



**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH**

**Erarbeitung und
Bewertung der
wissenschaftlichen
Grundlagen zur
Sicherheitsanalyse
eines Endlagers in
der Nachbetriebs-
phase**



Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH

1232

Erarbeitung und
Bewertung der
wissenschaftlichen
Grundlagen zur
Sicherheitsanalyse
eines Endlagers in
der Nachbetriebs-
phase

Wernt Brewitz, Dieter Buhmann,
Eckhard Fein,
Rolf-Peter Hirsekorn,
Thomas Kühle, Ulrich Noseck,
Richard Storck, Christian Tix

Braunschweig
September 1996



**GSF-Forschungszentrum
Für Umwelt und Gesundheit
GmbH**

Institut für Tieflagerung

**GRS - 136
ISBN 3-923875-87-8**

Die diesem Bericht zugrundeliegenden Arbeiten wurden mit Mitteln des Bundesministeriums für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF) unter den Förderkennzeichen 02 E 8532 1 und 02 E 8775 1 gefördert. Im Zeitraum bis Juni 1995 wurden die Arbeiten vom GSF-Forschungszentrum am Institut für Tieflagerung in Braunschweig durchgeführt, ab Juli 1995 von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH im neugegründeten Fachbereich Endlagersicherheitsforschung. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt allein bei den Autoren.

Vorwort

Der Nachweis der Langzeitsicherheit von Endlagern für radioaktive Abfälle erfolgt auf der Basis von standortspezifischen Sicherheitsanalysen. Dafür werden Rechenprogramme und Daten verwendet, mit denen die relevanten physikalischen und chemischen Prozesse bei der Freisetzung der Nuklide, bei der Ausbreitung im Deckgebirge und bei der Exposition in der Biosphäre beschrieben werden. In zahlreichen nationalen und internationalen Vorhaben werden zu den wichtigen physikalischen und chemischen Fragestellungen theoretische und experimentelle Untersuchungen durchgeführt. Ein wesentliches Ziel des Vorhabens "Erarbeitung und Bewertung der wissenschaftlichen Grundlagen zur Sicherheitsanalyse eines Endlagers in der Nachbetriebsphase", FKZ: 02 E 8532 1 und 02 E 8775 1, war die Verfolgung dieser Arbeiten und die Auswertung der wissenschaftlichen Ergebnisse hinsichtlich der Bereitstellung neuer Modellansätze und Daten für Langzeitsicherheitsanalysen. Im Zeitraum bis Juni 1995 wurden diese Arbeiten vom GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, GmbH am Institut für Tief Lagerung in Braunschweig durchgeführt, ab Juli 1995 von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH im neugegründeten Fachbereich Endlagersicherheitsforschung.

Zu diesem sonderfinanzierten Vorhaben des Bundesministeriums für Forschung und Technologie (BMFT) - heute Bundesministerium für Bildung, Wissenschaft, Forschung und Technologie (BMBF) - in der Zeit vom 01.07.1992 bis 31.03.1996 sind vier wissenschaftliche Berichte entstanden, die die Ergebnisse des Vorhabens dokumentieren. Die Titel dieser Berichte lauten:

- GRS-Bericht 132 Ableitung einer Permeabilitäts-Porositäts-Beziehung für Salzgrus und Dammbaumaterialien.

- GRS-Bericht 133 Auswertung von in-situ Konvergenzdaten und Ableitung eines Modellansatzes.

- GRS-Bericht 134 Auswertung von Sorptionsdaten hinsichtlich nichtlinearer Sorptionsmodelle für die Nuklid Ausbreitung im Deckgebirge.

GRS-Bericht 135 Gegenüberstellung einiger Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen

In diesen vier Berichten werden die zu den Schwerpunktthemen des Vorhabens durchgeführten wissenschaftlichen Arbeiten ausführlich dargestellt.

Daneben ist der vorliegende Bericht angefertigt worden, der alle während der Projektlaufzeit durchgeführten Arbeiten in Kurzbeiträgen zusammenfaßt:

GRS-Bericht-136 Erarbeitung und Bewertung der wissenschaftlichen Grundlagen zur Sicherheitsanalyse eines Endlagers in der Nachbetriebsphase

V

Inhaltsverzeichnis

Vorwort	I
Inhaltsverzeichnis	III
1 Einleitung	1
2 Zielsetzung des Vorhabens	3
3 Aufarbeitung von Forschungsergebnissen nationaler Arbeiten	5
3.2 Konvergenzverhalten von Salzgestein	5
3.3 Durchlässigkeit von Versatz und Verschlüssen	9
3.4 Auslaugverhalten von zementierten Abfällen	12
3.5 Chemisches Milieu im Nahbereich	15
3.6 Sorption im Deckgebirge	18
3.7 Systematik und Strategien der Szenarienanalyse	22
3.8 Gegenüberstellung einiger Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen	24
4 Verfolgung internationaler Aktivitäten	29
4.1 NEA-Arbeitsgruppen SEDE und PAAG	29
4.2 Menschliche Einwirkungen	31
4.3 Probabilistic System Assessment Group (PSAG)	34
4.4 Integrated Performance Assessments Group (IPAG)	35
4.5 CHEMVAL	36
4.6 MIGRATION-95	38
4.7 Rechenmodelle für die Geosphäre	39
5 Bewertung bisheriger und geplanter Vorhaben	41
5.1 Szenarienanalyse	41
5.2 Verhalten technischer Barrieren	42
5.3 Geochemische Effekte im Nahbereich	44

5.4 Gebirgs-, Hohlraum- und Versatzverhalten 46

5.5 Transportvorgänge in der Geosphäre 47

5.6 Methodenentwicklung und Rechenprogramme für Langzeitsicherheitsanalysen 50

5.7 Validierungsstrategien und Qualitätssicherung von Rechenprogrammen . 51

6 Zusammenfassung 55

7 Literatur 59

1 Einleitung

Für die Sicherheitsbewertung von Endlagern für radioaktive Abfälle ist ein leistungsfähiges rechentechnisches Instrumentarium notwendig. Zur Modellierung aller Vorgänge in einem vollständigen Endlagersystem, wie Schadstofffreisetzung aus dem Nahbereich, Transport von Schadstoffen in der Geosphäre und Dosisbelastung in der Biosphäre, wird in Deutschland das Rechenprogramm EMOS [1] eingesetzt. Für dieses Instrumentarium müssen Modelle und Datensätze zur Verfügung gestellt werden, die dem aktuellen Kenntnisstand anzupassen sind.

Zu diesem Zweck wurde im Rahmen dieses FuE-Vorhabens der aktuelle Kenntnisstand zu einzelnen Modellen und Daten aufgearbeitet. Vorrangig wurden die Ergebnisse von experimentellen FuE-Vorhaben in der Bundesrepublik aufbereitet. Darüberhinaus wurden auch die neueren Erkenntnisse aus entsprechend orientierten internationalen Forschungsprogrammen berücksichtigt. Schwerpunktmäßig wurden solche Problemstellungen bearbeitet, die zu Beginn des Vorhabens als offene Fragen identifiziert wurden und in das dem BMBF vom Sachverständigenkreis Endlagerung (SKE) empfohlene Förderprogramm Eingang gefunden haben. Noch erforderliche Arbeiten zur Weiterentwicklung der Instrumentarien und zur Durchführung von Langzeitsicherheitsanalysen wurden spezifiziert.

Die durchgeführten Arbeiten lassen sich in drei verschiedene Teilaufgaben gliedern:

- TA 1 Aufarbeitung der Ergebnisse bereits abgeschlossener nationaler Arbeiten zum Langzeitsicherheitsnachweis von Endlagern zur Berücksichtigung in Instrumentarien zur Durchführung von Langzeitsicherheitsanalysen.
- TA 2 Verfolgung inter- und multinationaler Aktivitäten zur Langzeitsicherheitsanalyse mit Bewertung der Ergebnisse für die Langzeitsicherheitsanalyse von Endlagern in Salzgestein.

TA 3 Bewertung bisheriger und geplanter FE-Vorhaben und Spezifizierung zukünftiger experimenteller und/oder theoretischer FuE-Vorhaben auf der Basis der bereits festgestellten, nachgewiesenen oder sich aus laufenden FuE-Vorhaben ergebenden Kenntnislücken zur Verbesserung der Prognosegenauigkeit, zur Durchführung und zur Absicherung von Langzeitsicherheitsanalysen.

Entsprechend diesen drei Teilaufgaben wurde auch der Abschlußbericht gegliedert. Die bei der Bearbeitung der drei Teilaufgaben erzielten Ergebnisse werden in den Kapiteln 3, 4 und 5 dargestellt.

2 Zielsetzung des Vorhabens

Zielsetzung des Vorhabens war die Auswertung und Bewertung wissenschaftlicher Ergebnisse nationaler und internationaler Arbeiten, die in Modellvorstellungen und Modelldaten von Langzeitsicherheitsanalysen zu berücksichtigen sind. Dies erfolgte im Hinblick auf die Planung zukünftiger Arbeiten in enger Abstimmung mit dem Projektträger Entsorgung des BMBF. Vorrangig sollten Modellansätze und Daten zu den folgenden Querschnittsthemen erarbeitet bzw. aktualisiert werden:

- Konvergenzverhalten von Salzgesteinen,
- Verhalten von Versatz und Verschlüssen,
- Auslaugverhalten von zementierten Abfällen,
- Chemisches Milieu im Nahbereich,
- Sorption im Deckgebirge und
- Systematik von Szenarienanalysen.

Internationale Arbeiten wurden verfolgt und die sich daraus ergebenden Konsequenzen für das deutsche Endlagerkonzept für radioaktive Abfälle aufgezeigt. Auf der Basis vorliegender wissenschaftlicher Ergebnisse sollten zukünftige experimentelle und theoretische FuE-Vorhaben spezifiziert werden, die vorhandene Kenntnislücken schließen und zur Verbesserung der Prognosegenauigkeit von Langzeitsicherheitsanalysen führen können.

Ferner wurde mit dem Projektträger Entsorgung Anfang 1995 vereinbart, im Rahmen des Projekts "Gegenüberstellung von Endlagern in Salz und Hartgestein" (GEISHA) Langzeitsicherheitsanalysen in Salz- und Granitformationen hinsichtlich der verwendeten Modellansätze und der Wirksamkeit der einzelnen Barrieren gegenüberzustellen. Dies soll als Basis für eine Erweiterung der bisher verwendeten sicherheitsanalytischen Rechenprogramme für Langzeitsicherheitsanalysen von Endlagern in Salzgestein auf andere geologische Formationen dienen.

3 Aufarbeitung von Forschungsergebnissen nationaler Arbeiten

Im Rahmen dieses Projekts wurden vorliegende wissenschaftliche Ergebnisse zu den fünf genannten Schwerpunktthemen ausgewertet. Im einzelnen wurden aktuelle Ergebnisse mit den bisher in Langzeitsicherheitsanalysen verwendeten Modellansätzen und Daten verglichen. Als Resultat wurden neue Modelle und Modelldatensätze für einzelne chemische und physikalische Effekte zur Verwendung in Langzeitsicherheitsanalysen vorgeschlagen. Die möglichen Auswirkungen dieser neu verwendeten Modellansätze und -daten auf die Ergebnisse der Langzeitsicherheitsanalyse wurden durch Modellrechnungen abgeschätzt. Die detaillierten Ergebnisse dieser Arbeiten sind teilweise in den getrennt veröffentlichten wissenschaftlichen Berichten dokumentiert und werden in den folgenden Kapiteln zusammenfassend erläutert.

3.1 Konvergenzverhalten von Salzgestein

Bergmännisch erstellte Hohlräume in Salzformationen und Salzstöcken unterliegen in großen Tiefen Konvergenzprozessen. Ihr Volumen reduziert sich demnach mit der Zeit durch das aus der Umgebung einfließende Steinsalz bis zum vollständigen Verschwinden. Im Rahmen der nationalen Forschungsarbeiten zur Endlagerung wärmeerzeugender Abfälle wurde besonders das thermomechanische Verhalten von Salzgestein hinsichtlich der Konvergenz der Hohlräume untersucht. Eine ausführliche Darstellung der zu diesem Thema durchgeführten Arbeiten ist in dem GRS-Bericht 133, Auswertung von in-situ Konvergenzdaten und Ableitung eines Modellansatzes [2], enthalten. Die wesentlichen Ergebnisse werden im folgenden zusammengefaßt.

Die Kenntnis der Konvergenz des Salzgesteins und der daraus resultierenden Volumenreduktion von Hohlräumen ist bei der Einlagerung von radioaktiven Abfällen in Salzformationen von Interesse, da durch die Abnahme des Porenvolumens in den mit Salzgrus verfüllten Räumen die Abfälle nach einiger Zeit vollständig von Steinsalz eingeschlossen und damit gegenüber Störeinflüssen wie z.B. Laugenzutritt isoliert sind. Tritt andererseits vor dem Einschluß des Abfalls Lauge in den Hohlraum ein, so führt die Konvergenz zum Auspressen der Lauge aus dem Hohlraum und kann damit der Hauptan-

triebsmechanismus für eine Radionuklidfreisetzung sein. Sie stellt damit einen wichtigen Faktor bei der Modellierung von Störfallszenarien für die Endlagerung von radioaktiven Abfällen in Salzformationen dar.

Die Konvergenz wird durch die Kriech- oder Fließfähigkeit des Salzes ermöglicht, d.h. Salzgestein zeigt neben der elastischen Verformung unter Druck auch bleibende plastische Verformungen. Sie hängt stark von der Temperatur, dem Druck, der Zusammensetzung des Salzgesteins und der Zeit ab.

Makroskopisch beschreiben läßt sich die Konvergenz des Salzgesteins durch die Elastizitäts- und Plastizitätstheorie. Zur Lösung der elasto-plastischen Gleichungen benötigt man Materialparameter und Stoffgesetze. Laborexperimente, die sich mit der sogenannten Kriechrate beschäftigen, zeigen allerdings Unterschiede in der Kriechrate von mehreren Größenordnungen. Folglich erschien es sinnvoll, die fehlenden Parameter in den theoretisch abgeleiteten Konvergenzraten durch In-situ-Experimente, also Messungen direkt im Salzstock, zu ermitteln. Dazu wurden die Konvergenzmessungen im Forschungsbergwerk Asse ausgewertet und mit den vorhandenen und einigen neuen theoretischen Vorhersagen verglichen. Insbesondere wurde ein Vergleich mit dem im Rechencode EMOS [1] verwendeten Konvergenzansatz durchgeführt.

Im Forschungsbergwerk Asse wurden verschiedene Versuche zur Konvergenz durchgeführt. Es wurden die Versuche im Brine Migration Testfeld (BMT), in der Kaverne, im High Active Waste (HAW)-Testfeld, im Medium Active Waste (MAW)-Testfeld, im Versuchsfeld vom Energieonderzoek Centrum Nederland (ECN) und im Versuchsfeld zur Thermischen Simulation der Streckenlagerung (TSS) ausgewertet. In den Versuchen wurden die Konvergenzen von Strecken und teilweise auch von Bohrlöchern gemessen, der Gebirgsdruck bestimmt und teilweise Temperaturmessungen durchgeführt. Im ECN-Versuch wurde systematisch die Abhängigkeit von Druck und Temperatur untersucht, im TSS-Versuch wurde eine mit Salzgrusversatz verfüllte Strecke untersucht. Seit 1995 werden diese Messungen im TSS-Nachfolgevorhaben "Experimentelle Untersuchungen des Verhaltens von Versatz in Strecken" (VVS) weitergeführt. Im MAW-Versuch wurde die Konvergenz von feuchten und trockenen Bohrlöchern gemessen. Alle Versuche zeigten eine in der Größenordnung übereinstimmende Konvergenzrate.

Da es bisher nur wenige Modelle gibt, die den Einfluß des Versatzes auf die Konvergenzrate berücksichtigen und ausreichend theoretisch begründet sind, wurde das bestehende Konvergenzmodell erweitert. Es wurde ein Modell entwickelt, das die Stützwirkung des Versatzes in Abhängigkeit von der Porosität auf einfache Weise berücksichtigt. Die einzigen physikalischen Voraussetzungen, die in das Modell eingehen, sind die unabhängige Konvergenz der einzelnen Porenhohlräume bei einer hinreichend kleinen Porosität und der Effekt, daß Versatz mit einer Porosität über der sogenannten Referenzporosität keine Stützwirkung besitzt. Dies liefert die Konvergenzrate für kleine und große Porositäten. Der dazwischenliegende Porositätsbereich wird durch eine rationale Funktion approximiert und die enthaltenen Parameter anhand experimenteller Ergebnisse bestimmt. Das hier entwickelte einfache Modell wurde mit den bisher vorliegenden Modellen verglichen.

Aufgrund der bisher kurzen Dauer der experimentellen Untersuchungen konnte noch keine Entscheidung getroffen werden, welches der vorliegenden Modelle die Stützwirkung des Versatzes besser beschreibt. Ein Modell, das außerdem den Einfluß der Feuchte des Versatzes berücksichtigt, konnte nicht abgeleitet werden, da hierzu keine ausreichenden Erkenntnisse und absichernde Messungen vorliegen.

Neben der Porosität des Versatzes geht in den Konvergenzansatz die Temperatur des umgebenden Salzgesteins ein. Im Bereich wärmeproduzierender Abfälle stellt sich ein inhomogenes Temperaturfeld ein. Die Temperaturabhängigkeit wird in dem bisher verwendeten Konvergenzmodell durch einen Arrhenius-Term berücksichtigt. In diesen Term geht eine zeitabhängige Temperatur ein, die in einem bestimmten, repräsentativen Abstand von der Wärmequelle ermittelt wird. Je nach Wahl dieses Ortes der repräsentativen Temperatur können sich die erhaltenen Konvergenzraten um mehrere Größenordnungen unterscheiden. In bisherigen Analysen wurde die Temperatur an der Oberfläche des Hohlräume, bzw. im Bohrlochverschluß verwendet. Im vorliegenden Bericht wurde ein Formalismus vorgeschlagen in dem man durch eine numerische Integration des Temperaturfeldes diese repräsentative Temperatur ermitteln kann.

