



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

**Aktualisierung
sicherheitsanalytischer
Rechenprogramme
für Teilsysteme eines
Endlagers**



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

Aktualisierung sicherheitsanalytischer Rechenprogramme für Teilsysteme eines Endlagers

Kolloidgetragener Transport,
Aufsättigung der Bentonitbarriere,
Verifizierung eindimensionaler
Transportmodellierung,
probabilistische Methoden,
Postprozessoren

Dieter Buhmann
Dirk-Alexander Becker
Sven Keesmann
Klaus-Peter Kröhn
Anrdre Rübel

Oktober 2004

Anmerkung:

Die diesem Bericht zugrundeliegenden Arbeiten wurden mit Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Arbeit (BMWA) unter dem Förderkennzeichen 02 E 9178 gefördert.

Die Arbeiten wurden von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt allein bei den Autoren.

**GRS - 200
ISBN 3-931995-67-4**

Deskriptoren:

Computer Code, Computergrafik, Endlager, Geosphäre, Kolloid, Korrosion, Probabilistik, Langzeitsicherheit, Modell, Nuklidtransport, Sorption

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Kolloidgetragener Schadstofftransport im Fernfeld	7
2.1	Eigenschaften und Prozesse	9
2.1.1	Konzentration der Kolloide im Kluftwasser	10
2.1.1.1	Natürliche Grundwasserkolloide	10
2.1.1.2	Kolloide aus der Korrosion der Abfallmatrix	10
2.1.1.3	Kolloide aus der Erosion der Bentonitbarriere	11
2.1.2	Sorption der Schadstoffe an den Bentonitkolloiden	15
2.1.3	Sorption der Bentonitkolloide an der Kluftoberfläche	15
2.1.4	Zusammenfassung	16
2.2	Mathematische Beschreibung des kolloidgetragenen Schadstofftransports	17
2.2.1	Doppelporositätsmodell	17
2.2.2	Berücksichtigung des kolloidgetragenen Transports	18
2.3	Modellrechnungen	25
2.3.1	Prinzipstudie	25
2.3.1.1	Zeitlich unbegrenzte und konstante Freisetzung aus dem Nahfeld	27
2.3.1.2	Zeitlich begrenzte Freisetzung aus dem Nahfeld	28
2.3.2	BENIPA-Referenzfall	35
2.4	Zusammenfassung	42
3	Modellierung der Aufsättigung der Bentonitbarriere	45
3.1	Beschreibung der Aufsättigungsmodelle	46
3.1.1	Empirisches Diffusionsmodell	47
3.1.2	Advektionsmodell	48
3.1.3	Dampfdiffusionsmodell	50
3.2	Definition der Testfälle	53
3.3	Ergebnisse des Advektionsmodells	54
3.4	Ergebnisse des Dampfdiffusionsmodells	57
3.5	Schlussfolgerungen	58

4	Schadstofftransport im eindimensionalen Nahfeldmodell	61
4.1	Beschreibung der Testfälle	62
4.1.1	Das Modellgebiet	62
4.1.2	Das Strömungsmodell	64
4.1.3	Das Transportmodell	67
4.1.4	Aspekte der Diskretisierung	70
4.2	Auswertung der Testrechnungen	71
4.3	Zusammenfassung	78
5	Vergleich verschiedener Verfahren der probabilistischen Langzeitsicherheitsanalyse	79
5.1	Terminologie	81
5.2	Klassische Verfahren der Sensitivitätsanalyse	82
5.2.1	Korrelationskoeffizient nach Pearson bzw. Spearman	83
5.2.2	Standardisierte Regression	84
5.2.3	Partielle Korrelation	86
5.2.4	Smirnov-Test	87
5.2.5	Bewertung der klassischen Verfahren	88
5.3	Varianzbasierte Methoden der Sensitivitätsanalyse	89
5.3.1	Sensitivitätsindizes nach Sobol	90
5.3.2	Berechnung der Sobol- Indizes	93
5.3.3	Die FAST Methode	94
5.3.4	Vergleich zwischen Sobol- und FAST- Methode	96
5.4	Vergleich der FAST-Methode mit klassischen Methoden	98
5.4.1	Einfaches Grubengebäude	98
5.4.2	SAM	102
5.5	Schlussfolgerungen	108
6	Grafische Darstellung von Schadstoffinventaren und Grubengebäudestrukturen	111
6.1	Verteilung der Schadstoffmassen in Teilbereichen des Endlagers	111
6.1.1	Leistungsumfang des entwickelten Postprozessors	111
6.1.2	Beispiele	112
6.1.3	Schlussfolgerungen	116

6.2	Visualisierungsmethoden für netzartige Grubengebäudestrukturen	117
6.2.1	Leistungsumfang des entwickelten Prä- und Postprozessors	117
6.2.2	Beispiele	118
6.2.2.1	Erzeugung von Geometrie- und Strukturdaten	118
6.2.2.2	Erzeugung von AutoCAD-Dateien	120
6.2.2.3	Erzeugung von LOPOS-Eingabedateien	121
6.2.2.4	Postprozessor	121
6.2.3	Zusammenfassung	124
7	Zusammenfassung	125
	Literatur	129
	Abbildungsverzeichnis	135
	Tabellenverzeichnis	139

1 Einleitung

Abfälle mit radioaktiven und chemo-toxischen Schadstoffen müssen für einen sehr langen Zeitraum von der Biosphäre ferngehalten werden. Zu diesem Zweck werden weltweit zumeist untertägige Endlager konzipiert, die durch Einschluss der Abfälle in geeigneten geologischen Formationen und durch eine möglichst effektive Behinderung der Ausbreitung der Schadstoffe in Richtung auf die Biosphäre eine derartige Isolation gewährleisten sollen. Als Wirtsgesteine für ein Endlager werden derzeit Salz, Granit und Ton untersucht.

Während verhältnismäßig schnell ablaufende chemische oder physikalische Einzelprozesse, die für die Freisetzung von Schadstoffen aus einem Endlager bedeutsam sein können, unter idealisierten Bedingungen im Labor oder auch mittels In-situ-Experimenten zu untersuchen sind, entzieht sich die Langzeitentwicklung eines Endlagersystems über Zeiträume von mehreren hunderttausend Jahren, wie sie für den Abbau der Radiotoxizität von Abfällen benötigt werden, vom Prinzip her jeder experimentellen Beobachtung. Die einzige Möglichkeit, derartige Zeiträume zu erfassen, liegt in der Durchführung von Modellrechnungen.

Das komplexe Gesamtsystem eines Endlagers kann unter Berücksichtigung aller darin ablaufenden chemischen und physikalischen Vorgänge nicht im Detail modelliert werden. Daher kommt es darauf an, aus der Vielzahl der Prozesse diejenigen herauszufiltern, die auf eine eventuelle Schadstofffreisetzung einen wesentlichen Einfluss haben, und diese gezielt in vereinfachte Rechenmodelle umzusetzen. Um neuen Erkenntnissen Rechnung zu tragen, ist es erforderlich, die verwendeten Rechenprogramme regelmäßig zu aktualisieren und anzupassen. Nur so ist zu gewährleisten, dass das eingesetzte Instrumentarium stets dem Stand von Wissenschaft und Technik entspricht.

Bei der GRS wird für Modellrechnungen zur Langzeitsicherheit u.a. das Programmpaket EMOS verwendet und gepflegt. Die Anfänge dieses Werkzeugs reichen bis in die frühen 1980er Jahre zurück, als die erste Version eines Programms zur Berechnung der Radionuklidfreisetzung aus dem Nahbereich eines aus Kammern und Strecken aufgebauten Endlagers im Steinsalz entwickelt wurde. In der Folgezeit wurden die Möglichkeiten des Programms erweitert und die Modellierung verfeinert, später kamen Codeteile für die

Modellierung des Schadstofftransports durch die Geosphäre sowie für die Berechnung der jährlichen Strahlenexposition eines menschlichen Individuums hinzu. Die letzte dokumentierte Version dieses Programms ist EMOS 5 [44].

