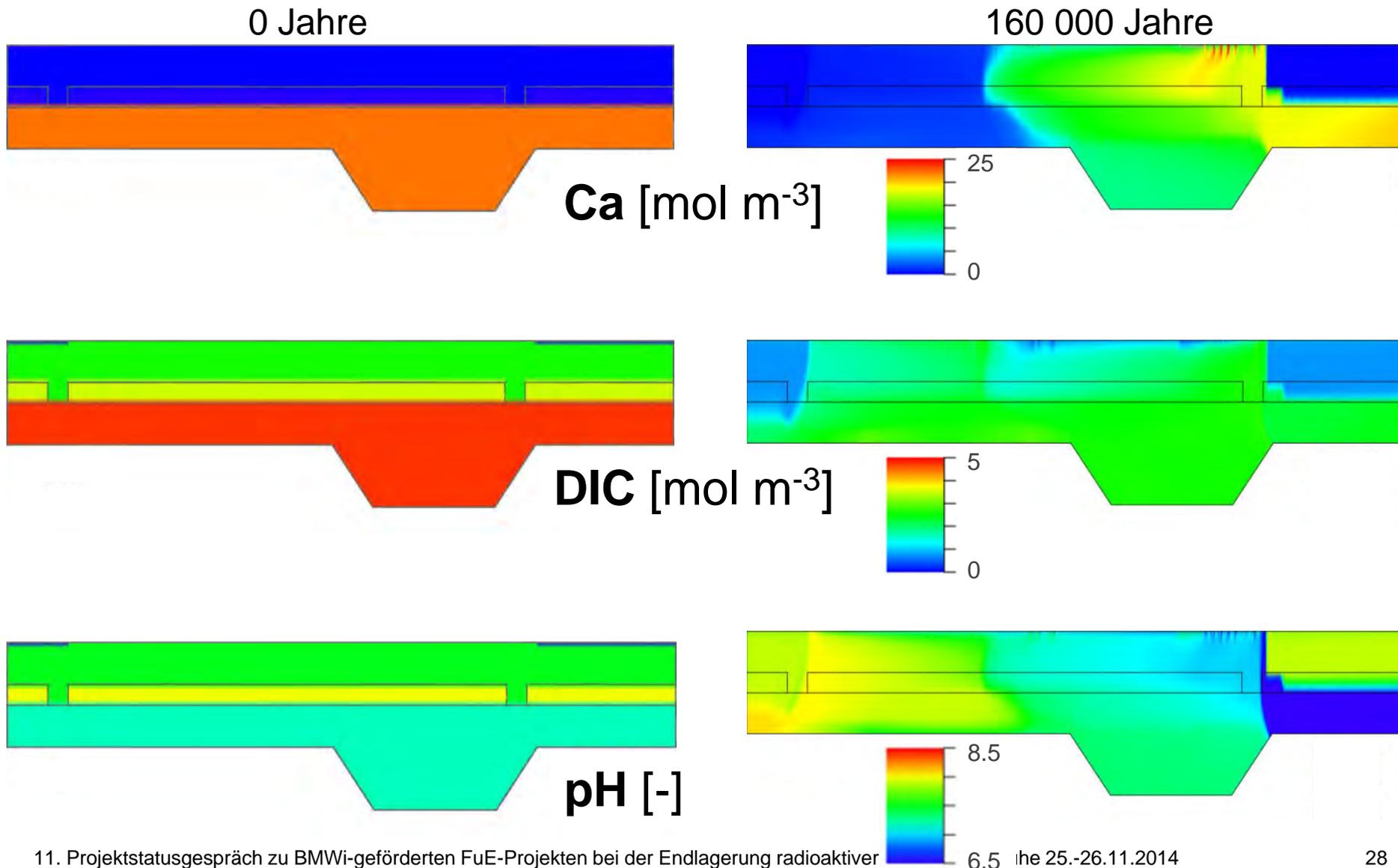
Grundwasserströmung: Ergebnisse

Anwendung auf **großes** Modellgebiet und **sehr lange** Zeiträume

- Relative Salzkonzentration [-] und Geschwindigkeitsfeld für konstante Randbedingungen (Farbskala)
- Länge der Geschwindigkeitsvektoren proportional zur GW-Geschwindigkeit