Hinsichtlich des Temperatureinflusses wurde ein Vergleich mit experimentellen Ergebnissen des HAW- und des MAW-Versuches durchgeführt. In diesen Versuchen wurde u. a. der Einfluß einer Temperaturerhöhung des Salzgesteins auf die Konvergenz unter-

sucht. Die durch eine Erhitzung der Bohrlöcher erzeugte kurzfristig höhere Konvergenzrate konnte durch die thermische Ausdehnung des Gesteins erklärt werden. Für längere Zeiträume wird die Temperaturabhängigkeit der Konvergenz durch den oben beschriebenen Formalismus zur Ermittlung einer repräsentativen Temperatur besser wiedergegeben.

Zusammenfassend läßt sich sagen:

- Es wurden erste Schritte zur Validierung des Konvergenzansatzes gemacht. Die vorliegenden experimentellen Daten sind zur Überprüfung des Langzeitverhaltens der Konvergenz und der Stützwirkung von Versatz bei sehr niedriger Porosität jedoch nicht ausreichend.
- Die unterschiedliche Stützwirkung von nassem, feuchten oder trockenen Versatz stellt weiterhin ein offenes Problem dar. Während Laborversuche an Salzproben einen deutlichen Einfluß der Feuchte zeigen, konnte dies im In-situ-Versuch noch nicht bestätigt werden.
- Die Temperaturabhängigkeit der Konvergenzrate wurde theoretisch untersucht und ein Formalismus zur Abschätzung des geeigneten, repräsentativen Temperaturwertes zur Verwendung im bisherigen Konvergenzansatz vorgeschlagen.
- Für die explizite Zeitabhängigkeit der Konvergenzrate durch die Zusammenwirkung der elastischen und der plastischen Verformung des Salzgesteins wurde ein erweiterter Ansatz vorgeschlagen.
- Die Stützwirkung des Versatzes kann mit einem einfacheren, auf wenigen Annahmen beruhenden Ansatz berücksichtigt werden, allerdings können mit diesem Ansatz keine speziellen Eigenschaften des Versatzes wie Körnigkeit oder Feuchte verarbeitet werden.

3.2 Durchlässigkeit von Versatz und Verschlüssen

Ein wichtiges Szenario bei Sicherheitsanalysen für Endlager im Salzgestein stellt der Zutritt von Laugen sowie insbesondere der anschließende Austritt kontaminierter Lauge dar. Wichtige Kenngrößen für diesen Prozeß sind die Permeabilitäten oder auch Durch-

lässigkeit des Versatzes, der Dammbauwerke, der sonstigen Verschlüsse sowie des Wirtsgesteins selbst. Die Permeabilität der Materialien hängt empfindlich von deren Porosität ab.

In den bisherigen Planungen ist für die Verfüllung der Hohlräume des Endlagers Salzgrus vorgesehen, der beim Auffahren der Strecken und Kammern anfällt. Der in der vorliegenden Arbeit durchgeführten Zusammenfassung und den Bewertungen zum Versatz wurden jedoch vorwiegend Untersuchungen an sogenanntem Laborversatz zugrundegelegt. Darunter ist Salzgrus zu verstehen, der aus technischen Gründen eine im Vergleich zu dem Material, das bei der Streckenauffahrung mit einer Teilschnittmaschine anfällt, differierende Korngrößenverteilung aufweist. Im Labor wurden die jeweils verwendeten Körnungen im allgemeinen durch Absieben der Grobfractionen eingestellt.

Des weiteren weisen die Laborproben in der Regel unterschiedliche mineralogische Zusammensetzungen auf und wurden zudem mit unterschiedlichen Anfangsdichten, Feuchtegehalten und Kompaktionsgeschwindigkeiten und zum Teil auch bei unterschiedlichen Temperaturen hergestellt. Die oben genannten Unterschiede in der Probenherstellung können auch bei gleicher Porosität zu unterschiedlichen Permeabilitäten führen. Auch unterschiedliche Permeabilitätsmeßtechniken können insbesondere bei niedrigen Porengehalten die Meßergebnisse systematisch beeinflussen. Die Kenntnis dieser Einflüsse ist für die sachgerechte Bewertung der betrachteten experimentellen Ergebnisse für Salzgrusversatz unbedingt erforderlich.

Zusätzlich zu den Untersuchungsergebnissen an den im Labor hergestellten Versatzproben wurden Meßwerte für alten, über Jahrzehnte in-situ-verfestigten Versatz sowie aus dem In-situ-Versuch zur Thermischen Simulation der Streckenlagerung (TSS) im Forschungsbergwerk Asse einbezogen. Eine ausführliche Darstellung der zu diesem Thema durchgeführten Arbeiten ist in dem GRS-Bericht 132, Ableitung einer Permeabilitäts-Porositätsbeziehung für Salzgrus und Dammbaumaterialien [3], enthalten. Die wesentlichen Ergebnisse werden im folgenden zusammengefaßt.

Es war das Ziel dieser Arbeit, die vorliegenden experimentellen Daten zur Permeabilität von Salzgrusversatz, Salzbricketts und Salzionmörtel zusammenzutragen und auf ihre Anwendbarkeit für die Modellierung der Vorgänge in einem salinaren Endlager zu über-

prüfen. Zu diesem Zweck wurden Regressions- und Korrelationsanalysen an einem ausgewählten Satz von als geeignet angesehener Daten durchgeführt. Die doppellogarithmische Darstellung dieser Daten bestätigte den bisher verwendeten Ansatz für die Abhängigkeit der Permeabilität k von der Porosität n der Form $k = A \cdot n^m$. Die statistischen Analysen der Datenbasis mit diesem Ansatz lieferten die Parameter A und m , deren Korrelationskoeffizienten, Dichteverteilungen und Konfidenzbereiche.

In einem weiteren Schritt wurden die Verteilungsdichten der Regressionsparameter bestimmt. Diese erwiesen sich bei dem gewählten Formelansatz als stark miteinander korreliert. Eine solche Korrelation ist bisher nicht berücksichtigt worden. Die mathematische Grundlage für die Ableitung der zugehörigen bivariaten Dichteverteilung miteinander korrelierter Parameter war nicht allgemein bekannt und wurde daher in einem Unterauftrag von der Firma RISA, Berlin, geliefert. Die Ergebnisse dieser Untersuchung sind vollständig in [3] enthalten. Auf der Grundlage dieser Dichtefunktionen können Stichproben der Parameter für die Permeabilitäts-Porositätsbeziehung als Eingabeparameter, zum Beispiel für probabilistische Langzeitsicherheitsanalysen, gezogen werden.

Dabei wurde im einzelnen so vorgegangen, daß die bis Ende 1994 bekannt gewordenen Meßdaten zur Abhängigkeit der Porosität von der Permeabilität von Salzgrus darauf geprüft wurden, ob sie für die Einbeziehung in die Datenbasis für eine statistische Ermittlung der empirischen Beziehung geeignet sind. Die Auswahl erfolgte in der Weise, daß Ergebnisse von Versuchen, bei denen entweder das Material nicht repräsentativ oder unklarer Herkunft war, die experimentellen Randbedingungen oder die Versuchsdurchführung nicht sauber definiert waren oder deren Ergebnisse Schwankungen von mehreren Größenordnungen aufwiesen, ausgeschlossen wurden. Daraus resultierte eine Datenbasis aus einem Satz von 68 Meßwertepaaren, aus denen die Koeffizienten für das angenommene zweiparametrische Potenzgesetz per Regression ermittelt wurden.

Die Regression wurde für die transformierten Größen $\log(n)$ und $\log(k)$ vorgenommen, weil die Approximationskurve die kleinsten relativen Abweichungen von den Meßdaten haben sollte. Bei der Regression von n und k erhält man zwar eine gute Annäherung im Bereich der hohen Permeabilitäten, wogegen die niedrigen Werte aber nur schlecht approximiert werden. Mit den statistischen Bestwerten für die Parameter A und m lautet die Permeabilitäts-Porositätsbeziehung für Salzgrus $k = 1,837 \cdot 10^{-10} \cdot n^{3,823} \text{ [m}^2\text{]}$. Darin

ist für die Porosität n der dimensionslose Zahlenwert einzusetzen. Die Streuung der in die Regression eingegangenen Meßwerte bedingt eine statistische Unsicherheit der Regressionsparameter.

Die statistische Analyse hat ergeben, daß die beiden Parameter der Approximationsfunktion für das gewählte Modell miteinander korreliert sind. Ihre statistische Verteilung wird durch eine bivariate Dichtefunktion beschrieben. Die Permeabilitäts-Porositätsbeziehung und die bivariate Dichtefunktion für die Parameter sind nur für den Porositätsbereich zwischen $n = 0,04$ bis $0,42$ durch Meßdaten belegt. Die Extrapolierbarkeit in den Bereich niedriger Porositäten ist insbesondere für $n \leq 0,01$ fraglich. Da die Kompaktion des Versatzes im Endlager langfristig bis in diesen Dichtebereich führt, muß der Geltungsbereich der Relation für die Modellierung dieser Phase entsprechend erweitert werden, was zusätzliche Messungen an entsprechend verdichtetem Material erfordert. Hierfür können möglicherweise auch die Daten aus dem in Kapitel 5 beschriebenen Vorhaben "Untersuchung des Diffusions- und Permeabilitätsverhaltens von H_2 in Steinsalz/Salzgrus" (Battelle-Institut, Frankfurt, TU-Darmstadt und Bergakademie Freiberg) verwendet werden.

Die angegebene Permeabilitäts-Porositätsbeziehung gilt grundsätzlich auch für Salzbricketts und Salztönmörtel. Der spezielle Einfluß der extrem schnellen Kompaktion bei der Brikettherstellung kann durch einen Korrekturfaktor berücksichtigt werden. Die für Briketts vorliegenden Permeabilitätswerte sind ungefähr um den Faktor 2 kleiner als die entsprechenden für Salzgrus. Vor dem Hintergrund der statistischen Unsicherheiten kann dieser Faktor jedoch vernachlässigt werden. Die Meßdaten für Mörtel ähneln denen von feucht kompaktierten Salzgrus und sind im relevanten Bereich $n \leq 0,2$ immer kleiner oder höchstens gleich den Permeabilitäten von Salzgrus. Das bedeutet, daß die Beschreibung der Permeabilitäts-Porositätsbeziehung für Mörtel durch die für Salzgrus eine konservative Annahme darstellt.

Die Übertragbarkeit der aus den Labordaten ermittelten Permeabilitäts-Porositätsbeziehung zur Beschreibung der in-situ-Eigenschaften ist noch zu prüfen. Die hohen Kompaktionsgeschwindigkeiten in Laborversuchen führen zu Veränderungen des Korngefüges, die bei den langsam ablaufenden In-situ-Vorgängen nicht auftreten. Belastbare Daten aus In-situ-Untersuchungen liegen derzeit noch nicht vor. Man darf erwarten, daß

entsprechende Daten in den laufenden In-situ-Vorhaben "Experimentelle Untersuchung des Verhaltens von Versatz in Strecken" und "Untersuchung der Langzeit-Dichtwirkung von Bohrlochverschlüssen aus Salzgrus; DEBORA Phase 2" ermittelt werden. Erst nach Vorliegen und Auswertung der Ergebnisse dieser Vorhaben kann der Bedarf an weiteren FE-Arbeiten ermittelt werden.

3.3 Auslaugverhalten von zementierten Abfällen

Im Forschungsbergwerk ASSE werden seit 1979 Auslaugversuche an zementierten Großproben durchgeführt [11]. Es handelt sich dabei um etwa 30 Probekörper, die in Zusammenarbeit mit dem Forschungszentrum Jülich (KFA) und dem Forschungszentrum Karlsruhe (FZK, ehemals KfK) in Anlehnung an die Vorgehensweise bei der Konditionierung von MAW-Abfällen hergestellt wurden. Zu ihrer Herstellung wurden Portlandzement PZ 35, Wasser und Abfallsimulat verwendet. Das Abfallsimulat entspricht weitgehend einer FZK-Empfehlung und besteht zum überwiegenden Teil aus Natriumnitrat. Dazu kommen anorganische und organische Salze sowie Dekontaminationsmittel. Die Masse der Probekörper liegt etwa zwischen 90 und 200 kg. Als Dotierungsstoffe wurden Cäsium, Uran und Neptunium verwendet.

Es wurden drei verschiedene Auslaugmedien verwendet:

- Leitungswasser.
- Gesättigte Steinsalzlösung, die durch Auflösen von natürlichem Steinsalz hergestellt wurde. Sie enthält neben Natriumchlorid Kalium, Kalzium, Magnesium und Sulfat in Mengen von ca. 1 g/l.
- Gesättigte Carnallitlösung, die als natürliche Lösung im Bergwerk vorliegt. Sie entspricht dem Punkt R im quinären System.

Die Auslaugung findet in 400-l-Fässern statt. Es werden regelmäßig Proben aus der Auslaugflüssigkeit entnommen und auf den Gehalt an ausgelaugten Stoffen untersucht. 1993 wurden die gesammelten Daten im Rahmen eines Auftrags am Institut für Kernchemie der Philipps-Universität Marburg von K. Siemon und P. Patzelt ausgewertet. Die Auswertung wurde Ende 1993 in Form eines Berichts übergeben [12]. Die wesentlichen Inhalte des Berichts sind im folgenden kurz zusammengefaßt:

- Auslaugung von Cäsium

Die zeitliche Abhängigkeit der Auslaugung entspricht in den meisten Fällen einer Geraden wenn man den ausgelaugten Anteil gegen die Wurzel der Zeit aufträgt. Eine solche funktionale Abhängigkeit beschreibt eine diffusionskontrollierte Mobilisierung des Dotierungsstoffes aus einer ebenen unendlich dicken Zementplatte. Die Auswertung gestattet somit die Berechnung von Diffusionskoeffizienten, die eine quantitative Beschreibung der Freisetzungsrates des Dotierungsstoffes erlauben. Dabei wurden für das jeweilige Auslaugmedium signifikante Zusammenhänge zwischen der Größe dieses Koeffizienten und dem Wasser-Zement (W/Z)-Verhältnis festgestellt.

Um eine anschauliche Übersicht über die Ergebnisse zu erhalten wurde in Tabelle 3.1 für jeden Probekörper die Zeit angegeben, nach der bei verschiedenen Wasser-Zement-Verhältnissen und bei verschiedenen Auslaugmedien 5% der Dotierung in die Lösung übergegangen war. Insgesamt läßt sich sagen, daß die Auslaugung in Steinsalzlösung deutlich schneller verläuft als in Carnallitlösung. In Leitungswasser ist sie noch schneller. Ein höheres W/Z-Verhältnis bewirkt eine schnellere Freisetzung.

	W/Z = 0,24	W/Z = 0,32	W/Z = 0,43
Carnallitlösung	07: 5,0 a 08: 6,8 a 09: 8,5 a	20: 2,5 a 21: 4,4 a 22: 4,9 a 24: 8,8 a	*28: 2,2 a *29: 1,6 a
Steinsalzlösung	*10: 1,9 a *11: 1,9 a *12: 2,2 a	23: 0,6 a	30: 0,3 a
Leitungswasser	13: 0,5 a 14: 0,5 a 15: 0,8 a		

Tabelle 3.1: Probekörpernummern und Zeiten in Jahren, bis eine fünfprozentige Mobilisierung des Cäsiums erreicht ist. Bei den mit einem Stern gekennzeichneten Probekörpern ist die Auftragung des Auslauggrades über der Wurzel aus der Zeit nicht linear.

In einigen Fällen schreitet der Auslaugprozeß nach einer Versuchsdauer von etwa zwei Jahren rascher voran, als nach dem Mobilisierungsverhalten in der Anfangsphase des Versuchs zu erwarten war. Dieser Effekt trat in NaCl-Lösung bei niedrigem und in Carnallitlösung bei hohem Wasser-Zement-Verhältnis auf. Er deutet darauf hin, daß in diesen Fällen die Auslaugung nicht durch einen reinen Diffusionsprozeß erklärt werden kann. Eine mögliche Erklärung könnte ein Korrosionsprozeß sein, wie er von FZK in magnesiumhaltigen Lösungen gefunden wurde und als Kalzium-Magnesium-Austausch gedeutet wird. Dem widerspricht jedoch das Auftreten in NaCl-Lösung bei niedrigem Wasser-Zement-Verhältnis, da hier nur sehr wenig Magnesium vorhanden ist. In diesem Fall müßte ein anderer Prozeß für die Abweichung vom reinen Diffusionsprozeß verantwortlich sein.

- Auslaugung von Uran

Die Konzentration in den Auslaugmedien bei den mit Uran dotierten Probekörpern stellte sich nach einer relativ kurzen Zeit von etwa einem Monat auf einen konstanten Wert ein, der stark vom pH-Wert abhängig ist. Der beschriebene Effekt läßt sich zwanglos durch eine Sättigung der Lösung an Uran erklären. Experimentelle Untersuchungen und geochemische Modellrechnungen könnten diese Erklärung absichern.

- Auslaugung von Neptunium

Die Auslaugung von mit Neptunium dotierten Probekörpern ergab bisher keine meßbaren Np-Konzentrationen. Auch hier könnten geochemische Modellrechnungen klären, ob in absehbarer Zeit das Auftreten von Neptunium in den Auslauglösungen mit Konzentrationen oberhalb der Nachweisgrenze zu erwarten ist.