Mit zunehmender Komplexität des Programms wurde das Konzept eines geschlossenen Rechenprogramms für die komplette langzeitsicherheitsanalytische Modellrechnung schließlich zu Gunsten eines modularen Konzepts aufgegeben. Seither steht die Bezeichnung EMOS nur noch als Paketname für eine Sammlung eigenständiger und voneinander unabhängig entwickelter Rechenprogramme für Teilbereiche eines Endlagers, so genannter Module, die über standardisierte Schnittstellen miteinander kommunizieren können und somit nach Bedarf kombinierbar sind [6]. Weiterhin umfasst das Paket einen Code zur Durchführung probabilistischer Analysen sowie Prä- und Postprozessoren für die Datenaufbereitung und Ergebnisdarstellung. Derzeit sind die folgenden Module und Hilfsprogramme vorhanden:

- REPOS 7: Nahbereichsmodul für ein salinares Endlager mit Baumstruktur
- LOPOS 4: Nahbereichsmodul für ein salinares Endlager mit Netzwerkstruktur
- GRAPOS 2: Nahbereichsmodul für ein Endlager für abgebrannte Brennelemente im Granit
- CHETLIN 3: Fernfeldmodul für einen Transportpfad mit linearer Sorption
- CHETNIS 2: Fernfeldmodul für einen Transportpfad mit nicht linearer Sorption
- CHETMAD 2: Fernfeldmodul für einen Transportpfad im klüftigen Medium mit linearer Sorption und Matrixdiffusion
- EXCON 2: Modul zur Berechnung der jährlichen Strahlenexposition in einer Standardbiosphäre auf Basis von Radionuklidkonzentrationen
- EXMAS 2: Modul zur Berechnung der jährlichen Strahlenexposition in einer Standardbiosphäre auf Basis von Massenströmen
- STATIST 2: Stichprobenziehung für probabilistische Analysen
- STATOUT 1: Zusammenstellung der relevanten Ausgabewerte bei probabilistischen Analysen
- EMOSRun: Grafische Oberfläche und Präprozessor zur Bearbeitung der Eingabedateien für diverse Module sowie zum Starten von Rechenläufen
- EMOSPlot: Postprozessor zur grafischen Darstellung von Ergebnissen
- EMOSPrint: Postprozessor für die Tabellenausgabe von Ergebnissen

- EMOSInv: Postprozessor zur grafischen Darstellung von Inventardaten
- EMOSTemp: Postprozessor zur grafischen Darstellung von Temperaturverläufen
- EMOSStatist: Postprozessor zur statistischen Auswertung probabilistischer Rechenläufe

Auf der Basis neuerer Forschungsergebnisse und technischer Anforderungen ist an verschiedenen Stellen die Notwendigkeit einer Überprüfung bzw. Aktualisierung der vorhandenen Rechen- und Hilfsprogramme deutlich geworden. In dem hier vorliegenden Bericht werden die Ergebnisse von Arbeiten dokumentiert, bei denen ausgewählte Einzelthemen untersucht wurden, für die ein Überprüfungs- oder Aktualisierungsbedarf festgestellt worden ist.

Das erste der behandelten Themen ist der kolloidgetragene Transport von Schadstoffen im Fernfeld. Schadstoffe können sich an den Kolloiden anlagern und mit diesen transportiert werden. In klüftigen Medien ist dieser Effekt von besonderer Bedeutung und kann unter Umständen eine deutliche Beschleunigung des Schadstofftransports bewirken. Durch Einbau in das Fernfeldmodul CHETMAD und exemplarische Anwendung war der Kolloideffekt zu bewerten. Diese Arbeiten wurden im Zusammenhang mit dem 5. Rahmenprogramm der EU im Projekt BENIPA durchgeführt, in dem von mehreren europäischen Organisationen modelltheoretische Untersuchungen der Eigenschaften der Bentonitbarriere vorgenommen wurden.

Ein weiteres Thema ist die Aufsättigung der Bentonitbarriere. Derartige Barrieren sind zur hydraulischen Isolierung und chemischen Pufferung in Endlagern für abgebrannte Brennelemente oder hochaktive Abfälle in Hartgesteins- und Tonformationen vorgesehen, z.B. im Rahmen des KBS-3-Konzepts in Schweden [42], der H-12-Studie in Japan [20] oder des Entsorgungsnachweises für den Opalinuston in der Schweiz [39]. In bisherigen Modellrechnungen wurde davon ausgegangen, dass die Bentonitbarriere von Beginn an mit Wasser gesättigt ist, und somit die Behälterkorrosion sofort beginnt. Der zeitliche Verlauf des Aufsättigungsvorgangs kann jedoch unter Umständen zu einer deutlichen Verzögerung der Behälterkorrosion führen und über den Einfluss des Wassergehalts auf die Wärmeleitfähigkeit auch die thermische Entwicklung beeinflussen. Eine genauere Untersuchung dieses Vorgangs im Hinblick auf die Integration dieses Effektes

in das Modul GRAPOS erschien daher angebracht. Die Arbeiten wurden auf der Grundlage von Zwischenergebnissen aus einem parallel laufenden Vorhaben [24] ebenfalls im Zusammenhang mit dem Projekt BENIPA durchgeführt.

Für die Berechnung der Schadstofffreisetzung aus dem Nahfeld eines Endlagers im Salinar steht das Modul LOPOS zur Verfügung. Darin wird die reale Grubengebäudestruktur in vereinfachter Form durch ein Netzwerk aus so genannten Segmenten mit rechteckigem oder rundem Querschnitt dargestellt. An der Schnittstelle zweier unterschiedlich großer Segmente ändert sich der Querschnitt dementsprechend unstetig. Zwar ist das Programm so konzipiert, dass die Volumenströme an solchen Stellen stetig bleiben, jedoch ist ein gewisser, durch diesen Effekt bedingter Fehler bezüglich des advektiven und konvektiven Schadstofftransports bei eindimensionaler Modellierung unvermeidbar. Ziel der dritten Untersuchung war es, diesen Fehler durch Vergleichsrechnungen mit dem dreidimensionalen Strömungsprogramm d³f abzuschätzen und, falls nötig, die Modellierung in LOPOS zu verbessern.

Die für sicherheitsanalytische Modelle verwendeten Daten sind mit teilweise erheblichen Unsicherheiten behaftet, die das Ergebnis einer Sicherheitsanalyse stark beeinträchtigen können. Ein international akzeptiertes Verfahren zum Umgang mit Unsicherheiten ist die probabilistische Analyse, bei der eine große Zahl von Einzelrechenläufen mit statistisch zu variierenden Eingangsdaten durchgeführt wird. Im Programmpaket EMOS ist mit den Modulen STATIST und STATOUT ein Rahmen enthalten, der den Ablauf einer derartigen probabilistischen Analyse steuert. Die statistische Auswertung der Ergebnisse hinsichtlich der Sensitivität gegenüber Schwankungen bestimmter Eingangsparameter wird dann mit dem Postprozessor EMOSStatist vorgenommen. Die bisher implementierten Routinen stammen etwa aus der Mitte der 1980er Jahre. Die hier beschriebenen Verfahren berücksichtigen neuere Entwicklungen auf dem Gebiet der probabilistischen Sensitivitätsanalyse und wurden mit Hilfe eines kommerziellen Prä- und Postprozessors sowie selbst entwickelten Schnittstellenprogrammen implementiert.

Für die wissenschaftliche Kommunikation, sowie um die Ergebnisse von Modellrechnungen der Öffentlichkeit zu vermitteln, gewinnen übersichtliche grafische und tabellarische Darstellungen zunehmend an Bedeutung. In Bezug auf das Programmpaket EMOS wurde ein Bedarf an Darstellungen identifiziert, die mit dem vorhandenen Instrumentarium

nicht effektiv zu produzieren sind. Dies ist zum Einen die Verteilung der Schadstoffmassen auf verschiedene Teilbereiche des Endlagersystems, wie Einlagerungsorte, Nahbereich, Fernfeld und Biosphäre, und zum Anderen eine schematische dreidimensionale Visualisierung der in den Rechnungen verwendeten Grubengebäudestruktur. In einem rein technisch orientierten Arbeitsschritt waren daher die vorhandenen Postprozessoren zu ergänzen.