Berechnete Verteilung der Einflussgrößen



Berechnete Verteilung der Einflussgrößen

Grundwasserneubildung im nördlichen und südlichen Teil des oberen Grundwasserleiters

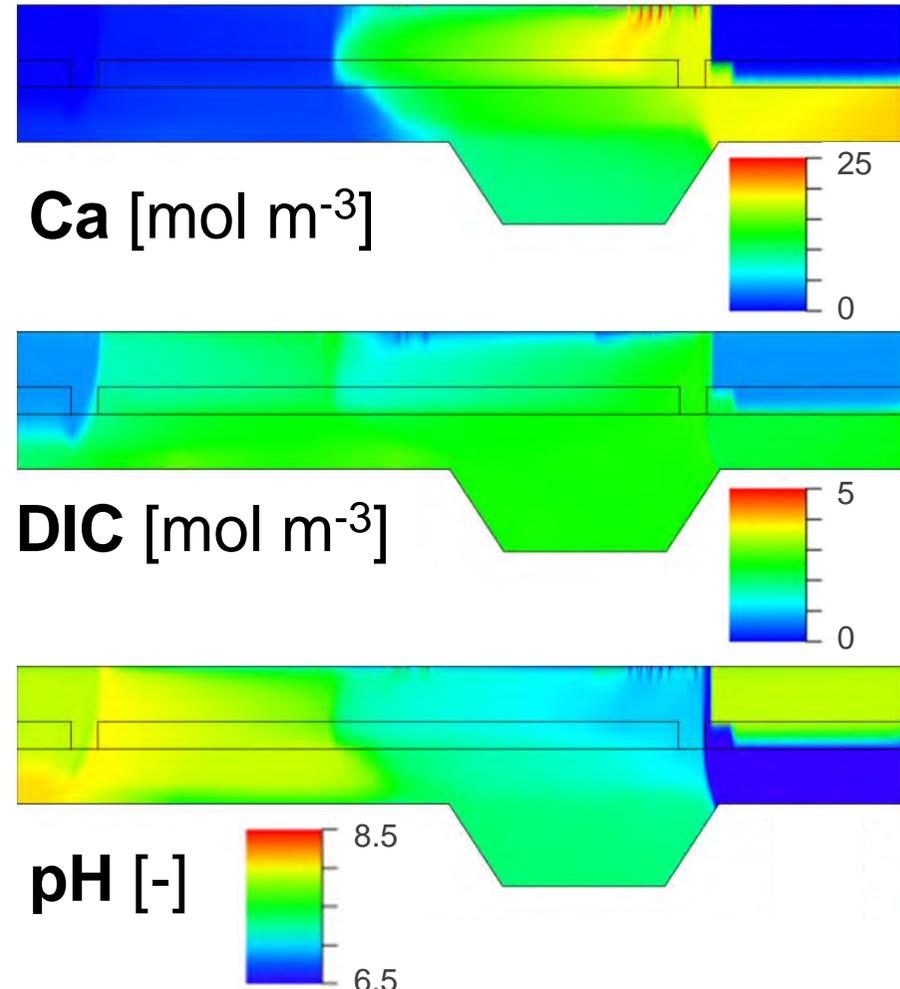
Regenwasser hat niedrigere pH-Werte, [Ca]- und [DIC]-Konzentration als das ursprüngliche Wasser

In den Grundwasserneubildungsgebieten löst sich Calcit

→ Anstieg des pH-Werts

→ Abnahme von [Ca] und [DIC]