Zur Untersuchung von Veränderungen an den ausgelaugten Probekörpern wurden jeweils ein Probekörper aus der Steinsalzlösung und einer aus der Carnallitlösung entnommen. Die beiden Probekörper wurden am Institut für Baustoffe, Massivbau und Brandschutz der Amtlichen Materialprüfanstalt für das Bauwesen, Braunschweig, röntgenografisch und mikroskopisch untersucht. An der Oberfläche der Probekörper hatten sich Schichten von feinen Kristalliten abgelagert. Die Probekörper waren mit zahlreichen Rissen durchsetzt, die vermutlich beim Herstellungsprozeß während der Erhärtung infolge Hydratationswärme oder Austrocknen entstanden sind. An der Oberfläche

und entlang der Risse ist durch die Auslaugung eine Verfärbung entstanden, deren direkte Ursache nicht geklärt ist. Außer der Reaktion von Ettringit mit Chlorid zu Friedelschem Salz konnten keine signifikanten Reaktionen zwischen der Zementmatrix und den Salzlösungen festgestellt werden. Eine Schädigung oder ein Abbau der Zementmatrix konnte anhand röntgenografischer Untersuchungen nicht erkannt werden.

Als Resultat dieser Arbeiten ergibt sich, daß das gemeinsam von FZK-INE und GSF-IfT entwickelte magnesiumabhängige Zementmobilisierungsmodell, das auf einer relativ schnellen Zementkorrosion bei Anwesenheit von Magnesium in der Lösung und einem sehr langsamen Diffusionsprozeß bei Abwesenheit von Magnesium beruht, mit den Auslaugversuchen auf der Asse nicht vereinbar ist. In einem Abstimmungsgespräch mit Teilnehmern des FZ-Karlsruhe, der FU-Berlin und der GRS-Braunschweig wurde festgehalten, daß die bisherigen Ergebnisse des FZK und der Asse-Auslaugversuche in einem gemeinsamen Bericht dokumentiert werden. Das bisherige Zementmobilisierungsmodell wird für die Verwendung in zukünftigen Langzeitsicherheitsanalysen auf der Basis der Ergebnisse der Versuche beim FZK und in der Asse modifiziert werden.

3.4 Chemisches Milieu im Nahbereich

Die in den verschiedenen Teilbereichen des Grubengebäudes ablaufenden chemischen Vorgänge, wie Korrosion, Ausfällung und Sorption werden entscheidend vom chemischen Milieu der zugetretenen Lauge bestimmt. So werden z. B. verschiedene Retentionsvorgänge, wie Mineralbildung an der Oberfläche, Ionenaustausch, Bildung von Oberflächenkomplexen, für verschiedene Wertigkeitsstufen eines Nuklids in unterschiedlicher Stärke wirksam. Um die Effekte abschätzen zu können, müssen der pH- und der Eh-Wert sowie die Konzentration und Form aller relevanten Inhaltsstoffe der Lauge bekannt sein.

Im Rahmen des Vorhabens wurde ein Fremdauftrag an die Firma Atkins vergeben mit dem Ziel, in einer theoretischen Arbeit das chemische Milieu in verschiedenen Orten eines Grubengebäudes in Abhängigkeit der Zeit zu bestimmen. Damit sollte die Voraussetzung geschaffen werden, Art und Größe chemischer Vorgänge im Grubengebäude

besser abschätzen zu können. Basierend auf den Resultaten der 'Atkins-Studie' sollten anschließend Löslichkeitsgrenzen und Sorptionswerte an Versatz und Zuschlagstoffen in Abhängigkeit des chemischen Milieus aus Literaturdaten ermittelt werden.

Zur Bearbeitung des Auftrags wurden fünf verschiedene Teilbereiche eines Endlagers, wie sie in den derzeitigen Konzepten betrachtet werden, ausgewählt:

- HAW-Bohrloch,
- MAW-Bohrloch,
- LWR-Strecke,
- Kammer mit MAW-Abfällen,
- Strecke.

Für alle Teilbereiche wurden die für die Bearbeitung notwendigen Randbedingungen, wie Laugenvolumen und -zusammensetzung, Temperatur, Inventar an Metall, Glas, Zement, Brennstoff, sowie deren genaue chemische Zusammensetzung und das vorhandene Radionuklidinventar vorgegeben. Alle Daten wurden den Langzeitsicherheitsstudien SAM [8], bzw. PACOMA [10] entnommen. Weiter wurde vorgegeben, daß alle Behälter ausgefallen sind, Austauschvorgänge nicht auftreten, die Hohlräume nicht kompaktieren und Druck und Temperatur konstant sind.

Der Auftragnehmer Firma Atkins hat die Bearbeitung mit dem geochemischen Rechen-code EQ3/6 durchgeführt. Für die Modellierung notwendige Korrosionsraten für die einzelnen Materialien wurden der Literatur entnommen. Die pro Zeitschritt mobilisierten Mengen der jeweiligen Korrosionsprodukte wurden modellmäßig der Lauge zugegeben. Dieser Nichtgleichgewichtsschritt wurde mit dem Programmteil EQ3 realisiert. Mit dem Rechenprogramm EQ6 wurde nach dieser Zugabe für jeden Zeitschritt das Gleichgewicht berechnet. Der Verlauf von pH- und Eh-Wert sowie von relevanten in der Lauge gelösten Inhaltsstoffen bzw. von Ausfällungsprodukten wurde in Abhängigkeit der Zeit für jedes betrachtete Segment dargestellt. Weitere Einzelheiten sind dem Abschlußbericht der Firma Atkins [13] zu entnehmen.

Die Ergebnisse der 'Atkins-Studie' erlauben nicht, die zeitliche Entwicklung des chemischen Milieus in den einzelnen Einlagerungsorten abgesichert zu bestimmen. Die wesentlichen Kritikpunkte an dieser Studie und eine mögliche zukünftige Vorgehensweise bei der geochemischen Modellierung der Vorgänge im Nahbereich wurden in einer Stellungnahme zu dieser Studie formuliert. Die Ergebnisse erscheinen zum einen aufgrund der zum jetzigen Zeitpunkt noch ungenügenden Datenbasis, zum anderen aufgrund von Widersprüchen in den Ergebnissen nur bedingt glaubwürdig. Allerdings konnten mit der Studie Probleme aufgezeigt werden, die den jetzigen Stand der geochemischen Modellierung betreffen. Dabei zeigte sich insbesondere, daß die vorhandene Datenbasis für die Beschreibung aller relevanten geochemischen Vorgänge bei Laugenzutritt in einen Einlagerungsort nur unzureichend ist.

Da der Ermittlung des chemischen Milieus im Nahbereich eines Endlagers in Salzformationen erhebliche Bedeutung beigemessen wird, soll in einem 1995 vom BfS einberufenen Arbeitskreis "Geochemische Modellierung" die Modellierung der geochemischen Vorgänge im Nahbereich und im Fernfeld eines Endlagers in Salzformationen in den nächsten Jahren grundlegend diskutiert und das zukünftige Vorgehen festgelegt werden. Teilnehmer des ersten Gespräches waren Mitglieder von INE, Bergakademie Freiberg, TU-Clausthal und GRS-Braunschweig. Als Fazit des ersten Arbeitsgesprächs wurde festgehalten, daß die Modellierung des chemischen Milieus in mehreren Schritten verwirklicht und vorerst nur der Nahbereich des Salzendlagers betrachtet werden soll. In der nahen Zukunft sind die folgenden drei Arbeitsschritte geplant:

- Modellierung des hexären Salzsystems,
- Berücksichtigung der Radionuklide und anderer Spurenelemente,
- Berücksichtigung der übrigen in das Endlager eingebrachten Materialien, wie Behältermaterial, Brennstoff, Zuschlagstoffe zum Versatz oder Dammbaumaterialien.

Eine wesentliche Arbeit besteht in der Erstellung einer gesicherten Standarddatenbasis für den Temperaturbereich 20 - 100°C und in einer Anpassung der Datenbasis auf das Format des Rechenprogramms EQ3/6. Das beinhaltet sowohl eine Sichtung der Literaturdaten als auch die Durchführung neuer Experimente, wie z. B. die Bestimmung von Löslichkeiten für einzelne Komponenten. Zur Durchführung dieser Arbeiten wurden vom

BfS Aufträge an das Institut für Nukleare Entsorgung (INE) und die Bergakademie Freiberg vergeben. Es ist geplant, daß der BfS-Arbeitskreis zur Abstimmung der Ergebnisse und der weiteren Vorgehensweise in regelmäßigen Abständen tagt.

3.5 Sorption im Deckgebirge

Eine ausführliche Darstellung der zu diesem Thema durchgeführten Arbeiten ist in dem GRS-Bericht 134, Auswertung von Sorptionsdaten hinsichtlich nichtlinearer Sorptionsmodelle für die Nuklidverbreitung im Deckgebirge [4], enthalten. Die wesentlichen Ergebnisse werden im folgenden zusammengefaßt.

Bisher wurde in Rechnungen zur Langzeitsicherheitsanalyse von deutschen Endlagern für die Nuklidrückhaltung im Deckgebirge ausschließlich das K_d -Konzept verwendet. Bei einigen Elementen zeigt sich aber eine deutliche Abhängigkeit des Sorptionswertes von der Elementkonzentration. Nimmt man an, daß es sich um einen Gleichgewichtsprozeß handelt, kann man diesen Prozeß der nichtlinearen Sorption mit Isothermen, wie der Langmuir- oder Freundlich-Isotherme beschreiben. Die Anwendung nichtlinearer Sorptionsisothermen gegenüber dem K_d -Konzept kann für einzelne Nuklide zu anderen Transportzeiten und Dosisraten in der Biosphäre führen.

Für die endlagerrelevanten Elemente Nickel, Uran, Blei und Cäsium wurden vom Staatlichen Forschungsinstitut für Geochemie (SFG) Bamberg [14] und von der GSF-Neuherberg [15] in Sorptionsexperimenten an Deckgebirgssedimenten eine Abhängigkeit der Sorptionskoeffizienten von der Elementkonzentration gemessen. Für andere endlagerrelevante Elemente wurde entweder keine Konzentrationsabhängigkeit beobachtet, oder es liegen keine Messungen vor. Aus den vorliegenden experimentellen Daten wurden für die vier genannten Elemente zum einen K_d -Werte, zum anderen Parameter für die nichtlinearen Sorptionsisothermen von Freundlich und Langmuir zur Verwendung in Ausbreitungsrechnungen im Rahmen der Sicherheitsanalyse bestimmt.

Die Auswertung erfolgte für fünf verschiedene wasserleitende stratigraphische Schichten im Deckgebirge von Gorleben, die sandigen Sedimentschichten der Weichsel-, der Saale-, der Elster-Eiszeit und des Tertiärs. Da eine Abnahme der Sorptionswerte mit

steigender Grundwassersalinität beobachtet wurde, wurde die Schicht der Elstereiszeit noch unterteilt in eine tieferliegende Schicht mit stark mineralisierten Grundwässern und eine höherliegende Schicht mit schwach mineralisierten Grundwässern.

Zur Bestimmung der K_d -Werte wurden aus den in Batch-Experimenten an sandigen Sediment-Grundwassersystemen bestimmten Sorptionswerten nach angegebenen Kriterien repräsentative Werte ausgewählt. Die K_d -Werte wurden als geometrische Mittelwerte aus den ausgewählten experimentell bestimmten Sorptionswerten des jeweiligen Elements für eine stratigraphische Schicht ermittelt. Bei allen Elementen streuen die Sorptionswerte über drei Größenordnungen. Diese erheblichen Unterschiede innerhalb einer stratigraphischen Schicht können nicht bzw. nur unzureichend durch einfache Zusammenhänge, wie die unterschiedliche Kationenaustauschkapazität der Sedimente oder den unterschiedlichen Salzgehalt der Grundwässer, erklärt werden. Die Streuungen der gemessenen Daten lassen sich nicht eindeutig mit einer spezifischen Verteilungsfunktion beschreiben. Für probabilistische Rechnungen wurde aus Mangel an genügend Information eine log-Gleichverteilung der K_d -Werte vorgeschlagen. Die Intervallgrenzen dieser Verteilung wurden so festgelegt, daß sie symmetrisch um den geometrischen Mittelwert liegen und daß sich alle Meßwerte gerade innerhalb dieser Grenzen befinden.

Für die vier genannten Elemente liegen außerdem konzentrationsabhängige Messungen an vier bis sechs sandigen Sedimenten vor. Die untersuchten Grundwasser-Sedimentsysteme decken in ihren Sorptionseigenschaften allerdings nur einen Teil der im Gorlebener Deckgebirge auftretenden Eigenschaften sandiger Grundwasser-Sedimentsysteme ab. Es liegen beispielsweise für Nickel, Uran und Blei keine konzentrationsabhängigen Sorptionsmessungen an den hochsalinaren Sanden der Elster-Eiszeit vor. Für Cäsium sind dagegen keine Ergebnisse an schwach mineralisierten Sanden der Elster-Eiszeit publiziert. Das Sorptionsverhalten von Nickel läßt sich mit einer Langmuir-Isotherme beschreiben, da die Sorptionswerte bei niedrigen Konzentrationen unabhängig von der Konzentration sind. Bei den übrigen drei Elementen wurden sowohl Werte für die Langmuir- als auch für die Freundlich-Isotherme angepaßt, da die Kurvenverläufe nicht charakteristisch für eine der beiden Isothermen sind.

Um abzuschätzen, wie sich eine Beschreibung der Rückhaltung durch nichtlineare Sorptionskonzepte gegenüber dem K_d -Konzept auf die Ergebnisse von realistischen Ausbreitungsrechnungen auswirkt, wurden Vergleichsrechnungen durchgeführt. Dabei wurden als Rückhalteeigenschaften des Deckgebirges jeweils die für eine Sedimentschicht ermittelten Sorptionswerte eingesetzt. Die Rechnungen wurden mit dem eindimensionalen Transportprogramm CHET2 durchgeführt [9]. Alle übrigen Daten entsprechen dem Referenzszenario der SAM-Studie [8].

Die transversale Dispersion kann in einem eindimensionalen Transportmodell nicht modelliert werden. In den Studien von PAGIS, PACOMA und SAM wurde eine Aufweitung der Schadstoffwolke für den Transport durch das Modelldeckgebirge aufgrund der transversalen Dispersion auf einen maximalen Querschnitt von $36\,900\text{ m}^2$ abgeschätzt. Diese Aufweitung wurde bisher über die Wahl der Querschnittsgröße der Strömungsröhre berücksichtigt.

Bei konzentrationsabhängigen Rückhalteeffekten kann diese Vorgehensweise aber zu inkorrekten Ergebnissen führen. Bei nichtlinearen Adsorptionsisothermen kann die transversale Dispersion das Ausbreitungsverhalten erheblich beeinflussen, da sich der Retardationsfaktor und damit die mobile Radionuklidkonzentration bei Variation der Konzentration um Größenordnungen ändern können. Aus diesem Grund wurde in CHET2 berücksichtigt, daß der Schadstoff an einer räumlich begrenzten Stelle in das Deckgebirge eintritt und durch den Effekt der transversalen Dispersion aufgeweitet wird. Im Modell wurde für die Berechnung des Retardationsfaktors eine trichterförmige Vergrößerung der Querschnittsfläche entlang des Ausbreitungswegs angenommen. Es wurde angenommen, daß sich die gesamte Radionuklidmenge in dem so modifizierten Volumen befindet. Für die Transportberechnung werden die ursprünglichen Volumina zugrundegelegt. Damit sollte berücksichtigt werden, daß die Querschnittsfläche einer impulsartig freigesetzten Schadstoffwolke näherungsweise linear mit dem Ausbreitungsweg ansteigt.

Die Ergebnisse der Vergleichsrechnungen zeigen, daß das K_d -Konzept für die Langmuir-Isotherme in fast allen Fällen eine hinreichend genaue Approximation darstellt. Die Verwendung der Freundlich-Isotherme führt für Cs-135 und für die Uran-Isotope zu län-

geren Transportzeiten, die eine Abnahme der maximalen Dosisrate um einen Faktor zwei bis sechs zur Folge hat. Der Effekt ist bei den wenig mineralisierten Grundwasser-Sedimentsystemen stärker ausgeprägt als bei den stark mineralisierten.

In Zerfallsreihen kann die Modellierung der Rückhaltung nach Freundlich für Mutternuklide gegenüber den anderen Sorptionskonzepten zu einer erhöhten Konzentrationsbelastung der Biosphäre durch die Tochternuklide führen. Der Effekt wurde exemplarisch an der Uran-Zerfallsreihe demonstriert. Die stärkere Rückhaltung von U-238 durch die nichtlineare Freundlich-Isotherme führt zu einer erhöhten Gesamtkonzentration des U-238 in einem Teilbereich des Ausbreitungsgebiets. Dieser Prozeß bewirkt eine erhöhte Konzentration von Th-230 am Ende des Ausbreitungswegs und damit eine höhere Dosisrate von Th-230 und dessen Tochternuklid Ra-226, das mit Th-230 im radioaktiven Gleichgewicht steht. In diesem Fall führt die Verwendung der Freundlich-Isotherme gegenüber dem K_d -Konzept also trotz einer Verzögerung des Mutternuklids zu höheren Dosisraten, die durch die Tochternuklide hervorgerufen werden.

Eine modifizierte Freundlich-Isotherme, die aus Konservativitätsgründen verwendet wurde, führt gegenüber der Freundlich-Isotherme zu kürzeren Transportzeiten und niedrigeren maximalen Dosisraten.

Es wurde gezeigt, daß die Berücksichtigung nichtlinearer Sorptionseffekte mit dem eindimensionalen Transportprogramm CHET2 handhabbar ist und für einige Nuklide Unterschiede in Transportzeit und Dosisrate gegenüber dem linearen Sorptionsmodell auftreten. Für eine vollständige Modellierung der nichtlinearen Sorption in allen unterschiedlichen Schichten des Deckgebirges Gorleben ist die bisherige Datenbasis aber noch nicht ausreichend. Die Ergebnisse zeigen auch, daß eine mehrdimensionale Modellierung des Nuklidtransports unter Berücksichtigung der transversalen Dispersion für die Beschreibung der Rückhaltung mit nichtlinearen Sorptionsisothermen notwendig ist.