Der vorliegende Bericht behandelt die genannten Einzelthemen ausführlich in jeweils einem Kapitel. Dabei steht die Darstellung wissenschaftlicher Arbeiten im Vordergrund, rein technische Anpassungen und Neuerungen werden lediglich in zusammengefasster Form dokumentiert.

2 Kolloidgetragener Schadstofftransport im Fernfeld

Die Modellierung des Schadstofftransports in der Geosphäre ist ein wichtiger Teil der Untersuchungen zur Langzeitsicherheit von Endlagern in tiefen geologischen Formationen. In klüftigen Gesteinen erfolgt der Schadstofftransport im Allgemeinen durch Advektion, Dispersion und Diffusion gelöster Schadstoffe im Kluftwasser. Eine Verzögerung des Schadstofftransports ergibt sich durch die Diffusion der Schadstoffe in die umgebende Gesteinsmatrix, die sogenannte Matrixdiffusion [19]. Diese Verzögerung wird noch verstärkt, wenn die Schadstoffe auf der Matrix sorbiert werden.

Es ist bekannt, dass im Kluftwasser befindliche Kolloide bei ausreichender Konzentration einen Einfluss auf den Transport der Schadstoffe haben können [48]. Als Kolloide werden Schwebestoffe im Grundwasser bezeichnet, die eine Größe von 1 nm bis zu 1 μm haben. Sie sind ein allgegenwärtiger Bestandteil in natürlichen wässrigen Systemen.

Die Kolloide können in einem sehr feinporigen, geklüfteten Gestein wie z.B. Granit aufgrund ihrer Größe nicht in die Matrixporen eindringen und werden somit nur im Kluftwasser transportiert. An den Kolloiden sorbierte Schadstoffe werden somit auch von der Matrixdiffusion ausgeschlossen. Da die Matrixdiffusion aber ein wichtiger, den Schadstofftransport retardierender Effekt ist, kann der Transport der an den Kolloiden sorbierten Schadstoffe unter Umständen beschleunigt werden, weshalb der kolloidgetragene Schadstofftransport Gegenstand der Betrachtungen in Langzeitsicherheitsanalysen ist.

Neuere Untersuchungen von Missana et al. [27] haben gezeigt, dass Bentonitbarrieren, wie sie bei der Konstruktion von Endlagern in Betracht gezogen werden, unter Umständen eine Quelle für Kolloide darstellen können. Diese Kolloide werden zwar im Nahfeld erzeugt, werden dann aber in das Fernfeld transportiert und können dort einen Einfluss auf den Schadstofftransport ausüben. Es wurden Laborversuche durchgeführt, die als repräsentativ für Bentonitbarrieren in geklüfteten Granitformationen angesehen werden. Aufgrund dieser Untersuchung muss die Entstehung von Bentonitkolloiden aus Bentonitbarrieren als wahrscheinlich angesehen werden.

Im Rahmen des „Colloid and Radionuclide Retardation Experiment“ (CRR) wurden zum Kolloidtransport Laborexperimente und In-situ-Versuche im Felslabor Grimsel durchgeführt [28]. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen lagen zum Zeitpunkt der hier durch-

geführten Arbeiten noch nicht vor. Auf die Ergebnisse dieser Untersuchungen und die damit verbundenen Auswirkungen auf die hier getroffenen Aussagen wird im Abschnitt 2.1.4 kurz eingegangen.

An der Grenzfläche des Bentonits zum Granit-Wirtsgestein kann die Erosion des Bentonits zu einer Konzentration von Kolloiden im Kluftwasser führen, die um mehrere Größenordnungen über der natürlichen Konzentration liegt. Die Kolloide werden dann mit dem Kluftwasser transportiert. Ebenfalls in das Kluftwasser freigesetzte Schadstoffe können an den Bentonitkolloiden sorbieren und werden mit diesen transportiert. In Abbildung 2.1 ist dieses System schematisch dargestellt.

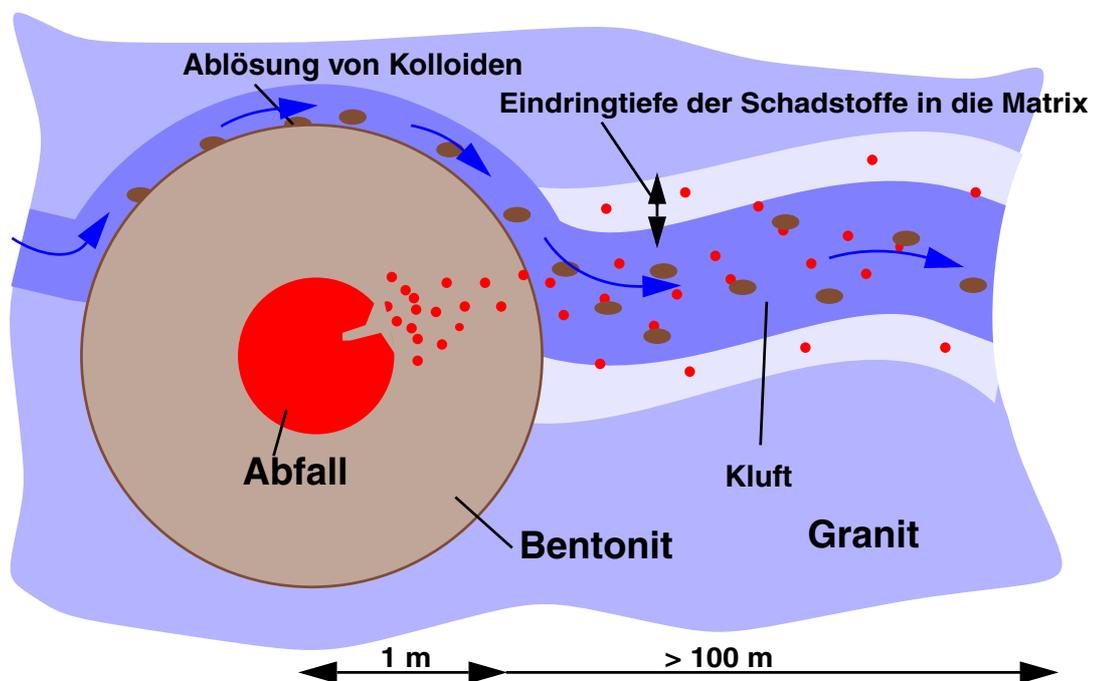


Abb. 2.1 Schematische Darstellung des kolloidgetragenen Schadstofftransports

Der Einfluss der Bentonitkolloide auf den Schadstofftransport wird im Folgenden untersucht. Die weiteren Betrachtungen beziehen sich, soweit nicht anders genannt, auf den Schadstofftransport aus einem Endlager in einer Granitformation, bei dem radioaktiver Abfall in kompaktierten Bentonitbarrieren eingeschlossen wird, wie es z.B. in der Studie „Spent Fuel Performance Assessment“ (SPA) [26] dargestellt wurde.

Es werden zunächst die wichtigsten Effekte und Prozesse beim kolloidgetragenen Schadstofftransport dargestellt. Daraufhin werden eine mathematische Beschreibung des kolloidgetragenen Schadstofftransports in geklüfteten Gesteinen hergeleitet und schließlich anhand von exemplarischen Rechnungen die Auswirkungen der einzelnen Effekte untersucht. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wird bei der mathematischen Beschreibung von Radionukliden als Schadstoffen ausgegangen.