160,000 a



Verteilung der K_d -Werte für Cs

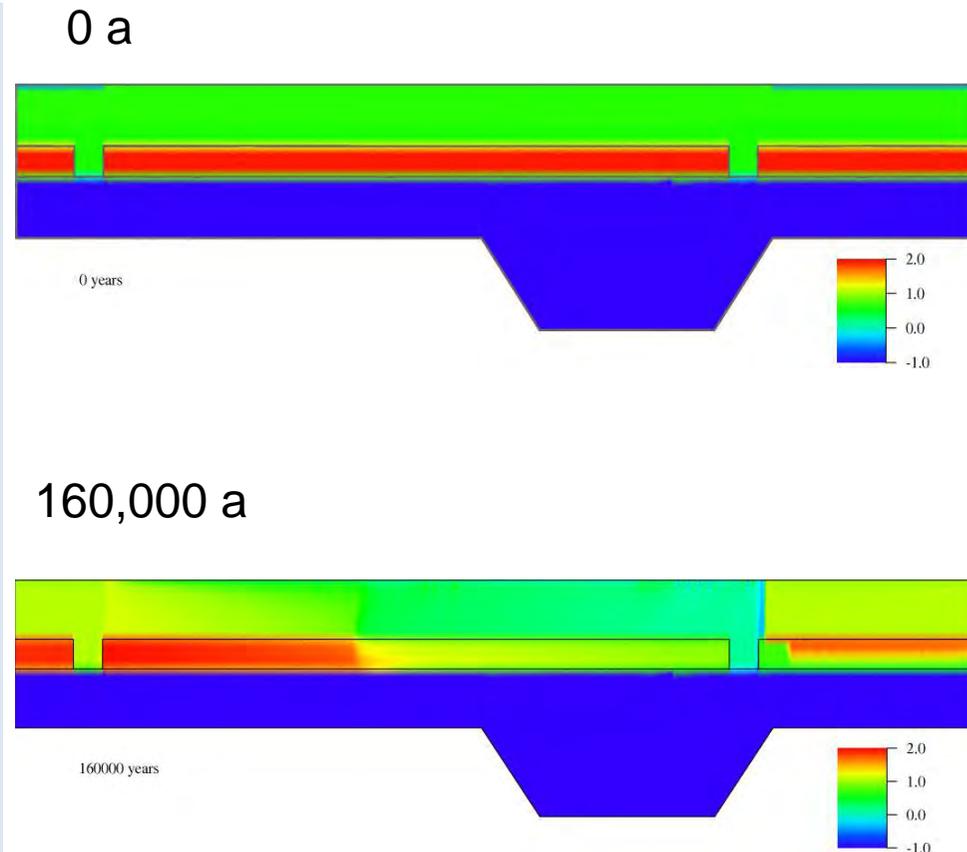
Grundwasserneubildung im nördlichen und südlichen Teil des oberen Grundwasserleiters

→ Anstieg des pH-Werts

→ Abnahme von [Ca] und [DIC]

Höchste K_d -Werte im Grundwasseringeleiter

In den Grundwasserneubildungs-Gebieten steigt der K_d -Wert entsprechend ansteigenden pH-Werten



Fazit und Ausblick

- Ein Konzept zur Berücksichtigung zeitlich und räumlich variabler K_d -Werte in Abhängigkeit variierender chemischer Bedingungen wurde entwickelt und getestet
- Konzept basiert auf mechanistischen Sorptionsmodellen
 - Relevante Einflussgrößen wurden identifiziert und in r^3t implementiert
 - Thermodynamische Datenbasis wurde auf die Problematik angepasst
 - Thermodynamische Daten für die betrachteten Sorptionssysteme wurden ermittelt
 - Literaturlauswertung
 - Sorptionsexperimente und Modellierung
- Weiterentwicklung und Überprüfung des Konzepts
 - Integration hochsalinärer Lösungen (Pitzer Daten)
 - Einbeziehung zusätzlicher Einflussparameter (z.B. weitere Liganden und Konkurrenzreaktionen)
 - Berücksichtigung von Redoxreaktionen

Vielen Dank!

Gefördert durch:



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie

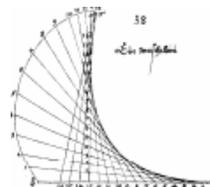


aufgrund eines Beschlusses
des Deutschen Bundestages

BETREUT VOM



PTKA
Projektträger Karlsruhe
Karlsruher Institut für Technologie



unter den FKZ 02 E 10518, 02 E 10528,
02 E 11072A und 02 E 11072B