3.6 Systematik und Strategien der Szenarienanalyse

In einem von der Firma Stoller Ingenieurtechnik, Dresden im Zeitraum von Januar 1993 bis Februar 1995 bearbeiteten Projekt "Untersuchungen zur Szenarienmodellierung im Nahfeld eines wärmebeeinflussten Endlagerbereichs im Steinsalz" wurden verschiedene Vorgänge beim Laugenzutritt in ein Endlager mit wärmeerzeugenden Abfällen untersucht. Die Ergebnisse werden im folgenden kurz skizziert.

Beim Zufluß von Lauge in eine Einlagerungsstrecke für Pollux-Behälter kann es zum Kontakt zwischen Lauge und Abfallgebinden kommen. In bisherigen Betrachtungen wird sehr pauschal angenommen, daß die Strecke unabhängig von Zutrittsort und Zuflußgeschwindigkeit von unten nach oben vollläuft. Tatsächlich ist jedoch aufgrund der Wärmeentwicklung mit Auf- und Umlösevorgängen und eventuell mit der Ausbildung von Salzsichten zu rechnen, die den Zuflußvorgang beeinflussen und gegebenenfalls die Korrosion der Behälter verzögern können. Ziel des Projekts war es, durch eindimensionale Experimente und Modellrechnungen ein detaillierteres Verständnis für die Vorgänge beim Laugenzufluß zu entwickeln.

Es wurde das Szenario eines lokal begrenzten Zuflusses einer relativ großen Laugemenge über die Firste der Einlagerungsstrecke kurz nach ihrer Verfüllung untersucht. Dabei konnte durch Säulenexperimente und Modellrechnungen gezeigt werden, daß unter quasi-gesättigten Bedingungen im Salzgrus-Porenraum die Lauge schließlich die gesamte Schüttung durchströmt und den Abfallbehälter erreicht. Es wird zwar eine fortschreitende Siedefront beobachtet, die verfügbare Wärme reicht jedoch nicht aus, um mit auskristallisierendem Salz die Porenräume zu schließen und damit ein weiteres Vordringen der Flüssigkeit zu verhindern.

Für detailliertere theoretische Betrachtungen wurde ein eindimensionales Prozeßmodell für die quasi-gesättigte Laugendbewegung im Salzgrus abgeleitet, welches die wichtigsten Strömungs- und Wärmetransportvorgänge sowie die Phasenumwandlung durch Verdampfung und Auskristallisieren von Salz berücksichtigt, jedoch keine Auf- und Umlöseprozesse. Letztere sind im Fall großer Zuflußraten schwer zu erfassen, da in den relativ kurzen Zeiträumen von wenigen Stunden, die die Lauge bis zur Behälteroberflä-

che benötigt, nicht mit der Einstellung thermodynamischer Gleichgewichte zu rechnen ist. Behelfsweise kann ein konstant erhöhter Salzgehalt der strömenden Lauge zur groben Abschätzung des Einflusses derartiger Prozesse angenommen werden.

Mit dem Prozeßmodell wurden unter Verwendung der gemessenen Volumenströme und Abstandsgeschwindigkeiten die durchgeführten Versuche nachgerechnet. Unter der Annahme einer bestimmten Energieverlusthöhe im Salzgrusversatz kann der Prozeßverlauf für vorgegebene äußere Bedingungen grob vorausberechnet werden. Durch Variation der Eingangsparameter sind Aussagen über den Einfluß verschiedener Prozeßgrößen möglich. Mit Hilfe des Modells wurde für die maximale Porosität, bei der mit einem Zukristallisieren des Versatzes durch ausfallendes Salz und damit zu einer Isolation der Behälter zu rechnen ist, ein theoretischer Wert von ca. 2% ermittelt.

Tendenzen von Auf- und Umlöseeffekten wurden mit Hilfe des geochemischen Simulationsprogramms EQ3/6, welches eine Bewertung von Gleichgewichtszuständen des hexären Systems Na-K-Ca-Mg-Cl-SO₄-H₂O erlaubt, abgeschätzt. Daneben wurden verschiedene Laborexperimente durchgeführt, u.a. wurden nach Abschluß der Säulenversuche sowohl Laugen- als auch Salzgrusproben nach dem Durchströmen der Schüttung analysiert. Die Aussagen aus Experimenten und Simulationsrechnungen stimmen gut überein:

- Nachlösung von Polyhalit mit steigender Temperatur,
- Bildung neuer Minerale (beim Zufluß chloridhaltiger Laugen insbesondere Bischoffit; beim Zufluß von Q-Lauge sulfatische Minerale, u.a. Anhydrit).

In dem beschriebenen Projekt wurden massive Laugenzutritte in eine Einlagerungsstrecke betrachtet. Bei einem Zutritt aus Laugennestern wird die Zuflußrate durch die Gebirgskonvergenz in deren Bereich und die Strömungswiderstände über verfüllte und abgedämmte Strecken bestimmt. Sie wird um mehrere Größenordnungen unter dem hier angenommenen Wert liegen. Derartig geringe Zuflußraten führen aber zu ungesättigten Laugenströmungen und erfordern daher theoretisch und experimentell eine grundsätzlich andere Behandlung.

Deshalb sollen in einem gemeinsamen zukünftigen Vorhaben des Fachbereichs Endlagersicherheitsforschung der GRS und der Firma Stoller insbesondere die Vorgänge bei einem langsamen Vordringen der Lauge im erhöhten Temperaturbereich experimentell und theoretisch untersucht werden. Der Zufluß soll dabei so langsam erfolgen, daß die Temperaturverteilung, die sich in der Strecke einstellt, durch den Laugenzufluß nicht massiv gestört wird. Die Untersuchungen sollen sowohl die Vorgänge beim Zulauf der Lauge und dem Aufbau von Salzlinsen als auch die Vorgänge nach der vollständigen Laugesättigung des Porenraumes behandeln.

In dem zukünftigen Vorhaben ist eine enge Zusammenarbeit zwischen den Experimentatoren und den Modellierern geplant, da schon während des Aufbaus der Experimente die Modellierer in die Planung einbezogen werden müssen und die Experimentatoren bei der Auswertung und Modellierung ihr Fachwissen zur Verfügung stellen sollten. Zur Verbesserung des Verständnisses sollen die Ergebnisse der Experimente anhand von numerischen Modellen nachgerechnet werden. Damit können Extrapolationen auf größere Zeiträume und auf reale Abmessungen von Einlagerungsstrecken durchgeführt werden.

3.7 Gegenüberstellung von Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen

Die Arbeiten zu diesem Thema stellen ein Teilgebiet des vom PTE koordinierten Vorhabens GEISHA dar. In Deutschland sind Instrumentarien zum Langzeitsicherheitsnachweis von Endlagern für hochradioaktive Abfälle vor allem im Hinblick auf Salz entwickelt worden. In anderen Ländern lagen die Schwerpunkte der Entwicklung auf Granit- oder Tonformationen. Aufgrund weltweiter Harmonisierungsbestrebungen und verstärkter internationaler Kooperation bei der Endlagersicherheitsforschung ist es sinnvoll, die methodischen Ansätze der verschiedenen Länder gegenüberzustellen. Dabei sollten Übereinstimmungen zwischen Langzeitsicherheitsanalysen in Salz- und Granitformationen herausgefunden und die wesentlichen sicherheitsrelevanten Parameter identifiziert werden. Auf dieser Basis kann der aus deutscher Sicht noch notwendige Forschungsbedarf für die Durchführung einer Langzeitsicherheitsanalyse eines Endlagers in einer potentiellen deutschen Hartgesteinsformation abgeleitet werden.

Zu diesem Zweck wurden im ersten Teil der Studie die Langzeitsicherheitsanalysen der NAGRA für die Endlagerung von verglastem HAW aus der Wiederaufbereitung in Granitformationen (Projekt Gewähr, 1985 und Kristallin I, 1993) und die deutschen Langzeitsicherheitsanalyse PAGIS, 1988 für ein HAW-Endlager im Salzgestein gegenübergestellt. Im zweiten Teil wurden exemplarisch zwei Studien für Endlager mit direkt endgelagerten Brennelementen untersucht: die schwedische Sicherheitsanalyse Project-90 von 1991 für ein Endlager im Granit und die deutsche Studie Systemanalyse Mischkonzept (SAM, 1991) für ein Endlager im Salz. Im einzelnen wurden folgende Punkte betrachtet:

- verwendete Szenarien,
- Abfallarten und Inventare,
- die berücksichtigten Effekte,
- verwendete Modellansätze und Eingangsparameter sowie
- die Wirksamkeit der Effekte und Barrieren.

Die relevanten Rückhalteeffekte wurden zusammengestellt. Die Ergebnisse sind ausführlich im Bericht GRS-135, Gegenüberstellung einiger Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen [5], dargestellt. Sie werden im folgenden zusammengefaßt.

Das HAW-Inventar des in den Schweizer Studien betrachteten Endlagers ist ca. eine Größenordnung niedriger als das der deutschen Studie PAGIS. Die Inventare der direkt eingelagerten abgebrannten Brennelemente unterscheiden sich in der schwedischen Studie Project 90 und in der deutschen Studie SAM nur geringfügig.

Die normalen Entwicklungen unterscheiden sich grundlegend für Endlager im Granit und im Salzgestein. Im Salzgestein wird bei einer ungestörten Entwicklung des Endlagers angenommen, daß die Abfälle nach einer gewissen Zeit vollständig vom Salz eingeschlossen und damit gegenüber der Biosphäre vollkommen isoliert sind. Im Granit kann dagegen ein Zutritt des Grundwassers zu den Behältern langfristig nicht verhindert werden. Im Falle der schwedischen Studie wird allerdings aufgrund der sehr dickwandigen und korrosionsbeständigen Kupferbehälter unterstellt, daß nur ein einzelner Behälter in 10^6 Jahren ausfällt. Bei den Schweizer Studien wird angenommen, daß alle

Behälter ausfallen. Somit kommt es immer zu einer vollständigen Freisetzung des Inventars. Für die Gegenüberstellung wurden nur die Ergebnisse von deterministischen Rechnungen zu einem ausgewählten Referenzszenarium jeder Studie betrachtet. Für die Studien PAGIS und SAM wurde das Laugenzutrittszenarium ausgewählt. Für die Studien zu Endlagern in Granit wurde ein Grundwasserszenarium angenommen, im Fall der Gewähr-Studie mit konservativen Werten für die Matrixdiffusion.

Die wesentlichen Barriereeffekte wurden anhand des Transportverhaltens langzeitrelevanter Nuklide in den ausgewählten Referenzrechnungen untersucht. Im Nahbereich des Endlagers im Granit sind die wichtigsten Barrieren Löslichkeitsgrenzen, bzw. im Fall von nicht löslichkeitsbegrenzten Nukliden die Freisetzungsraten aus der Matrix. Der diffusive Transport durch die Bentonitschicht wird bei der Gewähr-Studie nur insofern berücksichtigt, als daß relevante Spalt- und Aktivierungsprodukte ausgewählt bzw. schnell zerfallende für den weiteren Transport nicht mehr betrachtet werden. Bei den Studien Kristallin I und Project-90 werden auch die Diffusion und die Sorption in der Bentonitschicht modelliert. Diese erweist sich aber nur für sehr stark sorbierende bzw. kurzlebige Nuklide als wirkungsvolle Barriere. Bei Project-90 wird zusätzlich der oben genannte Isolationseffekt durch die Behälter unterstellt.

Für ein Endlager im Salzgestein bilden

- Löslichkeitsgrenzen,
- die Verdünnung kontaminierter Lauge durch unkontaminierte Lauge aus anderen Bereichen des Endlagers sowie
- eine Isolation des größten Teils der Abfälle

die wesentlichen Barriereeffekte im Nahbereich. Bei den Langzeitsicherheitsanalysen von Endlagern im Steinsalz wurden in den bisherigen Langzeitsicherheitsanalysen um einige Größenordnungen höhere Löslichkeitsgrenzen als in den Granitstudien angenommen. Im Gegensatz zu Endlagern im Granit reduziert der Verdünnungseffekt durch unkontaminierte Lauge die maximalen Konzentrationen um den Faktor 100 bis 1000. Die Volumenreduktion der Hohlräume im Salzgestein führt dazu, daß Transportwege im Grubengebäude verschlossen sind, bevor Lauge eindringen kann. Als Folge davon wird ein erheblicher Anteil des Inventars vollständig isoliert.

Im Fernfeld treten bei allen Studien erhebliche Verdünnungseffekte durch den Grundwasserstrom auf. Diese werden bei den Studien für das Salzkonzzept mit $4 \cdot 10^4$ bzw. $2 \cdot 10^5$ etwas niedriger angenommen als bei den Granit-Studien mit $2 \cdot 10^6$ bis $7 \cdot 10^6$. Bei der Studie Gewähr wurde die Konzentration aller relevanten Nuklide mit Ausnahme des Pd-107 durch den Effekt der Matrixdiffusion mit Sorption um weitere vier bis sechs Größenordnungen reduziert. Dieser Barriereeffekt tritt bei Kristallin I und Project-90 aufgrund kürzerer Transportwege und veränderter Geometrien des geklüfteten Granit nicht auf. Entsprechend liegen die Dosisraten des Referenzfalls bei Gewähr um ca. fünf Größenordnungen niedriger als bei den anderen Studien. Die maximalen Dosisraten von Kristallin I und Project-90 liegen für die Normalentwicklung des Endlagers in der gleichen Größenordnung wie die bei PAGIS und SAM für das Laugenzutrittsszenario berechneten.

Bei den Studien für Endlager im Salzgestein tritt bei stark sorbierenden Nukliden wegen der dann längeren Transportzeit eine Konzentrationsreduktion im Fernfeld durch longitudinale Dispersion bzw. bei kurzlebigeren Nukliden durch radioaktiven Zerfall auf.

Die Zusammenwirkung aller Barriereeffekte führt letztendlich zu maximalen Dosisraten in der Biosphäre, die bei SAM und PAGIS eine Größenordnung über denen von Kristallin I und Project-90, bzw. sechs Größenordnungen über denen der Gewähr Studie liegen. Hinsichtlich der Dosisbelastung sind I-129 und Cs-135 die wichtigsten Nuklide, die in allen Studien die geringste Konzentrationsreduktion durch Barriereeffekte erfahren, da sie weder löslichkeitsbegrenzt noch stark sorbierend sind. Bei den Endlagern mit Wiederaufarbeitungsabfällen ist I-129 von untergeordneter Bedeutung, da dessen Inventar im Endlager gering ist. Bei den Endlagern mit abgebrannten Brennelementen bestimmt jedoch I-129 die maximale Dosisrate.

Aufbauend auf dieser Studie wird für eine zukünftige Modellierung der Langzeitsicherheit eines deutschen Endlagers in einer Hartgesteinsformation folgende Vorgehensweise vorgeschlagen. Aufgrund der erheblichen Unterschiede in der Nahbereichsmodellierung für Endlager in Granit und Salz sollte für den Nahbereich ein neues Rechenmodell entwickelt, bzw. ein Rechenmodell aus anderen Ländern übernommen werden. Dieses Modell müßte die Nuklidmobilisierung aus der Abfallmatrix in das am Abfallort vorhandene immobile Porenwasser, diffusiven Transport durch den Bentonit und Sorption an der Bentonitoberfläche berücksichtigen. Für den Transport im Fernfeld könnte das bis-

her in Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Salz eingesetzte eindimensionale Transportmodell für poröses Medium um den Prozeß der Matrixdiffusion mit linearer Sorption erweitert werden. Damit stände ein Doppel-Porositätsmodell zur Modellierung des Transports in geklüfteten Medien zur Verfügung. Als Biosphärenmodell könnte das bisherige Modul eingesetzt werden.

In dem beantragten Nachfolgeprojekt 'Wissenschaftliche Grundlagen zum Nachweis der Langzeitsicherheit von Endlagern' ist die Erstellung eines solchen Instrumentariums für eine Langzeitsicherheitsanalyse in Hartgestein sowie die Durchführung von orientierenden Rechnungen geplant.

4 Verfolgung internationaler Aktivitäten

Die Entwicklung der wissenschaftlichen Grundlagen auf internationaler Ebene wurde im Hinblick auf die Übertragbarkeit von Ergebnissen auf deutsche Endlagerkonzepte verfolgt. Die Ergebnisse von Veranstaltungen und Arbeitsgruppen, bei denen regelmäßig aktiv mitgearbeitet wurde, werden in den folgenden Abschnitten beschrieben.

4.1 NEA-Arbeitsgruppen SEDE und PAAG

Die OECD/NEA hat verschiedene Gremien zur gegenseitigen Information der 23 OECD-Länder etabliert. Für den Bereich radioaktive Abfälle ist dieses das RWMC (Radioactive Waste Management Committee) mit den beiden wichtigen ständigen Arbeitsgruppen SEDE (Site Evaluation and Design of Experiments for Radioactive Waste Disposal Advisory Group) und PAAG (Performance Assessment Advisory Group). In beiden Arbeitsgruppen ist ein Mitglied des Fachbereichs Endlagersicherheitsforschung vertreten und nimmt an den jährlichen Arbeitssitzungen teil.

Innerhalb der SEDE-Gruppe findet ein Austausch von technischem Know-How zu Fragen bei der Standorterkundung sowie zur Auslegung von In-situ-Versuchen statt. Hauptinteressenspunkte sind die Anwendung geeigneter Methoden und Techniken bei der Standorterkundung und eine vergleichende Bewertung der Ergebnisse bezüglich des Sicherheitsnachweises für Endlagerkonzepte und mögliche Endlagerstandorte. Mit dieser Zielstellung wurden von der OECD im Rahmen der Projektlaufzeit die beiden folgenden Workshops veranstaltet:

- Bedeutung von konzeptuellen Modellen für die Demonstration der Endlagersicherheit in der Nachbetriebsphase,
- Charakterisierung von geologischen Langzeitveränderungen an geplanten Endlagerstandorten.