2.1 Eigenschaften und Prozesse

In diesem Kapitel werden die Eigenschaften und Prozesse beim kolloidgetragenen Schadstofftransport diskutiert. Effekte, die die Konzentration der Schadstoffe beeinflussen, werden hier nicht näher aufgeschlüsselt, vielmehr wird die Schadstoffkonzentration als gegeben betrachtet.

Der kolloidgetragene Schadstofftransport hängt neben der genannten Schadstoffkonzentration von der Kolloidkonzentration, den Transportprozessen der Kolloide - Advektion, Diffusion und Dispersion - und dem Sorptionsverhalten der Schadstoffe an den Kolloiden sowie der Kolloide an der Kluftwand ab. Für die Sorption wird im folgenden von linearer Sorption nach dem K_d -Konzept ausgegangen, da für die nicht-lineare Behandlung sowohl der Sorption der Schadstoffe an den aus Bentonit freigesetzten Kolloiden als auch der Kolloide an der Kluftwand noch keine ausreichenden Daten vorliegen.

In einigen Literaturstellen wird diskutiert, ob ein Teil der Kolloide nicht nur durch Sorption an der Kluftoberfläche, sondern auch durch Filtration in der Kluft verbleibt [47]. Dies bedeutet, dass die filtrierte Kolloide nicht mehr zum Schadstofftransport beitragen können. Die Kolloidkonzentration nimmt also mit der Transportstrecke ab. Bisher sind allerdings nicht genügend Ergebnisse verfügbar, um diesen Effekt zu quantifizieren, deshalb wird er nicht weiter betrachtet.

Die mittlere Geschwindigkeit der Kolloide im Wasser einer Kluft entspricht in etwa der mittleren Fließgeschwindigkeit des Kluftwassers. Es kann allerdings zu einer geringen Beschleunigung der Kolloide gegenüber der mittleren Geschwindigkeit des Kluftwassers kommen, da sich die Kolloide bevorzugt in der Mitte der Kluft aufhalten, in der die lokale Abstandsgeschwindigkeit des Wassers größer ist als dessen mittlere Geschwindigkeit

[31]. Der Unterschied der lokalen Wassergeschwindigkeit zwischen Kluftmitte und Kluft-
rand und somit die Erhöhung der Geschwindigkeit der Kolloide aufgrund dieses Effekts
sollte aber in jedem Fall geringer als 30 % sein. Der Einfluss dieses Effekts auf den
Schadstofftransport wird durch eine Parametervariation im Rahmen der exemplarischen
Rechnungen in Abschnitt 2.3.1 untersucht.

2.1.1 Konzentration der Kolloide im Kluftwasser

Im folgenden Abschnitt werden die unterschiedlichen Quellen für Kolloide, die zur Ge-
samtkonzentration der Kolloide im Kluftwasser beitragen, näher untersucht. Es werden
drei Quellen für Kolloide diskutiert, die beim Schadstofftransport aus Endlagern eine
Rolle spielen: natürliche Grundwasserkolloide, Kolloide, die bei der Korrosion der Abfall-
matrix entstehen und Kolloide, die bei der Erosion der Bentonitbarriere gebildet werden.

2.1.1.1 Natürliche Grundwasserkolloide

Die Konzentration natürlicher Kolloide im Grundwasser weist sehr starke Variationen auf
und ist von der Struktur des Wirtsgesteins und des Deckgebirges abhängig. In Grund-
wässern in kristallinen Formationen werden in vielen Fällen nur geringe Konzentrationen
natürlicher Kolloide gefunden. So wurden z.B. in Grundwässern aus den Granitformatio-
nen in Grimsel, El Berrocal und Äspö Kolloidkonzentrationen von 0,1 µg/l bis zu 100 µg/l
gemessen [10, 25, 45].

2.1.1.2 Kolloide aus der Korrosion der Abfallmatrix

Als Folge der Korrosion der Abfallmatrix und der Abfallbehälter können unterschiedliche
Arten von Kolloiden entstehen. Beispiele dafür sind die Bildung smektitischer Kolloide bei
der Auflösung der Glasmatrix verglasteter, aufgearbeiteter Abfälle [5, 13] oder Uransilikat-
und Uranylhydrat-Kolloide beim Kontakt von Brennstäben mit Lösung [14].

Filtrationsexperimente mit für diese Gruppe als repräsentativ angesehenen CeO₂- und
Fe₂O₃-Kolloiden [15] zeigen, dass diese eine lediglich 5,7 mm dicke Schicht aus
kompaktiertem FEBEX-Bentonit nicht durchdringen konnten. Schäfer et al. [38] unter-

suchten außerdem die Stabilität von HFO- und ZrO_2 -Kolloiden in Grundwasser aus dem Felslabor Grimsel und in NaCl-Lösungen unterschiedlicher Ionenstärke, wie sie dem Porenwasser von FEBEX-Bentonit entsprechen. Nach deren Untersuchungen sind solche Kolloide im Porenwasser der Bentonit-Barriere nicht stabil.

Nach dem derzeitigen Stand der Forschung kann also angenommen werden, dass durch die Abfallmatrix gebildete Kolloide bei intakter Bentonitbarriere keine Rolle für den Schadstofftransport im Fernfeld spielen und sie werden im Folgenden nicht weiter betrachtet.

2.1.1.3 Kolloide aus der Erosion der Bentonitbarriere

An der Grenzschicht zwischen der Bentonitbarriere und der Wirtsgesteinsformation können sich Tonpartikel von dem Bentonitkörper ablösen und mit dem Kluftwasser transportiert werden. Dazu wurden Laboruntersuchungen von Pusch an MX-80-Bentonit [34] und von Missana et al. [15, 27] an FEBEX-Bentonit durchgeführt. Die dabei getroffenen Aussagen sind allerdings zum Teil widersprüchlich.

Die Untersuchungen von Pusch bestehen vor allem in theoretischen Modellrechnungen über die Stabilität der Tonmatrix, während von Missana et al. in Laborversuchen in Probekörpern die Granit-Bentonit-Grenzfläche simuliert wurde. Dabei ergeben sich zwei deutliche Diskrepanzen zwischen der theoretischen Vorhersage und den experimentellen Befund: laut Pusch erfolgt die Erosion des eingespannten Bentonitkörpers nur, wenn er äußeren Belastungen ausgesetzt wird. Diese können z.B. durch vorbeifließendes Wasser, Temperaturveränderungen oder einen Gasfluss durch den Bentonit erfolgen. Dem widersprechen eindeutig die Versuche von Missana et al. Dabei wurde im Wasser in einer Bentonit-Granit Grenzfläche auch ohne jeglichen Wasserfluss im Verlauf eines Monats eine beträchtliche Kolloidkonzentration gefunden.

Eine weitere Voraussage Puschs betrifft die Größe der abgelösten Partikel und deren Abhängigkeit von der Fließgeschwindigkeit des Wassers: mit steigender Fließgeschwindigkeit erhöht sich die Partikelzahl und verringert sich deren Größe. Laut Pusch sind die abgelösten Partikel bei einer Fließgeschwindigkeit des Wassers von $1 \cdot 10^{-6}$ m/s größer als $50 \mu\text{m}$ und bei einer Geschwindigkeit von $1 \cdot 10^{-4}$ m/s größer als $0,5 \mu\text{m}$. Diese Partikelgrößen sind jedoch so groß, dass dabei streng genommen gar nicht mehr von Kolloiden

gesprochen werden kann. Dies würde bedeuten, dass bei zu erwartenden Grundwassergeschwindigkeiten von wenigen Metern pro Jahr – was etwa 10^{-7} m/s entspricht – überhaupt keine Kolloide vom Bentonit abgelöst werden könnten, bzw. die entstehenden Partikel so groß sind, dass sie vom Transport in den engen Klüften ausgeschlossen werden.

Dem widersprechen wiederum die Messungen von Missana et al. Dort wurden sowohl bei dem Versuch ohne jeglichen Wasserfluss, wie auch bei geringen Fließgeschwindigkeiten Kolloide einer Größe von 200-300 nm gefunden. Die mittleren Partikelgrößen anderer Untersuchungen lagen zwischen 100 nm und 300 nm [32, 38].