Alle Beiträge und Ergebnisse der Workshops wurden in Proceedings-Bänden veröffentlicht. In dem Workshop-Beitrag "Long Term Mineralogical Changes in Salt Formations due to Water and Brine Intrusions" von der GSF-IFT wurden Ergebnisse von Modell-

rechnungen zu in Salzformationen relevanten Reaktionen von Wasser bzw. Laugen mit unterschiedlichen Salzgesteinen vorgestellt. Die Auflösungsprozesse von Carnallit und Hartsalz, die Bildung des Gipses und die Umwandlung von Polyhalit in Anhydrit wurden mit dem Rechenprogramm EQ 3/6 modelliert. Es wurde eine gute Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen der Gleichgewichtsberechnungen mit experimentellen Beobachtungen von In-situ- und Feldexperimenten, wie z. B. der beobachteten Zusammensetzungen von Mineralparagenesen festgestellt. Außerdem hat man durch Vergleich der experimentell ermittelten mit der theoretisch modellierten Laugenzusammensetzung die Möglichkeit, junge und alte Laugen, die Kontakt mit Carnallit hatten, zu unterscheiden. In jungen Laugen tritt eine Sulfatübersättigung auf, die sich bei älteren Laugen zurückbildet. Durch den Vergleich von Modellrechnungen mit In-situ-Experimenten und Feldversuchen ist ein tieferes Verständnis der komplexen geochemischen Zusammenhänge der Salzlöseprozesse in Salzstöcken erreicht worden, das letztendlich zur Beurteilung des Langzeitverhaltens eines solchen Systems dient.

Als zukünftige Beratungsthemen der SEDE-Gruppe wurden die Standortcharakterisierung, Auflockerungszonen und Versiegelung, Übergang technische/geotechnische Barriere - Geosphäre, Übergang Geosphäre - Biosphäre, Entstehung und Migration von Gasen sowie die Auswirkung des Endlagerbaus auf das Gesamtsystem festgelegt. Dazu sind derzeit drei Workshops geplant:

- Auflockerungszonen um Einlagerungsstrecken,
- In-situ-Tracer-Tests: Planung, Durchführung und Interpretation,
- Gebrauch hydrochemischer Information beim Testen von Grundwasserfließ- und Transportmodellen.

Über den Fortgang der deutschen Forschungsarbeiten zur Bestimmung der wesentlichen Gesteinseigenschaften und zum Nachweis der Wirksamkeit von Verfüll- und Verschlusskonzepten für ein Endlager im Salzgestein wurde auf den jährlichen Sitzungen der SEDE-Gruppe berichtet. Im Auftrag des BMBF hat sich die GSF/IfT an der Erstellung eines Statusberichtes über die wesentlichen Eigenschaften von tonigen Gesteinen als geologische Barrieren für Endlager beteiligt. Von der GRS wurde bei der Berichtsabstimmung eine fachliche Unterstützung auf der Basis der Konrad-Arbeiten und Erfahrungen zur Dichtheit von Tonsteinformationen geleistet. Daten über Tonsteinformationen

aus der Konrad-Studie wurden in eine Datensammlung aller im OECD-Bereich untersuchten Tonsteininformationen eingespeist. Der Bericht wird in 1996 von OECD/NEA veröffentlicht.

In der Arbeitsgruppe PAAG werden spezielle Fragestellungen in Verbindung mit Endlagersicherheitsanalysen bearbeitet und diskutiert. Ein Schwergewicht liegt auf der vertieften Diskussion bereits durchgeführter Sicherheitsanalysen für Referenz- und standortspezifische Endlagersysteme. Zu diesem Zweck wurde u. a. die Gruppe IPAG eingerichtet, deren Arbeitsinhalte in Kapitel 4.4 detailliert beschrieben werden. Weitere Themenschwerpunkte sind die Entwicklung und Pflege von Datenbanken. Nach einer nur geringen Nutzung der internationalen Sorptionsdatenbanken ISIRS und SDIS soll die Arbeit dazu eingestellt werden. Die Erarbeitung der thermodynamischen Datenbücher erfolgt aufgrund geringer nationaler Unterstützung nur sehr langsam. Die Bücher zur Thermodynamik des Urans und Americiums sind fertiggestellt und enthalten ansatzweise auch Daten für hochsalinare Systeme. Diejenigen zu Technetium und Neptunium/Plutonium sollen innerhalb der nächsten 2 Jahre vorliegen. Die Erstellung der Datenbank über 'Features, Events and Processes' (FEP) ist in Arbeit und soll Mitte 1996 abgeschlossen werden.

Der Arbeitsplan der PAAG-Gruppe soll in den nächsten Jahren überarbeitet werden. Als mögliche Arbeitsgruppen und Aktivitäten wurden auf der letzten Arbeitssitzung identifiziert:

- Szenarien für zukünftige menschliche Einwirkungen,
- Szenarienentwicklung,
- Forum über mechanistische Modelle zur Sorption,
- Workshop über die Rolle der Geosphäre bezüglich der Langzeitsicherheit.

4.2 Menschliche Einwirkungen

Die "Working Group on the Assessment of Future Human Actions at Radioactive Waste Disposal Sites" wurde durch die Arbeitsgruppe PAAG ins Leben gerufen im Anschluß an den Workshop der OECD/NEA über "Risk Associated with Human Intrusion at Radioac-

tive Waste Disposal Sites" in Paris 1989. Mitglieder dieser Arbeitsgruppe waren Vertreter aus Australien, Belgien, Deutschland, Frankreich, Großbritannien, Japan, Kanada, den Niederlanden, Schweden, der Schweiz, Spanien, den USA sowie von der IAEA und der OECD/NEA.

Angestrebt wurde eine internationale Abstimmung der Vorgehensweise bei der Behandlung der Problematik unabsichtlicher menschlicher Eingriffe in Endlager für radioaktive aber auch chemisch-toxische Abfälle. Es sollte auf internationaler Ebene eine möglichst vollständige Zusammenstellung sogenannter FEPs (Features, Events and Processes) erarbeitet werden, mit deren Hilfe eine systematische Analyse möglicher Szenarien bzw. Gruppen unterschiedlicher Szenarien über unabsichtliches Eindringen in Endlager erarbeitet werden kann. Absichtliches Eindringen wurde von vornherein ausdrücklich aus dem Themenkreis ausgeklammert. Bei absichtlichen Einwirkungen trägt die betroffene Gesellschaft selbst die Verantwortung. Daher braucht diese Art von menschlichen Einwirkungen in Langzeitsicherheitsanalysen berücksichtigt zu werden.

Ein erster Schritt in Richtung des angestrebten Ziels ist ein Bericht, der von den Teilnehmern der Arbeitsgruppe erstellt wurde. Angestrebt wurde ein gemeinsames Papier mit Vorschlägen für die Vorgehensweise bei der Szenarienauswahl, bei der Abschätzung von Wahrscheinlichkeiten sowie bei der Diskussion und Darstellung von Ergebnissen. Es wurde insbesondere deutlich gemacht, daß die diskutierten Szenarien in keinem Fall für eine Voraussage der zukünftigen Entwicklung, sondern mit ihren analytischen Ergebnissen nur einer Abschätzung eventueller Konsequenzen dienen sollen. Ferner werden Methoden für einen möglichst sicheren Informationstransfer an künftige Generationen diskutiert und Maßnahmen aufgezeigt, die der Verhinderung von menschlichen Eingriffen und Einwirkungen dienen.

Die unterschiedlichen Auffassungen in den einzelnen Ländern über die Behandlung von Human Action Szenarien und ihrer Berücksichtigung in Genehmigungsverfahren wurden dargelegt. Zudem wurden eine Reihe von Diskussionsvorschlägen eingebracht bezüglich gesellschaftlicher Risiken, philosophischer Aspekte und Methoden zur Szenarientwicklung. Insgesamt wurde der Bericht von allen Gruppenmitgliedern als gute Darstellung der Problematik angesehen.

Der Bericht wurde auf der PAAG-Sitzung 1993 diskutiert. Hierbei wurde u.a. gefordert, daß der Bericht als ein Diskussionsdokument dienen soll, daß zwischen quantitativer Analyse und Abschätzung von Risiken unterschieden werden soll und daß Future Human Action Szenarien in Genehmigungsverfahren mit aufgenommen werden sollen. Eine in diesem Sinne überarbeitete Version des Berichts wurde 1994 erstellt.

Als wichtige Fragestellungen und zukünftige Vorgehensweisen wurden festgehalten

- die Rolle politischer Randbedingungen,
- die Notwendigkeit, daß Vertreter der Genehmigungsbehörden an weiteren Arbeitsgesprächen teilnehmen,
- Ergänzungsvorschläge aufzunehmen, die Konsens und Dissens verdeutlichen,
- Referenzszenarien zu definieren und den Begriff zu verdeutlichen,
- Fragen bezüglich Rückholbarkeit von eingelagerten Abfällen hinzuzunehmen.

Es besteht Einigkeit darin, daß das Problem Future Human Actions weiterer Bearbeitung bedarf. Ein wesentlicher Punkt soll die Kommunikation der Arbeitsgruppe mit Vertretern der Genehmigungsbehörden und der Gesetzgeber sein. Eine weitere Aufgabe der Arbeitsgruppe soll die Behandlung eines illustrativen Falls sein. Es bestand jedoch noch keine Einigkeit darüber, ob ein real existierender oder ein hypothetischer Standort herangezogen werden soll. Der Bericht ist 1995 veröffentlicht worden [16].

Die Möglichkeit unabsichtlichen menschlichen Eingreifens aufgrund der Unkenntnis über den Endlagerstandort oder die Gefährlichkeit des eingelagerten Abfalls sollte bei der Auswahl von Standort und Auslegung des Endlagers in Betracht gezogen werden. Langzeitsicherheitsanalysen unter Berücksichtigung solcher Szenarien können Erkenntnisse über die Auswirkungen zukünftiger menschlicher Einwirkungen liefern. Es kann damit eine Abschätzung der Konsequenzen aber keine Vorhersage tatsächlich eintretender Ereignisse gegeben werden.

Im Rahmen des EU-Projekts EVEREST wurden basierend auf den Erkenntnissen und Anregungen dieser Arbeitsgruppe Sicherheitsanalysen für ausgewählte Human-Intrusion Szenarien durchgeführt. Unter deutscher Beteiligung wurden verschiedene

Human-Intrusion Szenarien diskutiert und beispielhaft für die Solung einer Öl- oder Gas-Speicherkaverne und einer Salzgewinnungskaverne im Bereich eines Endlagers Konsequenzen für zukünftige Generationen berechnet.

4.3 Probabilistic System Assessment Group (PSAG)

Die "Probabilistic System Assessment Group" wurde von der Arbeitsgruppe PAAG im Jahr 1985 als "SYVAC User's Group" ins Leben gerufen. Bis zum Jahr 1993 traf sich die Arbeitsgruppe auf 13 Sitzungen, wobei ein Vertreter des GSF-Instituts für Tieflagerung von Anfang an beteiligt war. In den Berichtsjahren 1993 bis 1996 gab es zwei weitere Treffen im Januar 1993 in Santa Fe, New Mexico und im September 1993 in Paris. Die Sitzung im September 1993 bildete den Abschluß der Arbeiten. Danach wurde die Gruppe auf Beschluß der zuständigen Gremien der OECD/NEA aufgelöst.

Zum Abschluß der Aktivitäten der Arbeitsgruppe wurden Berichte zu den Teilaufgaben Level S und Level 1b fertiggestellt. Für die Teilaufgabe Level 2 wurde eine erste Phase durchgeführt, wegen der Beendigung der Arbeitsgruppe wurde aber kein Abschlußbericht erarbeitet.

Level S war ein Vergleich verschiedener Verfahren zur Durchführung von Sensitivitätsanalysen, Level 1b ein Test von Biosphären-Modellen. Beide Teilaufgaben wurden zufriedenstellend bearbeitet und zeigten Perspektiven für zukünftige Arbeiten auf. In Level 2 wurde das Problem der konzeptuellen Modellunsicherheiten untersucht. An dieser Teilaufgabe haben nur noch 3 Organisationen teilgenommen, und es wurde festgestellt, daß die Arbeitsgruppe neu formiert werden müßte, um in Zukunft effektiv zu arbeiten. Der Grund für die geringe Beteiligung lag in der zeitaufwendigen, komplexen Thematik, die nur noch von denjenigen Organisationen behandelt werden konnte, die sich bereits im Rahmen anderer Projekte damit befaßt hatten. Diese Probleme in den unterschiedlichen Beteiligungsmöglichkeiten führten letztendlich zum Beschluß, die Arbeitsgruppe in der vorliegenden Zusammensetzung aufzulösen.

Die Arbeitsgruppe hat einen wertvollen Beitrag zur Entwicklung und Vereinheitlichung probabilistischer Rechenverfahren bei Langzeitsicherheitsanalysen geleistet. Anfangs wurden durch Vergleichsrechnungen an einfachen Endlagersystemen die Grundlagen der Rechenverfahren getestet, später Detailprobleme der probabilistischen Rechnungen behandelt. Die entwickelten Rechenverfahren sind in vielen Ländern heute Stand der Technik bei der Durchführung von Prognoserechnungen für Endlager. Bei der GRS (früher GSF) wurden die Techniken als Monte-Carlo-Verfahren in das Rechenprogramm EMOS integriert.

4.4 Integrated Performance Assessments Group (IPAG)

Die "Working Group on Integrated Performance Assessments of Deep Repositories" wurde von der Performance Assessment Advisory Group (PAAG) der OECD/NEA im Jahr 1994 ins Leben gerufen. Sie nahm die Arbeit im Jahr 1995 auf. Die erste Zusammenkunft der Arbeitsgruppe war am 21. und 22. Juni 1995, die zweite Zusammenkunft am 9. Oktober 1995, jeweils in Paris.

Die Aufgabe der Arbeitsgruppe besteht in einem Vergleich von integrierten Sicherheitsanalysen anhand veröffentlichter Unterlagen. In der ersten Phase des Projektes nehmen daher nur solche Organisationen teil, die einen veröffentlichten Bericht vorlegen können. Von deutscher Seite wurde der Abschlußbericht des Projektes Systemanalyse Mischkonzept (SAM, [8]) eingereicht. Insgesamt nahmen bisher 10 Organisationen an IPAG teil.

Vom NEA-Sekretariat wurde die Arbeit der Gruppe vorbereitet, indem ein Fragenkatalog ausgearbeitet wurde, der von jedem Teilnehmer vor dem ersten Treffen ausgefüllt wurde. Der Vergleich der Sicherheitsanalysen erfolgt anhand des Fragenkatalogs, der in den beiden genannten Treffen diskutiert, ergänzt und umformuliert wurde. Von einem kleinen Gremium wurde der letzte Stand der Antworten ausgewertet; ausgehend von dieser Auswertung wird im April 1996 auf dem Abschlußtreffen der Arbeitsgruppe in Washington D.C. der Abschlußbericht vorbereitet.

Der Vergleich von Sicherheitsanalysen für unterschiedliche Standorte, Gesteinsformationen und Endlagerkonzepte hat sich als sinnvoll, aber teilweise schwierig herausgestellt. Sinnvoll sind zum Beispiel die Versuche, einheitliche Sprachregelungen zu finden, einheitliche Bewertungskriterien zu definieren oder die Gesamtprozedur einer integrierten Analyse zu vereinheitlichen. Problematisch sind zum Beispiel detaillierte Vergleiche von Freisetzungsmengen, die Herausarbeitung, welche Effekte wesentlich für eine Dosisbelastung sind, oder die Zusammenstellung der zugrundegelegten FEPs (Features, Events and Processes). Von allen bisherigen Teilnehmern wurde die Arbeit der Gruppe sehr positiv bewertet, da das Kennenlernen der Details anderer Sicherheitsanalysen wertvolle Anregungen für die eigenen Arbeiten liefert.

Auf dem nächsten Arbeitstreffen im April 1996 sollen die Ergebnisse in Form eines Abschlußberichtes zusammengefaßt und eine Stellungnahme für PAAG vorbereitet werden. Es ist zu vermuten, daß die Arbeit der Gruppe nach der Fertigstellung des Abschlußberichtes mit erweitertem Teilnehmerkreis fortgesetzt wird, damit Anmerkungen von außerhalb der beteiligten Organisationen bei den Empfehlungen für die Durchführung von integrierten Sicherheitsanalysen berücksichtigt werden können.

Da die Arbeiten der einzelnen Länder erst im April 1996 zusammengetragen und abschließend diskutiert werden, sind keine Ergebnisse in den Vergleich von Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen, Kapitel 3.7, eingeflossen.

4.5 CHEMVAL

Das EU-Projekt CHEMVAL2 wurde 1990 begonnen und 1994 beendet. Ziel des Projekts war die Auswahl, Verifizierung und Validierung von Computerprogrammen zur geochemischen Modellierung der Verhältnisse in und um Endlager für radioaktive Abfälle. An CHEMVAL2 nahmen 18 Organisationen aus neun Ländern teil. Es gab sechs verschiedene Arbeitsgruppen zu den Themen

- 1 Temperatureffekte,
- 2 Ionenstärkeeffekte,

- 3 Organische Komplexe,
- 4 Sorption,
- 5 Mitfällung,
- 6 Kopplung von Chemie und Transport.

Die Ergebnisse der Verifikationsrechnungen von Mitgliedern einzelner Länder zu den sechs Themengebieten zeigten in einigen Fällen gute Übereinstimmung. So konnten in Arbeitsgruppe 1 in drei Verifizierungstests Temperatureffekte durch eine verkürzte Van't Hoff Gleichung in einem Temperaturbereich zwischen 20 und 100°C übereinstimmend gut beschrieben werden. Verifikationsrechnungen in Arbeitsgruppe 5 zur Mitfällung von relevanten Elementen wurden ebenfalls erfolgreich abgeschlossen. Unterschiede in den Verifikationsergebnissen zur Modellierung der Sorption konnten auf eine unterschiedliche Behandlung der Aktivitätskoeffizienten in der festen Phase zurückgeführt werden. In der Arbeitsgruppe 2 wurde entschieden, daß die Behandlung von Ionenstärkeeffekten einheitlich mit der Specific Interaction Theory (SIT) erfolgen soll. Mit dieser Theorie können in den meisten Fällen die experimentellen Daten bis zu Ionenstärken von 3,5 gut beschrieben werden. Alle dafür notwendigen Daten sind vorhanden.

Bei der Validierung konnten in den meisten Fällen keine befriedigenden Ergebnisse erzielt werden. So wurden zu dem Thema Kopplung von chemischer Speziation und Transport (Arbeitsgruppe 6) von der ANDRA Säulenexperimente zur Migration von Cäsium, Strontium und Uran durchgeführt. Ziel war der Vergleich der mit verschiedenen Rechencodes simulierten Durchgangskurven der genannten Elemente mit experimentellen Ergebnissen. Hier zeigte sich weder eine gute Übereinstimmung der Ergebnisse der einzelnen Rechencodes, noch konnten die experimentellen Befunde bisher befriedigend wiedergegeben werden.

In einer Abschlußdiskussion wurde für ein Nachfolgeprojekt die Kopplung der Prozesse, die in den sechs Arbeitsgruppen bearbeitet wurden, vorgesehen. Um eine bessere Verbindung zum Bereich Performance Assessment zu schaffen, sollte ein ausgewählter Endlagerstandort beschrieben werden. Da es aber keine finanzielle Unterstützung für die Teilnehmer von CHEMVAL gibt, werden sich für einen ausgewählten Standort wahrscheinlich nur wenige Arbeitsgruppen interessieren.

Die in CHEMVAL behandelten Einzelthemen sind zur Zeit noch nicht soweit bearbeitet, daß die Modellierungsansätze und Werkzeuge als ausreichend validiert und glaubwürdig angesehen werden können, um in der Sicherheitsanalyse Verwendung zu finden. Direkte Konsequenzen für deutsche Arbeiten lassen sich aus den erzielten Ergebnissen bisher nicht ableiten. Nachfolgeprojekte sollten aber weiterverfolgt werden, um den Stand der geochemischen Modellierung in anderen Ländern hinsichtlich der Verwertbarkeit von Ergebnissen für den Langzeitsicherheitsnachweis zu überprüfen. Insbesondere sollte überprüft werden, ob Fortschritte bei der Validierung von Rechenmodellen und Daten erzielt worden sind.

4.6 MIGRATION-95

Auf der Konferenz 'Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere' MIGRATION-95 in St. Malo wurden Themen zum chemischen Verhalten und Transport von Radionukliden im Nah- und Fernfeld eines Endlagers behandelt. Auf der Tagung gab es über 200 Beiträge zu Themen wie Löslichkeiten, Redox-Reaktionen, Komplexbildung, mikrobiologische Vorgänge, Diffusion und Migration in geologischen Medien. Vom Fachbereich Endlagersicherheitsforschung der GRS wurde ein eigener Beitrag mit Modellrechnungen zur Migration von Americium in einer Säule mit huminstoffreichem Grundwassersystem vorgestellt.

In den vorgestellten Arbeiten wurden schwerpunktmäßig die Elemente Uran und die Aktiniden behandelt. Als weitere wichtige Nuklide, die zukünftig intensiver untersucht werden sollen, wurden C-14 und Tc-99 genannt. In einer Abschlußdiskussion wurde von den meisten Teilnehmern eine effektivere Zusammenarbeit zwischen Experimentatoren und Vertretern der Langzeitsicherheitsanalyse gefordert, um z. B. die Experimente so auszulegen, daß Ergebnisse erzielt werden, die in Langzeitsicherheitsanalysen Verwendung finden können.

Ein weiterer wichtiger Diskussionspunkt war der Stand von Modellen und Datenbasen. Es wurde festgestellt, daß die meisten Transportmodelle keine Inhomogenitäten berücksichtigen. In der Beschreibung von Heterogenitäten, wie unterschiedlicher Permeabilitäten, sollte ein zukünftiger Schwerpunkt liegen. Außerdem existieren zu wenige Angaben

zu den Datenunsicherheiten. Die Entwicklung der thermodynamischen Datenbasen geht langsam aber stetig voran. Für viele Komponenten gibt es nur wenige verlässliche Experimente. Diese Problematik soll in Deutschland in dem vom BfS einberufenen Arbeitskreis "Geochemische Modellierung" tiefergehend bearbeitet werden. Dort ist beispielsweise die Durchführung von Experimenten für die Ermittlung von Löslichkeiten für Radionuklide und andere Spurenelemente in endlagerrelevanten Laugen geplant, um die Datenbasis für den Nahbereich entsprechend zu erweitern und belastbare Daten zur Verfügung zu stellen. Ergebnisse aus diesen Arbeiten sollten auch in internationale Datenbasen einfließen.

Bei den Sorptionsdatenbasen geht international der Trend dahin, daß Oberflächenkonstanten statt K_d -Werte verwendet werden. Diese Entwicklung sollte aus deutscher Sicht verfolgt werden. Zum einen wird in dem deutschen FE-Vorhaben "Geochemische Modellierung der Rückhaltung von Radionukliden der Elemente Sr, Cs, U, Am, Se und Ni in wassergesättigten Aquiferen" (Dr. Lang, GSF) die Sorption mit Sorptionsmodellen konstanter Kapazität oder diffuser Doppelschicht behandelt. Die Behandlung der Sorption auf thermodynamischer Basis kann zu einem tieferen Verständnis des Prozesses führen. Daraus könnte eine gegenüber dem K_d -Konzept verbesserte quantitative Beschreibung der Rückhaltung abgeleitet werden, wie es in Phase 3 des Strategiepapiers [6] gefordert wird. Zum anderen wurde bei FZK/INE ein eindimensionales Transportmodell Trans_EQL entwickelt, bei dem die Sorption der Radionuklidspezies mittels eines Oberflächenkomplexmodells beschrieben wird [17]. Es sollte überprüft werden, inwieweit auch Daten aus internationalen, thermodynamischen Datenbasen auf deutsche Verhältnisse übertragbar sind und ob die Ergebnisse aus den genannten Arbeiten zur geochemischen Modellierung konsistent mit denen von Arbeitsgruppen aus anderen Ländern sind.

4.7 Rechenmodelle für die Geosphäre

Zur Validierung von Rechenmodellen für die Geosphäre wurden im Projekt INTRAVAL auf internationaler Ebene im Zeitraum von 1989 bis 1994 Arbeiten zur Strömung und zum Transport unter anderem in porösen Medien durchgeführt. Die bisher erzielten Ergebnisse bezüglich der Validierung auf dem Gebiet der Salzwasserströmung können

nicht als ausreichend angesehen werden. Für eine zukünftige Weiterarbeit wurde auf dem NEA-Workshop über 'Nuklidmigration in heterogenen Medien' ein Vorschlag für die PAAG- und SEDE-Gruppe zur Weiterführung von GEOTRAP als ein internationales Validierungsvorhaben im Rahmen von regelmäßigen Workshops erarbeitet. Dieser Vorschlag wurde auf der Arbeitssitzung der PAAG- und SEDE-Gruppe beschlossen. Als Inhalte für die zukünftigen Workshops haben sich folgende Themen herauskristallisiert:

- Feldversuche und deren Interpretation,
- Entwicklung, Interpretation und Test von Transport-Modellen,
- Rolle von konzeptuellen Modellen und
- Design von Experimenten

Auf der Tagung GEOVAL'94 über die Validierung durch Modellerprobung hat die GRS (damalige GSF) zwei eigene Beiträge vorgestellt [18], [19]. Weiterhin wurde an dem Workshop über stochastische Modelle bei Grundwasserfluß und Transport teilgenommen. Auf dieser Tagung wurden Methoden zur Datenermittlung für probabilistische Modelle vorgestellt. Ein wesentliches Resultat dieser Tagung war, daß zum jetzigen Zeitpunkt geeignete Methoden zur Ermittlung von Daten für eine probabilistische Modellierung von Grundwasserströmungen existieren. Die Ergebnisse hinsichtlich des Schadstofftransports sind noch nicht zur Verwendung in Langzeitsicherheitsanalysen geeignet.

5 Bewertung bisheriger und geplanter Vorhaben

Die noch offenen relevanten Fragestellungen zur Sicherheitsbewertung eines Endlagers haben in das vom BMBF-Sachverständigenkreis Endlagerung (SKE) empfohlenen Förderkonzept "Forschung und Entwicklung zur Entsorgung radioaktiver sowie besonders überwachungsbedürftiger (chemisch/toxischer) Abfälle/Reststoffe in tiefen geologischen Formationen (Stand 09.07.1993)" Eingang gefunden. Abgeschlossene, laufende und geplante Vorhaben wurden hinsichtlich ihres Nutzens und ihrer Relevanz für die Bewertung der Langzeitsicherheit beurteilt. Aus Ergebnissen abgeschlossener Vorhaben wurden z. T. neue Modellansätze und Daten für Langzeitsicherheitsanalysen abgeleitet. Die noch laufenden FE-Vorhaben wurden mit dem Projektträger Entsorgung und den jeweils beteiligten Arbeitsgruppen im Rahmen von Statusgesprächen diskutiert. Letztendlich sind auf der Grundlage bisheriger FE-Arbeiten verschiedene neue Vorhaben spezifiziert und zum Teil konzipiert worden.

Nachfolgend werden die bewerteten und neu spezifizierten Vorhaben unter den betreffenden Themenbereichen dieses Förderkonzepts aufgeführt. Der Stand der jeweiligen Vorhaben zum 31.03.1996 wird im folgenden kurz erläutert. Es wurden ausschließlich Vorhaben zu denjenigen Themen bewertet, die sich auf die Langzeitsicherheit eines Endlagers in der Nachbetriebsphase beziehen. Diese entstammen dem Themenkomplex B: **'Daten und Modelle zum Nachweis der Sicherheit von Endlagern bzw. Untertagedeponien in verschiedenen geologischen Formationen'**. Dieser Themenkomplex ist in zehn Einzelthemen untergliedert, wobei sich nur die Punkte B3 bis B10 direkt auf die Nachbetriebsphase eines Endlagers beziehen. Die Titel dieser Einzelthemen entsprechen den folgenden Unterkapiteln.

5.1 Szenarienanalyse

Zur Untersuchung des langsamen Laugenzutritts in eine Einlagerungsstrecke ist ein gemeinsames Konzept von der GRS mit der Firma Stoller erarbeitet worden. Bisherige Modellrechnungen zur Langzeitsicherheit gehen von Laugenzutritten in Einlagerungsstrecken aus, bei denen die Eigenschaften des Versatzes in einer Einlagerungsstrecke als Folge des Laugenzuflusses nicht verändert werden. Falls es in der Realität aber zu

vollständigen Einkapselungseffekten durch zusätzliche Ausfällungen in den Hohlräumen des Versatzes kommt, können beträchtliche Konservativitäten in der bisherigen Modellierung der Langzeitsicherheit abgebaut werden.

Ziel des Vorhabens ist es, die Vorgänge beim Vollaufen einer mit Salzgrus versetzten Einlagerungsstrecke für Pollux-Behälter zu untersuchen und einer Modellierung zugänglich zu machen. Dazu sollen die zu erwartenden Prozesse im kleinräumigen und kurzzeitigen Maßstab in Technikumsexperimenten nachgestellt werden. Zur Verbesserung des Verständnisses werden die Ergebnisse dieser Experimente anhand von numerischen Modellen nachgerechnet. Damit sollen Extrapolationen auf größere Zeiträume und auf reale Abmessungen von Einlagerungsstrecken durchgeführt werden. Die betrachtete Einlagerungsstrecke enthält wärmeproduzierende Abfälle und ist vollständig mit Salzgrus verfüllt. Mit den Untersuchungen werden sowohl die Vorgänge beim Zulauf der Lauge und der dabei möglichen Bildung von Einkapselungen durch Verdampfen von Lauge als auch die Vorgänge nach einer vollständigen Laugesättigung des Porenraumes behandelt.

Die sich ergebenden Kenntnisse über die in einer Einlagerungsstrecke ablaufenden Vorgänge werden für die Berücksichtigung in Modellrechnungen zur Langzeitsicherheit aufbereitet.

5.2 Verhalten technischer Barrieren

Zum Verhalten von Werkstoffen von Abfallbehältern in endlagerrelevanten Laugen wurden die beiden folgenden Vorhaben, die 1995 abgeschlossen wurden, verfolgt.

- "Radiochemische Korrosionsuntersuchungen an Ti und Ti-Legierungen als Containerwerkstoffe in praxisrelevanten Salzlaugen" (Prof. Marx, FU-Berlin):
Die Korrosion von Titan und palladium- bzw. molybdänhaltigen Titanlegierungen wurde in endlagerrelevanten Laugen in Abhängigkeit der Temperatur bei unterschiedlichen Elektrodenpotentialen untersucht. Es konnte gezeigt werden, daß die untersuchten Werkstoffe insbesondere die Titanlegierungen sehr korrosions-

beständig sind. Die Korrosion erfolgt flächenmäßig, Lochfraß tritt nicht auf. Neben den reinen Werkstoffen wurden auch Schweißnähte untersucht. Diese sind bei höheren Temperaturen weniger korrosionsbeständig.

- "Lokale Korrosion metallischer Werkstoffe und γ -Strahlenwirkung in Passivschichten unter Endlagerbedingungen" (Prof. Schultze, Universität Düsseldorf)
Ziel dieses Projekts war es unter simulierten Endlagerbedingungen mit lokalen Analysemethoden Schwachstellen der Werkstoffe Ti, Ti_{0.2}Pd, Hastelloy C4 und Fe in Bezug auf lokale Korrosion zu prüfen. Mit der Versuchsdurchführung war es möglich, definierte mikroskopische Bereiche der Gefügestruktur vor und nach den Korrosionstests zu untersuchen. Folgende Ergebnisse wurden erzielt: Ti und Ti_{0.2}Pd passivieren sich auch bei höheren Temperaturen in Q-Lauge. Die Passivschichten sind einige Nanometer dick und bestehen aus Titandioxid. An beiden Materialien wurde eine hohe Stabilität und keine Lochkorrosion gefunden. Hastelloy C4 bildet zwar auch Passivschichten aus Chromoxiden und -hydroxiden, ist aber insbesondere bei hohen Temperaturen und Anwesenheit von Radiolyseprodukten wie z. B. H₂O₂ durch Lochfraß korrosionsanfällig. Feinkornbaustahl bildet in Q-Lauge bei 170°C poröse Ausfällungsschichten. Eine lokale Korrosion ist wegen der hohen Korrosionsraten bei diesem Werkstoff kein dominierender Prozeß. Die Einwirkung von γ -Strahlung auf Titan wurde durch Laserbestrahlung simuliert. Durch die Laserstrahlung bildeten sich auf Titan Oxidschichten, die sehr stabil sind und zu keinem erhöhten Angriff durch lokale Korrosion führen.

Bisher liegen zur Korrosion der Behältermaterialien keine abgesicherten physikalisch chemischen Modellvorstellungen zur Verwendung in Langzeitsicherheitsanalysen vor. Aus Sicht der Langzeitsicherheitsanalyse wären abgesicherte Angaben über die Lebensdauer der Behälter notwendig. Die Behälterlebensdauer ist erst dann von Relevanz für die Langzeitsicherheit, wenn sie ausreichend hoch ist und entsprechend lange den Laugenzutritt an die Abfallmatrix verhindert. So ist beispielsweise die Temperatur der HAW-Glasmatrix nach 1000 Jahren erheblich abgesunken. In dem Fall wäre die Korrosionsgeschwindigkeit der Glasmatrix und damit die Mobilisierungsrate der Radionuklide signifikant herabgesetzt.

5.3 Geochemische Effekte im Nahbereich

In diesen Themenbereich fallen FE-Projekte, die die Untersuchung chemischer Vorgänge, wie die Mobilisierung von Schadstoffen aus der Abfallmatrix und deren Rückhaltung durch Sorption oder Ausfällung an Korrosionsprodukten bzw. Versatzzuschlagsstoffen zum Inhalt haben. Weiterhin sind hier Vorhaben zu nennen, die sich mit der Modellierung des chemischen Milieus und der Weiterentwicklung der thermodynamischen Datenbasis für relevante Bestandteile der festen und flüssigen Phase beschäftigen.

Während der letzten Jahre wurden zu diesem Thema zwei Projekte der FU-Berlin verfolgt und bewertet. Das Vorhaben zur Korrosion von Brennstoffen wurde 1995 abgeschlossen, das Nachfolgevorhaben zur Rückhaltewirkung von Hydroxylapatit läuft noch bis 1997.

- "Elektrochemische Korrosionsuntersuchungen an unbestrahltem UO_2 und simuel in endlagerrelevanten Laagensystemen" (Prof. Marx, FU-Berlin):
Zur Brennstoffkorrosion in Abhängigkeit relevanter geochemischer Parameter wurden Grundlagen erarbeitet. In Modellversuchen wurden Korrosionsraten von UO_2 -Elektroden in Abhängigkeit der Laugenzusammensetzung, des pH-Werts, der Temperatur und des elektrochemischen Potentials mittels elektrochemischen und radiochemischen Methoden gemessen. Insbesondere wurde der Einfluß von Wasserstoff und von Behälterkorrosionsprodukten, wie Fe(III) auf die Brennstoffkorrosion untersucht. Es zeigte sich, daß molekularer Wasserstoff weder UO_2 noch die UO_3 -Deckschicht zu reduzieren vermag. Der Einfluß von Fe(III) ist abhängig vom pH-Wert der Lauge. Unter sauren Bedingungen ist die Konzentration von Fe^{3+} in der Lauge hoch. Es erfolgt ein starker korrosiver Angriff an UO_2 , wobei die Abtragungsraten näherungsweise linear mit der Fe^{3+} -Konzentration steigen. Auch die UO_3 -Deckschicht wird unter diesen Bedingungen aufgelöst. Im Fall neutraler oder basischer Bedingungen liegt Fe(III) als Hydroxid bzw. Oxid vor. Die Löslichkeit dieser Hydroxide bzw. Oxide ist so gering, daß aufgrund der niedrigen Fe^{3+} -Konzentrationen keine Abtragung von UO_2 erfolgt. Zur Zeit liegt noch keine abgesicherte neue Modellvorstellung für die Brennstoffkorrosion zur Verwendung in der Langzeitsicherheitsanalyse vor.