Die offensichtlichen Gegensätze zwischen den Untersuchungen von Pusch und Missana lassen nur den Schluss zu, dass die theoretischen Berechnungen von Pusch nicht alle Effekte berücksichtigen, die zur Kolloidbildung an der Granit-Bentonit-Grenzfläche führen können. Dies könnten vor allem Gelbildungsprozesse sein, die auch ohne eine mechanische Belastung des Bentonits erfolgen. Deshalb wird im Folgenden auf die Ergebnisse aus den Experimenten von Missana et al. zurückgegriffen, die zunächst kurz zusammengefasst werden.

Missana et al. haben bei CIEMAT zwei unterschiedliche Arten von Experimenten durchgeführt, um die Granit-Bentonit-Grenzfläche zu simulieren, zum einen in quasi statischen und zum anderen in dynamischen Fließbedingungen. Dynamisch heißt dabei, dass es einen Wasserfluss entlang der Granit-Bentonit-Grenzfläche gibt, während bei quasi-statischen Bedingungen das Wasser stagniert. Die Untersuchungen wurden an Probekörpern durchgeführt, die aus Granit und Bentonit zusammengesetzt waren, und als Wasser wurde Grimsel-Grundwasser verwendet.

Die dynamischen Experimente zeigten, dass die Kolloidkonzentration mit steigender Fließgeschwindigkeit des Wassers steigt. Bei einem Volumenstrom von 175 ml/a wurde eine Gesamtkonzentration an Schwebstoffen mit einer Größe bis 3 μm von 200 mg/l gemessen, wobei der Anteil an Kolloiden mit einer Größe unter 450 nm bei 0,7 mg/l lag. Das heißt, dass im dynamischen Experiment vor allem größere Partikel erzeugt wurden.

Die Fließgeschwindigkeit des Wassers an der Granit-Bentonit-Grenzfläche wurde nicht direkt gemessen und kann nur ungefähr abgeschätzt werden. Der Probekörper bestand aus einem Zylinder von 150 mm Länge und 38 mm Durchmesser, der in Längsrichtung in je zwei Hälften aus Granit und Bentonit unterteilt war. Nimmt man an, dass die Kluft zwischen den beiden Halbzylindern aus den unterschiedlichen Materialien eine mittlere Weite von etwa 1 mm hat, so beträgt das gesamte Kluftvolumen 5,7 ml. Mit Hilfe des geringsten in den Experimenten verwendeten Volumenstroms von 61,3 ml/a ergibt sich, dass das Kluftvolumen 11 mal im Jahr ausgetauscht wurde, und die Fließgeschwindigkeit ergibt sich somit zu 1,65 m/a.

Demgegenüber stehen für die reale Endlagersituation abgeschätzte Abstandsgeschwindigkeiten in verschiedenen Langzeitsicherheitsanalysen: 2-150 m/a in der Studie Kristallin-I [31], 24 m/a in der Studie TILA-99 [46] und 4 m/a in der SPA-Studie [26]. Die in dem Experiment verwendeten Bedingungen stellen also einen realistischen Wert dar im Vergleich zu den in einem Endlager erwarteten Fließgeschwindigkeiten in der EDZ um ein Bohrloch, d.h. an der Grenzfläche zwischen dem Granitgestein und der den Endlagerbehälter umschließenden Bentonitbarriere.

Die mechanische Erosion des Bentonits spielt allerdings nicht die einzige Rolle bei der Entstehung der Bentonitkolloide, wie sich aus dem zweiten Typ der von Missana et al. durchgeführten Experimente ergibt. In quasi-statischen Bedingungen wurde das Wasser für einen Monat in der Kluft belassen und nach dieser Zeit die Konzentration der gebildeten Kolloide gemessen. Es wurde nach einem Monat eine Gesamtkonzentration an Schwebestoffen mit einer Größe bis 3 μm von 35 mg/l gemessen, wobei der Anteil an Kolloiden mit einer Größe unter 450 nm bei 8 mg/l lag. Im Vergleich zu dem Experiment mit dynamischen Bedingungen zeigt sich, dass im Experiment unter quasi-statischen Bedingungen ein viel größerer Anteil kleiner Kolloide gebildet wurde. Beim Kontakt der Bentonitoberfläche mit Wasser bildet sich ein Bentonit-Gel, aus dem dann Kolloide herausgelöst werden können. Die durch diesen Prozess gebildeten Kolloide werden offensichtlich in den theoretischen Betrachtungen von Pusch nicht richtig erfasst.

Die Abhängigkeit der Kolloidkonzentration von Parametern wie der Fließgeschwindigkeit des Wassers ist zurzeit nicht genau quantifizierbar, so dass zum heutigen Zeitpunkt von einer festen Kolloidkonzentration und Partikelgröße ausgegangen werden muss. Es

muss jedoch in einer realen Endlagersituation unter Umständen mit höheren Konzentrationen als den von Missana et al. gemessenen 0,5 ppm - 8 ppm gerechnet werden. Die Kontaktfläche des Wassers mit dem Bentonitkörper betrug bei den Experimenten von Missana et al. etwa 57 cm^2 und die Wassergeschwindigkeit wie oben abgeschätzt etwa 1,65 m/a. In der Realität ist also zu erwarten, dass sowohl die effektive Kontaktfläche wie auch die zu erwartende Wassergeschwindigkeit größer sind als in den Experimenten von Missana, so dass auch mit der Ablösung einer größeren Menge von Kolloiden zu rechnen ist. Weiterhin kann je nach Weite einer Kluft auch ein Anteil der Partikel mit einer Größe über 450 nm zum Transport der Schadstoffe beitragen. Die von Missana et al. gewählte Grenze von 450 nm ist eher willkürlich, und leider gibt es keine weiteren Angaben zur genauen Größenverteilung der Partikel. Es ist aber bei einer größeren Kluftweite - sie wurde z.B. in der SPA-Studie zu 0,8 mm angenommen - durchaus zu erwarten, dass auch die größeren Partikel im Mikrometerbereich eine Rolle spielen. Da außer den von Missana et al. durchgeführten keine weiteren Experimente bekannt sind und daher auch keine anderen Werte vorliegen, werden diese für die weiteren Betrachtungen zugrunde gelegt.

In Experimenten von Gardiner et al. [15] und Schäfer et al. [38] waren Bentonitkolloid-Konzentrationen von 50 g/l in granitischem Grimselwasser stabil. Für Bentonitkolloide in einem Wasser mit einer hohen Ionenstärke, wie sie dem Porenwasser des Bentonits selbst entspricht, wurden hohe Wachstumsraten festgestellt, woraus folgt, dass die Kolloide nicht stabil sind. Dies zeigt, dass das chemische Milieu des Wassers das Hauptkriterium für die Existenz von Bentonitkolloiden darstellt.

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass bei der Erosion des Bentonitkörpers Kolloide entstehen und bei geringer Ionenstärke des Kluftwassers auch über längere Zeit im Grundwasser stabil sein können. Dies führt zu einer Veränderung im Schadstofftransport, weshalb der Einfluss der Kolloide auf die Modellierung des Schadstofftransports hier weiter untersucht werden soll. Die erwarteten und gemessenen Konzentrationen an Bentonitkolloiden liegen um viele Größenordnungen über der Konzentration natürlicher Kolloide im Grundwasser. Die Konzentration natürlicher Kolloide wird daher in den weiteren Betrachtungen vernachlässigt.