- “Untersuchung der Verstärkung der Rückhaltewirkung des Nahbereichs eines Endlagers in einem Salzdom gegenüber mehrwertigen Kationen durch Hydroxylapatit” (Prof. Marx, Dr. Gauglitz, FU Berlin):

Auf diesem Gebiet werden seit 1990 Arbeiten durchgeführt. In einem Pilot-Projekt konnte die gute Rückhaltewirkung von Hydroxylapatit auf die Elemente Uran, Thorium und Neptunium gezeigt werden. Die Schwermetallfixierung erfolgt aufgrund einer schnellen chemischen Reaktion, die zur Bildung wasserunlöslicher Verbindungen führt.

Zum jetzigen Zeitpunkt liegen zu den Rückhaltungseigenschaften des Hydroxylapatits noch keine Modellvorstellungen zur Verwendung in der Langzeitsicherheitsanalyse vor. Die Arbeiten werden in dem Nachfolgeprojekt “Bestimmung von Löslichkeitsprodukten endlagerrelevanter Elemente in gesättigten Salzlösungen in verschiedenen geologischen Formationen” weitergeführt. Dort sollen u. a. Löslichkeitsprodukte der entstehenden Phosphatphasen der sicherheitsrelevanter Elemente Uran und Neptunium sowie des Eisens ermittelt werden. Es soll überprüft werden, ob Uranylionen in der Lage sind, Eisen unter Bildung von Uranglimmern aus den Eisenphosphaten zu verdrängen. Zur Planung dieses Nachfolgeprojekts wurde die Ideenskizze von der GRS fachlich bewertet. Insbesondere wurde die in einem Endlager benötigten HAP-Menge auf der Basis der vorliegenden Endlagerkonzepte und des betrachteten Laugenzutrittsszenarios grob abgeschätzt. Die Verfeinerung und Bestätigung dieser Abschätzung wurde in den Vorhabensantrag mit aufgenommen.

Neben der Bewertung dieser beiden Vorhaben wurden verschiedene Arbeitsgespräche der GRS mit Mitarbeitern von Prof. Marx, FU-Berlin und Mitarbeitern des INE-FZK, Karlsruhe zum Auslaugverhalten von Zement in Salzlaugen durchgeführt. Die bisher vorliegenden Erkenntnisse wurden erörtert. Dabei wurden die noch zu bearbeitenden Fragestellungen hinsichtlich der Verwendung der Ergebnisse in Langzeitsicherheitsanalysen identifiziert. Diese zukünftigen Arbeiten werden zur Zeit in einem Antrag formuliert und sollen in einem Unterauftrag des INE von der Arbeitsgruppe von Prof. Marx an der FU-Berlin durchgeführt werden.

5.4 Gebirgs-, Hohlraum- und Versatzverhalten

Zu diesem Themenbereich wurden Ergebnisse aus bereits abgeschlossenen Vorhaben ausgewertet. Zum einen wurden In-situ Versuche zum Konvergenzverhalten ausgewertet, zum anderen wurden für die Permeabilitäts-Porositätsbeziehung neue in Langzeitsicherheitsanalysen verwendbare Datensätze abgeleitet. Diese Arbeiten wurden bereits in Kapitel 3.1 und Kapitel 3.2 dieses Berichts beschrieben. Daneben wurde das Gemeinschaftsvorhaben des Battelle-Instituts, der TU-Darmstadt und der Bergakademie Freiberg verfolgt und bewertet. Das Vorhaben wurde 1995 abgeschlossen.

- "Untersuchung des Diffusions- und Permeabilitätsverhaltens von H_2 in Steinsalz und kompaktiertem Salzgrus" (Battelle-Institut, Frankfurt, TU-Darmstadt, Bergakademie Freiberg).

Permeation und Diffusion wurden in speziell entwickelten Apparaturen an Bohrkernen und Salzgruspreßlingen untersucht. Es wurde Salzgrus aus unterschiedlichen Teufen des Forschungsbergwerks Asse und dem Grubenfeld Bernburg verwendet sowie verschiedene Kompaktionsverfahren angewandt. Als Ergebnis trat für die Porositäten über 1,5% eine eindeutige Abhängigkeit zwischen Permeabilität und Porosität in den Probekörpern auf, während darunter die Permeabilität stark von Kompaktionsdruck, Kompaktionstemperatur, Salzzusammensetzung und Feuchte abhängt. Die Diffusion hat erst bei sehr geringen Permeabilitäten einen merklichen Anteil am Stofftransport. Diese Daten sind für die Modellierung des Verhaltens von im Endlager gebildeten Korrosionswasserstoff oder sonstigen Gasen von Bedeutung, sofern die Permeabilität des Versatzes und der geotechnischen Verschlüsse durch den Gebirgsdruck bzw. die über die Zeit wirkende Gebirgskonvergenz auf sehr niedrige Werte zurückgegangen ist. Eine weitergehende Auswertung dieser Daten im Hinblick auf eine Permeabilitäts-Porositätsbeziehung ist in einem zukünftigen Vorhaben geplant (s. auch Kapitel 3.2).

Im Statusbericht "Strahlenschäden im Steinsalz" wurde die Literatur zur Auswirkung von ionisierender Strahlung auf das Endlagermedium Salz dokumentiert [20]. Auf der Basis dieses Berichtes ist der Projektantrag "Realistische Abschätzung der Strahlenschädigung von Steinsalz bei Einlagerung von HAW in Bohrlöchern" beim BMBF ge-

stellt worden. Im Rahmen dieses Vorhabens werden diesbezügliche Rechnungen für das deutsche Endlagerkonzept durchgeführt und der Einfluß der Strahlungseffekte auf die Endlagersicherheit abschließend bewertet.

5.5 Transportvorgänge in der Geosphäre

Dieser Themenkomplex beinhaltet zum einen die Modellierung der großräumigen Grundwasserbewegung in komplexen geologischen Systemen, zum anderen das Migrationsverhalten von Schadstoffen unter den hydrogeologischen und geochemischen Bedingungen in den Deckgebirgsschichten eines Salzstocks.

Zum ersten Punkt wurde von der GRS ein weiterführendes FE-Projekt konzipiert. Als Grundlage dafür wurde ein Feinkonzept zur Entwicklung eines schnellen Grundwasserprogramms mit variabler Dichte fertiggestellt. Der darauf aufbauende Projektantrag ist vom BMFT/BMBF bewilligt worden. Das Projekt läuft seit 1995. Betrachtet man ein Endlager im Steinsalz, ist es notwendig, bei der Modellierung des Grundwasserströmungsfeldes im Deckgebirge den Effekt der Salinität des Grundwassers zu berücksichtigen. Zu diesem Zweck wird in diesem Projekt ein Computerprogramm zur dreidimensionalen Modellierung komplexer Strukturen und großer Modellgebiete entwickelt, in dem die variable Dichte entsprechend der Salinität berücksichtigt werden kann.

Die folgenden Projekte, die sich mit speziellen Aspekten zur Migration von Radionukliden beschäftigen wurden im laufenden Vorhaben bewertet.

- "Datenbank zur Verwendung bei der geochemischen Modellierung"
(Frau Petschel, IfE Leipzig)

Mit der Erstellung der Sorptionsdatenbank des IfE ist die Bestandsaufnahme der experimentell bestimmten Sorptionswerte für das Endlager-Fernfeld im wesentlichen erfolgt. In der Datenbank sind die experimentell ermittelten Sorptionsdaten endlagerrelevanter Radionuklide und die jeweiligen Randbedingungen der Experimente aus verfügbaren Berichten enthalten. Die Datenbank wird bereits in dem nachfolgend beschriebenen Vorhaben zur geochemischen Modellierung der

Rückhaltung von ausgewählten Radionukliden verwendet, mit dem ein tieferes Verständnis und eine genauere Beschreibung von Sorptionseffekten erreicht werden soll.

- "Geochemische Modellierung der Rückhaltung von Radionukliden der Elemente Sr, Cs, U, Am, Se und Ni in wassergesättigten Aquiferen" (Dr. Lang, GSF- Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg):

Ziel ist die Modellierung von geochemischen Rückhaltevorgängen für relevante Nuklide modelliert bei ihrer Ausbreitung im Endlagerfernfeld. Dabei geht es im wesentlichen um die Modellierung der Sorption von Strontium, Cäsium, Uran, Americium, Selen und Nickel an Deckgebirgssedimenten mit dem Geochemieprogramm 'Hydraql' unter Verwendung eines Oberflächenkomplexmodells. Daraus könnte zumindest für einige Nuklide eine gegenüber dem K_d -Konzept verbesserte quantitative Beschreibung der Rückhaltung im Deckgebirge resultieren. Dieses Projekt stützt sich zum einen auf die thermodynamischen Daten der NEA- und der CHEMVAL-Datenbank. Zum anderen werden die experimentell ermittelten Daten von Uran, die in der vom IFE erstellten Sorptionsdatenbank zur geochemischen Modellierung enthalten sind, verwendet. Dies entspricht der im Strategiepapier [6] geforderten Vorgehensweise.

- "Altersbestimmung von Grundwässern nach der C-14-Methode aus dem Kohlenstoffgehalt und aus Huminstoffen" (Prof. Kim, TU München)

Ziel des Vorhabens ist die Altersbestimmung von gelösten und sedimentierten Kohlenstoffverbindungen mit der C-14-Methode, um Erkenntnisse über eine mögliche Migrierbarkeit von gelösten organischen Stoffen, wie Huminstoffen in Aquiferen des Deckgebirges zu gewinnen. Für Aquifersysteme, in denen der Gehalt an sedimentgebundenem Kohlenstoff (SOC) vernachlässigbar klein ist, wurden mit der C-14-Datierung von gelösten Fulvinsäuren plausible Grundwasseralter bestimmt. Bei hohen SOC-Gehalten kann dieses jedoch zu einer Verfälschung der Grundwasseralter führen.

Zur Bildung, Stabilität und Migration von Huminstoffen sind zum jetzigen Zeitpunkt noch sehr viele Fragen offen. Relevante Fragen zum Radionuklidtransport bei Anwesenheit von Huminstoffkolloiden sollen in einem Vorhaben der GSF-Neuherberg bearbeitet werden, zu dem eine Projektskizze im Hinblick auf die Ziele der Langzeitsicherheitsmodellierung begutachtet wurde.

- "Huminstoffgetragener Radionuklid-Transport in verschiedenen Sediment-Wasser-Systemen" (Dr. Klotz, GSF- Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, GmbH, Neuherberg):

In dieser Projektskizze wird die Untersuchung der Migration von ein-, zwei- und dreiwertigen Kationen in huminstoffreichen Wässern vorgeschlagen. Die geplante Durchführung von Säulenversuchen zum huminstoffgetragenen Nuklidtransport ist sinnvoll, da ein erheblicher Einfluß der Kolloide auf die Migration von Nukliden beobachtet wurde, bisher aber nur wenige Säulenexperimente dazu existieren. In der Begutachtung wurde darauf hingewiesen, daß die Prozesse 'Filtration von Kolloiden' und 'Nukliddesorption von den Kolloiden mit anschließender Adsorption an der Sedimentmatrix' von Relevanz sind. Beide Prozesse sollten möglichst getrennt untersucht werden.

Weitere Forschungsarbeiten zur Wechselwirkung von Radionukliden mit Huminstoffkolloiden werden vom FZK/INE durchgeführt. Die Schwerpunkte dieser Arbeiten liegen in der Untersuchung der Komplexbildung von Aktinidionen wie z. B. Cm(III) und Np(V) mit Huminstoffen unter natürlichen Grundwasserbedingungen. Bisher wurden Komplexbildungskonstanten für pH-Werte <6 ermittelt, die pH-Werte natürlicher Wässer liegen aber im Bereich 6-9. Ein Ziel für weitere Arbeiten ist die Ermittlung der Speziesverteilung der relevanten Radionuklide unter entsprechenden Bedingungen.

Neben dem Einfluß von Huminstoffen ist auch die Auswirkung von mikrobiellen Effekten auf das Migrationsverhalten von Radionukliden eine langzeitsicherheitsrelevante Fragestellung. Für redoxsensitive Elemente wie Tc, Se und Np kann die Ausbildung eines reduzierenden Mikromilieus erheblichen Einfluß auf die Rückhaltung haben. Diese Elemente sind in oxidiertem Zustand wesentlich mobiler als in reduziertem Zustand. Systematische Untersuchungen zu diesem Thema wurden und werden in den FE-Vorhaben von TU- und FU-Berlin durchgeführt.

- "Sorptionsexperimente zur Beeinflussung der Radionuklidmigration durch mikrobielle Aktivitäten am Beispiel des Technetiums und Selen" und "Untersuchung zur Methodik von Sterilisationsverfahren sowie mikrobielle Überwachung von Sorptionsexperimenten" (Prof. Pekdeger/Dott, TU/FU-Berlin):
Zum mikrobiellen Einfluß auf Rückhaltevorgänge wurde in den beiden Vorhaben der Einfluß unsteriler Arbeitsweisen im Labor auf die Sorptionswerte untersucht. Die bisherigen Ergebnisse zeigen, daß eine unsterile Durchführung der Experimente die Sorptionswerte des redoxsensitiven Elements Technetium nachhaltig beeinflussen. In einem Nachfolgevorhaben wird derzeit untersucht, welchen Einfluß autochthone, d. h. im Boden vorhandene, Mikroorganismen auf das Migrationsverhalten von Radionukliden haben. Im zweiten Quartal 1996 wurde vom Bundesamt für Strahlenschutz ein Workshop zu den bisherigen Ergebnissen der an diesen Arbeiten beteiligten Arbeitsgruppen durchgeführt. Die vorliegenden Messungen an einem sandigen, braunkohlehaltigen Grundwassersedimentsystem zeigen eine geringe Mikroorganismendichte und keine signifikante Auswirkung derselben auf die Sorption von Technetium und Selen. Für eine abschließende Aussage über die Auswirkungen mikrobieller Aktivitäten sollen die Meßergebnisse an drei weiteren Grundwassersedimentsystemen abgewartet werden.

5.6 Methodenentwicklung und Rechenprogramme für Langzeitsicherheitsanalysen

Diesbezüglich ist ein Projekt zur Weiterentwicklung des Rechenprogrammes EMOS konzipiert worden. Ziel ist es, neue Modellansätze zur Berücksichtigung von Gasen im Nahbereich und zur Berücksichtigung kolloidaler Träger für den Nuklidtransport im Fernbereich zu entwickeln.

Die bisherige Berücksichtigung von Gasen im Grubengebäude geht von der Annahme aus, daß nur geringe Mengen Gas entstehen. Da nach neueren Erkenntnissen durch Korrosion größere Mengen Gas entstehen können, sollen die Auswirkungen der Gasbildung und des Gastransports in zwei Schritten untersucht werden.

Zunächst ist zum Verständnis des gekoppelten Transports von Laugen und Gasen eine geschlossene Beschreibung mittels eines Zweiphasen-Transportmodells notwendig. Mit dem Transportmodell sollen für charakteristische Teile des Grubengebäudes ausgewählte Fälle als Prinzipmodelle dargestellt und in ihrem Verhalten erläutert werden. Mit dem dabei gewonnenen Verständnis sollen anschließend vereinfachte Modelle zur Ausbreitung der Gase sowie zur Auswirkung der Gasausbreitung auf den Schadstofftransport abgeleitet werden.

Die offenen Fragen zum huminstoffgetragenen Nuklidtransport im Deckgebirge sind auf der Grundlage aktueller Forschungsergebnisse identifiziert worden. Darauf basierend wurde ein Projektantrag zur Neuentwicklung eines Radionuklidtransportprogramms unter Berücksichtigung von kolloidalen Trägern konzipiert. Ein solches Transportprogramm soll zukünftig als weiteres Werkzeug zur Modellierung des Nuklidtransports in der Geosphäre in das Programmpaket EMOS integriert werden.

5.7 Validierungsstrategien und Qualitätssicherung von Rechenprogrammen

Im Rahmen dieses Themenbereichs werden neben der Entwicklung von Strategien zur Qualitätssicherung von Rechenprogrammen auch Arbeiten zur Überprüfung der Übertragbarkeit von Ergebnissen von Labor- und Felduntersuchungen auf die reale Umgebung eines Endlagers durchgeführt. Zur Übertragbarkeit von Löslichkeiten und Sorptionskoeffizienten wurde das erste Projekt der TU-München 1993 abgeschlossen. Das Nachfolgeprojekt läuft bis einschließlich 1996.

- "Untersuchung der Übertragbarkeit von Labordaten auf natürliche Verhältnisse am Beispiel von Gorleben Aquifersystemen" (Prof. Kim, TU-München):
Die Speziesverteilung u. a. von Americium- und Curium-Ionen wurde in ausgewählten Grundwässern mittels laserspektroskopischer Methoden bestimmt und mit Ergebnissen thermodynamischer Modellrechnungen verglichen. Es konnte eine gute Übereinstimmung festgestellt werden. Die in diesem Projekt behandelte Fragestellung werden in einem Nachfolgevorhaben weiter bearbeitet. Dabei sollen schwerpunktmäßig noch fehlende thermodynamische Daten der tetravalenten Actiniden Th(IV), U(IV) und Pu(IV) ermittelt werden. Außerdem sollen die

Redoxreaktionen von Uran, Neptunium und Technetium sowie die Wechselwirkung von Aktinidionen mit Grundwasser-relevanten anorganischen Kolloiden und Mineralien der Sedimentmatrix eingehender experimentell untersucht werden.

Außerdem hat die GRS an einer nationalen Expertengruppe des PTE zu dem Thema "Natürliche Analoga" mitgearbeitet. Die Anregung für eine derartige Arbeitsgruppe aus Modellierern, Geowissenschaftlern und Langzeitsicherheitsanalytikern wurde seinerzeit vom Sachverständigenkreis Endlagerung (SKE) des BMBF gegeben. In vielen internationalen Endlagerprojekten sind Naturaloga-Studien ein integraler Bestandteil des Langzeitsicherheitsnachweises für geologisch lange Zeiträume. Dagegen wurde in Deutschland auf diesem Gebiet bisher nur sehr wenig gearbeitet. Insbesondere für Endlager in salinaren Formationen ist das Thema aus verschiedenen fachlichen Gründen noch nicht vertieft behandelt worden. Erstmals hat der BMBF auf seiner Veranstaltung am 4. und 5.11.1993 auf der Basis von Fachbeiträgen zu verschiedenen Einzelthemen eine breitere Diskussion angestoßen [21]. Die Fragen, deren sich der Expertenkreis angenommen hat, reichen von grundsätzlichen Überlegungen bis hin zu dem Problem der Berücksichtigung von Erkenntnissen aus Natur-Analoga in sicherheitsanalytischen Modellen. Obwohl für andere Endlagerkonzepte derartige Fragestellungen teilweise schon beantwortet sind, stellen sie sich für die Endlagerung im Salzgestein z. T. unter anderen Gesichtspunkten neu:

- Was sind natürliche Analoga?
- Welche Bedeutung haben natürliche Analoga für die Bewertung der Langzeitsicherheit eines Endlagers?
- Auf welchen Gebieten und für welche Fragestellungen können Natürliche Analoga verwendet werden?
- Welchen Status haben entsprechende Untersuchungen?
- Welche Untersuchungen sollten in das Förderprogramm des BMBF aufgenommen werden?

Der Nutzen von Natürlichen Analoga sollte in der Modellentwicklung und Modellvalidierung für langfristig ablaufende geologische und Radionuklid-Ausbreitungsprozesse liegen. Sie sollten dazu dienen,

- die Vollständigkeit der wesentlichen Prozesse, insbesondere der Langzeitprozesse des konzeptionellen sicherheitsanalytischen Modells sowie die Plausibilität und Realitätsnähe der Modellannahmen zu beurteilen,
- Hinweise auf fehlerhafte Abbildungen und mangelnde Kenntnis von Prozessen und Vorgängen zu liefern und
- als Basis von Modellverbesserungen.

Außerdem sollte mit der Einbeziehung von Natürlichen Analoga in die sicherheitsanalytische Bewertung eines Endlagers das Vertrauen in die Endlagerplanung und die Langzeitsicherheitsaussagen sowohl bei Personenkreisen, die nicht direkt mit der Endlagerproblematik vertraut sind, als auch bei öffentlichen und politischen Meinungsträgern, gefördert werden können.

Von dem Expertenkreis wurde eine Liste prioritär zu bearbeitender Natur-Analoga-Themen für Endlager in Salzformationen erarbeitet und die Empfehlung ausgesprochen, diese Themen in das Förderkonzept des BMBF aufzunehmen. In der Zwischenzeit sind FE-Vorhaben basierend auf dieser Themenliste initiiert worden, bzw. werden bereits durch BMBF oder BfS gefördert. Der Expertenkreis Natürliche Analoga soll bestehen bleiben, um die laufenden und zukünftigen Arbeiten auf diesem Gebiet zu koordinieren und fachlich zu begleiten.

Die GRS hat einen Antrag an das BMBF zur Untersuchung der Ausbreitung und Retention von Uran, Radium, Thorium und anderen Nukliden in sedimentären Gesteinen, vorzugsweise Tonen, gestellt. Im Rahmen einer Voruntersuchung sollen untersuchungswürdige Uranerzmineralisationen in Deutschland und der Tschechischen Republik in Augenschein genommen und zur besseren Charakterisierung möglicher Untersuchungsobjekte erste Probenahmen durchgeführt werden. Ein Konzept für ein anschließendes Forschungsprojekt mit der Durchführung von Feldmessungen, geochemisch-mineralogischen Laborarbeiten und geochemischer Modellierung der Untersuchungsergebnisse soll erarbeitet werden.

Ein weiterer Antrag zur Voruntersuchung von altem Versatz in ehemaligen Kalisalzgewinnungsbergwerken als natürliches Analogon für das Kompaktionsverhalten von Versatzmaterial und das Langzeitkonvergenzverhalten von Versatzstrecken im Steinsalz ist in Vorbereitung.

6 Zusammenfassung

Mit Abschluß dieses Projekts sind deutliche Fortschritte in der Planung, Vorbereitung und Bereitstellung von Instrumentarien für sicherheitsanalytische Arbeiten erzielt worden. Laufende und geplante FE-Projekte wurden in Abstimmungsgesprächen mit dem PTE hinsichtlich ihrer Relevanz für endlagerbezogene Langzeitsicherheitsanalysen bewertet. Aus bereits vorliegenden Ergebnissen experimenteller und theoretischer Arbeiten wurden neue Modellansätze und Daten zur Verwendung in sicherheitsanalytischen Rechnungen abgeleitet. Die wichtigsten Ergebnisse werden im folgenden zusammengefaßt.

Die bisher in Langzeitsicherheitsanalysen verwendete Beziehung zwischen der Porosität von Steinsalz und dessen Permeabilität basierte auf nur wenigen experimentellen Daten. Anhand des bis 1994 bekannt gewordenen, umfangreichen neuen Datenmaterials wurde die bisher in Langzeitsicherheitsanalysen verwendete Potenzfunktion bestätigt, die verwendeten Parameter wurden modifiziert. Erstmals wurden für probabilistische Sicherheitsanalysen die statistischen Verteilungsfunktionen der miteinander korrelierten Parameter der Permeabilitäts-Porositätsbeziehung bestimmt.

Für die Konvergenz offener und versetzter Hohlräume wurde aus In-situ-Daten ein neues Modell entwickelt, das u. a. die Stützwirkung des Versatzes auf eine verbesserte Weise berücksichtigt. Die explizite Zeitabhängigkeit der Konvergenzrate kann ebenfalls implementiert werden. Die Temperaturabhängigkeit der Konvergenzrate kann mit dem bisherigen Modell beschrieben werden, wobei ein Formalismus zur Ermittlung einer repräsentativen Temperatur des Salzgesteins vorgeschlagen wurde.

Zur Untersuchung der Geochemie des Endlagernahbereichs wurden Auslaugversuche an zementierten Großproben in der Asse ausgewertet und die bisher verwendeten Modellansätze zur Mobilisierung von Nukliden aus der Zementmatrix in Salzlauge überprüft. Die experimentellen Ergebnisse widersprechen einem der bisher verwendeten Mobilisierungsmodelle. Zur Verwendung in zukünftigen Langzeitsicherheitsanalysen muß dieses Modell modifiziert werden. Zur Nuklidmigration im Deckgebirge wurden aus Labordaten Parameter für nichtlineare Rückhaltekonzepte abgeleitet und die Auswirkun-

gen dieser nichtlinearen Ansätze anhand von Modellrechnungen untersucht. Die Ergebnisse zeigen, daß für einige Elemente Unterschiede in Transportzeit und Dosisrate gegenüber Rechnungen mit dem linearen Sorptionsansatz auftreten.

Langzeitsicherheitsanalysen für Granit- und Salzformationen wurden miteinander verglichen und die wesentlichen sicherheitsrelevanten Parameter in den Modellrechnungen identifiziert. Auf dieser Basis wurde der notwendige FE-Bedarf zur Durchführung von langzeitsicherheitsanalytischen Modellrechnungen für granitische Gesteinsformation unter den Randbedingungen des deutschen Entsorgungskonzeptes aufgezeigt.

In einem Expertenkreis zum Thema "Natürliche Analoga" war die GRS daran mitbeteiligt, einen diesbezüglichen Forschungsbedarf für den Langzeitsicherheitsnachweis zu identifizieren. Es wurde eine Liste prioritär zu bearbeitender Themen für Naturanalogastudien für Endlager in Salzformationen erarbeitet. Zu den einzelnen Themen wurden, bzw. werden neue Vorhaben initiiert.

Ein wichtiges Resultat aus internationalen Arbeiten kam aus der Beteiligung an der Arbeitsgruppe PSAG der OECD-NEA zur Entwicklung und Vereinheitlichung probabilistischer Rechenverfahren bei Langzeitsicherheitsanalysen. Bei der GRS (früher GSF) wurde im Rahmen dieser Beteiligung ein Monte-Carlo-Verfahren zur statistischen Behandlung von Unsicherheiten in das Rechenprogramm EMOS integriert.

Trotz deutlicher Fortschritte bei der Weiterentwicklung der Methoden und der Aktualisierung der verwendeten Datensätze zur Bewertung der Langzeitsicherheit von Endlagern sind weiterführende Arbeiten erforderlich. Dies ergibt sich auch aus dem internationalen Entwicklungsfortschritt, der sich vor dem Hintergrund konkreterer Endlagerplanungen und den Anforderungen international und national konzipierter Sicherheitsstrategien vollzieht. Zu einigen Fragestellungen wurden bereits während der Laufzeit dieses Vorhabens neue FE-Projekte initiiert.

Die Analyse der Meßergebnisse für Salzgrus hinsichtlich der Permeabilitäts-Porositätsbeziehung hat gezeigt, daß noch keine ausreichenden Daten für den Bereich kleiner Porositäten zur Verfügung stehen. Wenn geeignete neue Daten vorliegen, ist die Ablei-

tung der Permeabilitäts-Porositätsbeziehung für diesen Bereich zu wiederholen. Außerdem sollte die Übertragbarkeit der aus den Labordaten ermittelten Permeabilitäts-Porositätsbeziehung auf die realen Verhältnisse eines Endlagerbergwerks im Salzgestein überprüft werden. Ob die bisher im Labor angewandte schnelle Kompaktion des Salzgruses, beispielsweise durch Zerstörung des Korngerüsts, Einfluß auf das Kompaktionsverhalten hat, kann gegebenenfalls in weiteren In-situ-Versuchen bzw. Laborversuchen mit sehr langsamen Kompaktionsgeschwindigkeiten untersucht werden.

Die Auswertung von Sorptionsdaten für das Deckgebirge hat gezeigt, daß eine mehrdimensionale Modellierung des Nuklidtransports unter Berücksichtigung der transversalen Dispersion für die Beschreibung der Rückhaltung mit nichtlinearen Sorptionsisothermen notwendig ist. Außerdem wird der Transport einiger Nuklide nach neuen Erkenntnissen durch kolloidale Träger beeinflusst. Die vorliegenden Ergebnisse zur Wechselwirkung von Nukliden mit Huminstoff-Kolloiden sowie zur Bildung und zum Transport von Kolloiden sollten zusammengestellt und weitergehend ausgewertet werden.

Ein weiteres wichtiges Thema stellt die Erzeugung und der Verbleib von Gasen im Endlager dar. Hier sollte der bisherige Kenntnisstand aus den Laborversuchen im Hinblick auf die real erwarteten Verhältnisse zusammengestellt und das weitere Vorgehen bei diesbezüglichen Forschungsarbeiten geplant werden. Es wäre aus heutiger Sicht z. B. zu untersuchen, wie die Bildung von Gasen und deren Auswirkungen auf das Endlager-system in Langzeitsicherheitsanalysen berücksichtigt werden können.

Aufbauend auf dem Vergleich langzeitsicherheitsanalytischer Rechnungen für Endlagerkonzepte in Salz und Granit wird in einem Nachfolgeprojekt auf der Basis der bisherigen deutschen Entwicklungen ein Instrumentarium erarbeitet, mit dem orientierende Rechnungen zur Langzeitsicherheit eines Endlagers in Granit durchgeführt werden können.

Die Mitarbeit der GRS in dem Expertenkreis Natürliche Analoga soll weitergeführt werden. Schwerpunkt zukünftiger Arbeiten werden die Verfolgung von ausgewählten Projekten zu natürlichen Analoga und die Überprüfung der Ergebnisse hinsichtlich deren Verwendbarkeit in Langzeitsicherheitsanalysen sein.

Um die Ergebnisse internationaler Entwicklungen auf deutsche Verhältnisse zu übertragen und für Sicherheitsanalysen zur Verfügung zu stellen, müssen auch internationale Arbeiten weiterverfolgt und an internationalen Vorhaben teilgenommen werden. Dies geschieht vornehmlich in den verschiedenen Beratungs- und Arbeitsgruppen der OECD/NEA. Hauptinteressenspunkte sind offene Fragen zur Szenarienanalyse, zur methodischen Vorgehensweise bei Sicherheitsanalysen, zum Konservativitätsnachweis von Sicherheitsanalysen und zur Validierung von Modellen durch geeignete Experimente. Besonders besteht dieser Bedarf bei hydrogeologischen und geochemischen Modellen und bei gekoppelten Prozessen, die auf das gebirgsmechanische Langzeitverhalten der Endlagerformationen und die geotechnischen Barrieren deutlichen Einfluß haben.

7 Literatur

- [1] R. Storck, D. Buhmann, R.-P. Hirsekorn, T. Kühle, L. Lührmann: Das Programmpaket EMOS zur Analyse der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle. Version 5. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Bericht GRS-122, Braunschweig (1996).
- [2] C. Tix: Auswertung von in-situ-Konvergenzdaten und Ableitung von Modellansätzen, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-133, Braunschweig 1996.
- [3] E. Fein, I. Müller-Lyda, R. Storck: Ableitung einer Permeabilitäts-Porositätsbeziehung für Salzgrus und Dammbaumaterialien. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-132, Braunschweig 1996.
- [4] U. Noseck: Auswertung von Sorptionsdaten hinsichtlich nichtlinearer Sorptionsmodelle. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-134, Braunschweig 1996.
- [5] U. Noseck: Vergleich von Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granit- und Salzformationen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-135, Braunschweig 1996.
- [6] T. Kühle, F. Zude, W. Brewitz, W. Hild: Notwendige Arbeiten zur Verwendung der Ergebnisse von geochemischen Experimenten in Transportrechnungen für endlagerbezogene Langzeitsicherheitsanalysen. Strategie zur geochemischen Modellierung. GSF-Bericht 38/90. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig 1990.
- [7] J. Prij, D. Jansen, W. Klerks, G. B. Luyten, A. de Ruiter and L. H. Vons: Nuclear science and technology, Measurement in the 300 meter deep dry drilled borehole and feasibility studz on the dry-drilling of a 600 meter deep borehole in the Asse salt-mine, Final report, Commission of the European Communities, Luxemborg, 1986

- [8] D. Buhmann, A. Nies, R. Storck: Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagerkonzepten für wärmeerzeugende radioaktive Abfälle. GSF-Bericht 27/91. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig 1991.

- [9] L. Lührmann, U. Noseck: Das eindimensionale Transportprogramm CHET2 unter Berücksichtigung nichtlinearer, elementspezifischer Gleichgewichtssorption. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Bericht GRS-125, Braunschweig (1996).

- [10] R.-P. Hirsekorn, A. Nies, H. Rausch, R. Storck: Performance Assessment of Confinements for Medium-Level and Alpha-Contaminated Waste (PACOMA): Rock Salt Option. EUR 13 634 EN, GSF-Bericht 12/91. Kommission der Europäischen Gemeinschaften, GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Brüssel-Luxemburg 1991.

- [11] H. Hinsch, F. Keßler: Auslaugversuche an Großproben in der Schachtanlage ASSE, GSF-Bericht 1/85. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig, 1985.

- [12] K. Siemon, P. Patzelt: Auswertung der Auslaugversuche in der Schachtanlage ASSE, durchgeführt im Auftrag der GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Institut für Kernchemie, Fachbereich Physikalische Chemie der Philipps-Universität Marburg/Lahn, Dezember 1993.

- [13] W. E. Falck: Grundlagen zur Untersuchung des Chemischen Milieus in Endlagern für radioaktive Abfälle in Salzformationen. WS Atkins International Ltd., Berlin 1994.

- [14] H. Meier, E. Zimmerhackl, G. Zeitler, P. Menge, W. Hecker: Radionuklidmigration im Deckgebirge des Endlagerortes Gorleben. Staatliches Forschungsinstitut für Geochemie Bamberg, 1989.

- [15] D. Klotz, H. Lang: Experimentelle Untersuchungen zur Migration ausgewählter Radionukliden im Deckgebirge des Endlagerortes Gorleben. Untersuchungsprogramm IV, GSF-Bericht 20/92.

- [16] Future Human Actions at Disposal Sites. A Report of the Working Group on Assessment of Future Human Actions at Radioactive Waste Disposal Sites. OECD/NEA, Paris 1995.

- [17] B. Kienzler: A coupled migration/speciation code - demonstrated by modeling the migration of americium in a column. Proc. of the Internat. Conf. on Mathematics and Computations, Reactor Physics and Environmental Analyses, Portland, Oreg. April 30 - May 4, 1995.

- [18] E. Fein, K. Klarr und C. von Stempel: Efforts toward validation of a Hydrological Model of the Asse Area. Proceedings of an NEA/SKI Symposium, Paris, France, 11.-14. October 1994.

- [19] P. Bogorinski, K. Schelkes, R. Storck and J. Wollrath: Validation Strategies for Licensing Nuclear Waste Repositories in Salt Formations in Germany. Proceedings of an NEA/SKI Symposium, Paris, France, 11.-14. October 1994.

- [20] H. Gies, W. Hild, Th. Kühle, J. Mönig: Strahleneffekte im Steinsalz - Statusbericht. GSF-Bericht 9/93. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig, 1993.

- [21] Sammlung der Vorträge anlässlich des Workshops Natürliche Analoga zur Endlagerung radioaktiver Abfälle am 4. und 5. November 1993 im Kernforschungszentrum Karlsruhe. KfK 5323, April 1994.

**Gesellschaft für Anlagen-
und Reaktorsicherheit
(GRS) mbH**

Schwertnergasse 1
50667 Köln
Telefon +49 221 2068-0
Telefax +49 221 2068-888

Forschungsinstitute
85748 Garching b. München
Telefon +49 89 32004-0
Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200
10719 Berlin
Telefon +49 30 88589-0
Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4
38122 Braunschweig
Telefon +49 531 8012-0
Telefax +49 531 8012-200

www.grs.de