2.1.2 Sorption der Schadstoffe an den Bentonitkolloiden

Es gibt bisher nur vereinzelte Messungen von Verteilungskoeffizienten von Schadstoffen an Bentonitkolloiden. Bei Gardiner et al. [15] liegen die gemessenen K_d -Werte für Eu, Th und U zwischen 28 ml/g bei einer Kolloidkonzentration von 10 g/l und 15,2 ml/g bei einer Kolloidkonzentration von 50 g/l. Dabei wurden zwischen 20 % und 43 % der Schadstoffe auf den Bentonitkolloiden sorbiert. Generell besteht bei den Sorptionsversuchen am FEBEX-Bentonit die Tendenz, dass der K_d -Wert für hohe Bentonitkonzentrationen sinkt. Die chemischen Bedingungen, unter denen diese Versuche durchgeführt wurden, sind allerdings nicht bekannt. Ergebnisse genauerer Untersuchungen zu der Sorption der Schadstoffe an Bentonitkolloiden stehen noch nicht zur Verfügung, so dass auf die existierenden Verteilungskoeffizienten für die Sorption an kompaktiertem Bentonit zurückgegriffen werden muss.

2.1.3 Sorption der Bentonitkolloide an der Kluftoberfläche

Die Konzentration der Bentonitkolloide im Kluftwasser wird durch die Sorption der Kolloide an den Kluftwänden verringert. Es ist zu erwarten, dass dieser Prozess von der Größe der Kolloide abhängt.

In Untersuchungen von Vilks & Baik [48] wurde granitisches Grundwasser mit einer Bentonitkolloid-Konzentration von etwa 3 g/l in eine Kluft eines Granitquaders injiziert. Nach dem Durchfließen des Granitquaders auf einer Länge von etwa 1 m war der Kolloidgehalt auf 1,6 % des ursprünglichen Wertes abgesunken. Die restlichen 98,4 % wurden dieser Untersuchung zufolge an den Kluftwänden sorbiert. Allerdings sind die genauen chemischen Bedingungen im Kluftsystem nicht dokumentiert. Es ist anzunehmen, dass die Kolloide aufgrund der chemischen Bedingungen immobilisiert wurden. Eine andere Erklärung wäre, dass die Kolloide bei diesem Experiment nicht auf dem erwarteten Weg durch das Kluftnetz des Granitquaders transportiert wurden und somit an einer nicht beobachteten Stelle das Kluftsystem verlassen haben. Untersuchungen an einem anderen Kluftsystem mit Siliciumkolloiden [47] ergaben eine Rückgewinnungsrate von etwa 80 %, was in etwa der Rückgewinnungsrate für einen gleichzeitig eingesetzten konservativen Tracer entsprach.

Der Anteil der in der Kluft sorbierten Bentonitkolloide ist bei der Berechnung des kolloidgetragenen Schadstofftransports ein wichtiger, aber bisher nur ungenügend untersuchter Parameter. Es ist auch zu untersuchen, ob bei einer starken Sorption der Bentonitkolloide an der Kluftoberfläche unter Umständen sogar als Folge eine Retardation des Schadstofftransports eintreten kann.

2.1.4 Zusammenfassung

In den vorangegangenen Abschnitten wurden Informationen über die Quellen von Kolloiden im Fernfeld von Endlagern in Granitformationen zusammengestellt. Eine Reihe von Bedingungen müssen erfüllt sein, damit es einen kolloidgetragenen Schadstofftransport gibt: Es müssen mobile Kolloide vorhanden sein, die auch über längere Zeit im Grundwasser stabil sind und es müssen die Schadstoffe auf den Kolloiden sorbieren können.

Die Erosion der Bentonitbarriere in Endlagern in Granitformationen führt zur Bildung von Bentonitkolloiden im Kluftwasser. Unter bestimmten Voraussetzungen des chemischen Milieus, vor allem einer geringen Ionenstärke des Kluftwassers, sind diese Kolloide auch über große Zeiträume im Kluftwasser des Fernfelds stabil. Diese Voraussetzungen für das chemische Milieu sind z.B. im Felslabor Grimsel gegeben. Die dann zu erwartende Konzentration der Bentonitkolloide liegt um Größenordnungen über der natürlichen Kolloidkonzentration im granitischen Grundwasser. Die Kolloide, welche im Abfall selbst gebildet werden, können aufgrund der Filtration in der Bentonitbarriere vernachlässigt werden.

Im Rahmen des „Colloid and Radionuclide Retardation Experiment“ (CRR) wurden die Bildung und der Transport von Bentonitkolloiden in einer Granitformation durch Labor- und In-situ-Experimente untersucht [16, 29]. Dabei wurden die im Vorangegangenen beschriebenen Prozesse bestätigt. Die an der Bentonit-Granit-Grenzfläche gebildeten Bentonitkolloide zeigten eine hohe Stabilität über einen Zeitraum von 5 Monaten. Bei einem Transportexperiment konnten 100 % der in eine Kluft injizierten Kolloide wiedergewonnen werden. Es ist somit von keiner eingeschränkten Mobilität der Bentonitkolloide auszugehen. Der Einfluss der Bentonitkolloide auf den Schadstofftransport konnte erstmals direkt im In-situ-Experiment nachgewiesen werden. So wurde eine Beschleunigung der an den Bentonitkolloiden sorbierten Aktiniden Am und Pu gegenüber dem konserva-

tiven Tracer Iod festgestellt. Die im Rahmen des CRR durchgeführten Untersuchungen zeigen, dass der Einfluss der Bentonitkolloide auf den Schadstofftransport in Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager in Granitformationen betrachtet werden muss.

Als Referenzwert für die Konzentration bentonitischer Kolloide werden für die späteren Betrachtungen 10 ppm angenommen. Der Term Kolloid wird im Folgenden synonym für jene Kolloide verwendet, die an der Bentonit-Granit-Grenzfläche gebildet werden.

2.2 Mathematische Beschreibung des kolloidgetragenen Schadstofftransports

2.2.1 Doppelporositätsmodell

Die Modellierung des Stofftransports in Kluftwasserleitern unter der Berücksichtigung der Matrixdiffusion, linearer Sorption und des radioaktiven Zerfall lässt sich mit Hilfe eines sogenannten Doppelporositätsmodells behandeln. Aus den Massenbilanzgleichungen für das Doppelporositätsmodell können die Transportgleichungen abgeleitet werden. Die Herleitung der Transportgleichungen ist aus der Literatur bekannt [19], hier soll lediglich das Ergebnis für die Transportgleichungen gezeigt werden. Der Index i bezieht sich im Folgenden auf das jeweilige Radionuklid, während die Indizes f und p anzeigen, ob sich die Variable auf die Kluft oder den Porenraum bezieht. In der Kluft gilt

$$\frac{\partial}{\partial t} R_f^i c_f^i = D \frac{\partial^2 c_f^i}{\partial z^2} - v_f \frac{\partial c_f^i}{\partial z} + \frac{1}{b} n_p D_p \frac{\partial c_p^i}{\partial y} \Big|_{|y|=b} - \lambda^i R_f^i c_f^i + \lambda^{i-1} R_f^{i-1} c_f^{i-1} \quad (2.1)$$

Es sind:

c	Konzentration des Nuklids	[mol/m ³]
R	Retardationsparameter	[-]
D	Diffusionskonstante in der Kluft	[m ² /s]
n	Porosität	[-]

v_f	Wassergeschwindigkeit in der Kluft	[m/s]
λ	Zerfallskonstante des Nuklids	[1/s]
b	Kluftweite	[m]

Und im Porenraum gilt

$$\left. \frac{\partial}{\partial t} R_p^i c_p^i = D_p \frac{\partial^2 c_p^i}{\partial y^2} \right|_{|y| \leq y_m} - \lambda^i R_p^i c_p^i + \lambda^{i-1} R_p^{i-1} c_p^{i-1}. \quad (2.2)$$

mit den Rückhalteparametern

$$R_p^i = 1 + \frac{1 - n_p}{n_p} \rho_p K_d \quad \text{und} \quad (2.3)$$

$$R_f^i = 1 \quad \text{sowie} \quad (2.4)$$

mit den zusätzlichen Variablen:

K_d	Verteilungskoeffizient für die Sorption an der Matrix	[m ³ /kg]
ρ	Dichte des Gesteins	[kg/m ³]
y_m	Eindringtiefe in die Matrix	[m]

Gleichung 2.4 bedeutet, dass die Sorption der Nuklide in der Kluft vernachlässigt wird.

2.2.2 Berücksichtigung des kolloidgetragenen Transports

Die Transportgleichungen unter Berücksichtigung des an Kolloide gebundenen Schadstofftransports werden entsprechend Smith [41] hergeleitet. Die hier aufgeführten Gleichungen berücksichtigen zusätzlich den dort nicht berücksichtigten Quellterm durch den radioaktiven Zerfall eines Mutternuklids.

Die Massenbilanzgleichungen lauten in der Kluft

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left[(c_f^i + c_c^i) + \frac{S_c^i}{b} \right] &= D \frac{\partial^2 c_f^i}{\partial z^2} + D_c \frac{\partial^2 c_c^i}{\partial z^2} - v_f \frac{\partial c_f^i}{\partial z} - v_c \frac{\partial c_c^i}{\partial z} \\ &+ \frac{1}{b} n_p D_p \frac{\partial c_p^i}{\partial y} \Big|_{y=b} - \lambda_i \left[(c_f^i + c_c^i) + \frac{S_c^i}{b} \right] \\ &+ \lambda_{i-1} \left[(c_f^{i-1} + c_c^{i-1}) + \frac{S_c^{i-1}}{b} \right] \end{aligned} \quad (2.5)$$

und in der Porenmatrix

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} [n_p c_p^i + (1 - n_p) \rho_p S_p^i] &= n_p D_p \frac{\partial^2 c_p^i}{\partial y^2} \\ &- \lambda_i [n_p c_p^i + (1 - n_p) \rho_p S_p^i] + \lambda_{i-1} [n_p c_p^{i-1} + (1 - n_p) \rho_p S_p^{i-1}] \end{aligned} \quad (2.6)$$

mit den Konzentrationen:

c_f	freie Nuklide in der Kluft	[mol/m ³]
c_p	freie Nuklide in der Matrix	[mol/m ³]
c_c	Nuklide, die an mobilen Kolloiden sorbiert sind	[mol/m ³]
S_c	Nuklide, die an immobilen Kolloiden sorbiert sind	[mol/m ²]
S_p	Nuklide, die an der Matrix sorbiert sind	[mol/kg]

Da die Peclet-Zahl für gelöste Nuklide gleich der für an mobilen Kolloiden sorbierte Nuklide ist, gilt

$$\frac{D}{D_c} = \frac{v_f}{v_c} \quad (2.7)$$

mit:

D_c	Diffusionskoeffizient der Kolloide	$[m^2/s]$
v_c	Geschwindigkeit der Kolloide	$[m/s]$

Im stationären Zustand sei weiterhin das Verhältnis zwischen immobilen Kolloiden und mobilen, an der Wand sorbierten Kolloiden konstant. Da die Nuklide nicht zwischen immobilen und mobilen Kolloiden unterscheiden, ist das Verhältnis der an immobilen Kolloiden sorbierten Nuklide S_c^i zu den an mobilen Kolloiden sorbierten Nukliden c_c gleich dem Verhältnis zwischen immobilen Kolloiden und mobilen Kolloiden und somit ebenfalls konstant

$$\frac{S_c^i}{c_c} = K_a. \quad (2.8)$$

Setzt man ein instantanes Sorptionsgleichgewicht voraus, so kann man die beiden folgenden Sorptionsisothermen für die Sorption der Nuklide an den Kolloiden und der Matrixoberfläche definieren

$$c_c = g(c_f) \quad (2.9)$$

$$S_p = f(c_p). \quad (2.10)$$

Setzt man die Gleichungen 2.7, 2.8 und 2.9 in Gleichung 2.5 und Gleichung 2.10 in Gleichung 2.6 ein, so erhält man die Transportgleichungen

$$\begin{aligned}
\frac{\partial}{\partial t} R_f(c_f) c_f^i &= DT(c_f) \frac{\partial^2 c_f^i}{\partial z^2} + DU(c_f) \left(\frac{\partial c_f^i}{\partial z} \right)^2 \\
&\quad - v_f T(c_f) \frac{\partial c_f^i}{\partial z} + \frac{1}{b} n_p D_p \frac{\partial c_p^i}{\partial y} \Big|_{|y|=b} \\
&\quad - \lambda^i \tilde{R}_f^i(c_f) c_f^i + \lambda^{i-1} \tilde{R}_f^{i-1}(c_f) c_f^{i-1}
\end{aligned} \tag{2.11}$$

und

$$\frac{\partial}{\partial t} R_p(c_p) c_p^i = D_p \frac{\partial^2 c_p^i}{\partial y^2} - \lambda^i \tilde{R}_p^i(c_p) c_p^i + \lambda^{i-1} \tilde{R}_p^{i-1}(c_p) c_p^{i-1}, \tag{2.12}$$

wobei die folgenden Abkürzungen für die folgenden sechs konzentrationsabhängigen Funktionen eingeführt wurden

$$R_f(c_f) = 1 + \frac{dg(c_f)}{dc_f} \left(1 + \frac{K_a}{b} \right) \tag{2.13}$$

$$\tilde{R}_f(c_f) = 1 + \frac{g(c_f)}{c_f} \left(1 + \frac{K_a}{b} \right) \tag{2.14}$$

$$T(c_f) = 1 + \frac{v_c dg(c_f)}{v_f dc_f} \tag{2.15}$$

$$U(c_f) = \frac{v_c d^2 g(c_f)}{v_f dc_f^2} \tag{2.16}$$

$$R_p(c_p) = 1 + \frac{1 - n_p}{n_p} \rho_p \frac{df(c_p)}{dc_p} \tag{2.17}$$

$$\tilde{R}_p(c_p) = 1 + \frac{1 - n_p}{n_p} \rho_p \frac{f(c_p)}{c_p}. \quad (2.18)$$

Für den Fall von linearer Sorption kann die Sorption auf den Kolloiden und der Matrixoberfläche durch die beiden Isothermen

$$g(c_f) = \chi K_c c_f \text{ und} \quad (2.19)$$

$$f(c_p) = K_d c_p \quad (2.20)$$

beschrieben werden mit:

K_d	Verteilungskoeffizient der Nuklide an der Matrix	$[\text{m}^3/\text{kg}]$
K_c	Verteilungskoeffizient der Nuklide an den Kolloiden	$[\text{m}^3/\text{kg}]$
χ	Konzentration der Kolloide	$[\text{kg}/\text{m}^3]$

Die Gleichungen 2.13 bis 2.18 ergeben sich somit zu

$$R_f(c_f) = \tilde{R}_f(c_f) = 1 + \chi K_c \left(1 + \frac{K_a}{b}\right) \quad (2.21)$$

$$T(c_f) = 1 + \frac{v_c}{v_f} \chi K_c \quad (2.22)$$

$$U(c_f) = 0 \quad (2.23)$$

$$R_p(c_p) = \tilde{R}_p(c_p) = 1 + \frac{1 - n_p}{n_p} \rho_d K_d. \quad (2.24)$$

Man beachte, dass diese Gleichungen konzentrationsunabhängig sind. Setzt man diese Gleichungen wiederum in die Transportgleichungen 2.11 und 2.12 ein, so erhält man als abschließende Transportgleichungen unter den genannten Bedingungen:

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \hat{R}_f^i c_f^i &= \hat{D}^i \frac{\partial^2 c_f^i}{\partial z^2} - \hat{v}_f^i \frac{\partial c_f^i}{\partial z} + \frac{1}{b} n_p D_p \frac{\partial c_p^i}{\partial y} \Big|_{|y|=b} \\ &\quad - \lambda^i \hat{R}_f^i c_f^i + \lambda^{i-1} \hat{R}_f^{i-1} c_f^{i-1} \end{aligned} \quad (2.25)$$

und im Porenraum:

$$\frac{\partial}{\partial t} R_p^i c_p^i = D_p \frac{\partial^2 c_p^i}{\partial y^2} \Big|_{|y| \leq y_m} - \lambda^i R_p^i c_p^i + \lambda^{i-1} R_p^{i-1} c_p^{i-1} \quad (2.26)$$

mit den Größen:

$$\hat{v}_f^i = v_f \left(1 + \frac{v_c}{v_f} \chi K_c^i \right) \quad (2.27)$$

$$\hat{D}^i = D \left(1 + \frac{v_c}{v_f} \chi K_c^i \right) \text{ und} \quad (2.28)$$

$$\hat{R}_f^i = 1 + \chi K_c^i \left(1 + \frac{K_a}{b} \right) \quad (2.29)$$

$$R_p^i = 1 + \frac{1 - n_p}{n_p} \rho K_d \quad (2.30)$$

Die Transportgleichungen 2.25 und 2.26 für den kolloidgetragenen Schadstofftransport können in die einfacheren Transportgleichungen 2.1 und 2.2 des Schadstofftransports unter Berücksichtigung nur der Doppelporosität überführt werden. Dazu substituiert man die Fließgeschwindigkeit v_f , den Dispersionskoeffizienten D und den Retardationsfaktor R_f mit den neuen Größen aus den Gleichungen 2.27 bis 2.29. So kann mit Hilfe eines vorhandenen Transportmodells, welches auf den Gleichungen 2.1 bis 2.4 basiert, auch der kolloidbeeinflusste Schadstofftransport beschrieben werden. Der Rückhalteparameter in der Porenmatrix R_p bleibt unverändert. Bei der Verwendung nicht-linearer Sorption ist eine einfache Substitution allerdings nicht mehr möglich.

Als neue Eingangsgrößen für die Modellierung des Schadstofftransports mit Berücksichtigung der Kolloide im Gegensatz zu dem ohne Kolloide werden die Verteilungskoeffizienten für die Sorption der Schadstoffe an den Kolloiden K_c , die Sorption der Kolloide an der Kluftwand K_a sowie die Geschwindigkeit v_c und Konzentration χ der Kolloide benötigt.

Einen noch einfacheren Zusammenhang zwischen dem kolloidgetragenen Schadstofftransport und dem im doppelporösen Medium ohne Betrachtung der Kolloide erhält man, wenn man zum einen die Sorption der Kolloide an der Kluftwand vernachlässigt und zum anderen die Kolloidgeschwindigkeit gleich der mittleren Fließgeschwindigkeit des Wassers setzt. Dann gilt erstens, dass $K_a = 0$ und zweitens, dass $v_c = v_f$ ist. Der R_f -Wert aus Gleichung 2.29 ist unter diesen Annahmen gleich dem Term in den Klammern der Gleichungen 2.27 und 2.28. Gleichung 2.25 lässt sich somit durch

$$\hat{R}_f^i = (1 + \chi K_c^i) \quad (2.31)$$

dividieren und man erhält

$$\frac{\partial c_f^i}{\partial t} = D \frac{\partial^2 c_f^i}{\partial z^2} - v \frac{\partial c_f^i}{\partial z} + \frac{1}{b} n_p \frac{D_p}{\hat{R}_f^i} \frac{\partial c_p^i}{\partial y} \Big|_{|y|=b} - \lambda^i c_f^i + \lambda^{i-1} c_f^{i-1} \quad (2.32)$$

Dies entspricht bis auf eine Korrektur für den Diffusionskoeffizienten im Matrixdiffusionsterm um \hat{R}_f^i exakt der Gleichung 2.1 für den Transport ohne Kolloide. Bei Vernachlässigung der Sorption von Kolloiden an der Kluftwand und der Beschleunigung der Kolloide gegenüber der mittleren Wassergeschwindigkeit kann man den Einfluss der Kolloide auf den Schadstofftransport also auch auf eine Reduktion der Matrixdiffusion zurückführen. Dies ist plausibel, da durch die Sorption der Schadstoffe an den Kolloiden die Konzentration der freien Schadstoffe im Kluftwasser verringert wird. Dadurch verringert sich auch der Konzentrationsgradient zwischen Kluftwasser und Matrix und somit der Einfluss der Matrixdiffusion selbst.

2.3 Modellrechnungen

Im folgenden Kapitel wird anhand verschiedener Modellrechnungen der Einfluss der Kolloide auf den Schadstofftransport überprüft. Im ersten Abschnitt wird in einer generischen Prinzipstudie ein einzelnes Radionuklid mit einer definierten Freisetzungsrate aus dem Nahfeld betrachtet. Anhand einer Parametervariation der Eingangsparameter wird die Relevanz der Parameter für den Transport im Fernfeld untersucht.

In dem nachfolgenden Abschnitt wird dann die Relevanz des kolloidgetragenen Transports für die Langzeitsicherheit eines Endlagers untersucht. Diese Untersuchungen wurden im Rahmen des Projektes BENIPA [1] durchgeführt. Der in diesem Projekt definierte Referenzfall für die Bohrlochlagerung im Granit entspricht jenem für Olkiluoto aus der finnischen Langzeitsicherheitsanalyse TILA-99 [46].

Die Rechnungen werden mit dem für kolloidgetragenen Schadstofftransport modifizierten Code CHETMAD durchgeführt.

2.3.1 Prinzipstudie

In diesem Abschnitt werden die prinzipiellen Auswirkungen der Kolloide auf den Schadstofftransport untersucht. Dazu wird der Schadstofftransport im Fernfeld bei der Anwesenheit von Kolloiden berechnet. Das zu Grunde liegende Modell ist in Abbildung 2.1 dargestellt. Für diese Modellrechnungen wird zur Vereinfachung lediglich die Freisetzung eines einzelnen Radionuklids betrachtet.

Für den Nuklidstrom aus dem Nahfeld werden zwei Varianten betrachtet. Die Quelle liefert in beiden Varianten jeweils einen konstanten Strom von 10^5 Bq/a. Im ersten Fall hält der Nuklidstrom aus dem Nahfeld über die gesamte Modellzeit von 10^7 Jahren an, während er im zweiten Fall auf 100 Jahre zeitlich begrenzt ist.

Die geometrischen Daten des Fernfelds, wie die Kluftweite und -häufigkeit oder die Gebietsgröße, entsprechen jenen der SPA-Studie [26]. Die Länge des Transportweges beträgt dabei 200 m und die Verweildauer des Wassers beträgt 46 Jahre. Die wichtigsten Daten des Fernfeldes sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst.

Tab. 2.1 Fernfelddaten in der Prinzipstudie (basierend auf SPA)

Parameter		Wert
Länge des Transportwegs	[m]	200
Darcy-Geschwindigkeit des Wassers in der Kluft	[m/a]	$3,5 \cdot 10^{-5}$
Dispersionslänge	[m]	20
Verweildauer des Wassers	[a]	46
Öffnungsweite der Kluft	[m]	$8 \cdot 10^{-4}$
Spurlänge der Kluft	[m/m ²]	$1 \cdot 10^{-2}$
Porosität der Granitformation	[-]	$5 \cdot 10^{-3}$
Diffusionskoeffizient in der Matrix	[m ² /a]	$1 \cdot 10^{-3}$

Der Verteilungskoeffizient für die Sorption der Nuklide an der Gesteinsmatrix K_d wird in den Rechnungen zwischen den beiden Werten $1 \cdot 10^{-4}$ m³/kg und $1 \cdot 10^{-1}$ m³/kg variiert. Wie aus der mathematischen Beschreibung in den Gleichungen 2.27 bis 2.29 zu erkennen ist, ist der entscheidende Parameter, der den Einfluss der Kolloide auf den Schadstofftransport parametrisiert, das Produkt aus Kolloidkonzentration χ und dem Verteilungskoeffizienten der Schadstoffe an den Kolloiden K_c . Für die Prinzipstudie wird der Parameter k durch

$$k = \chi \cdot K_c \quad (2.33)$$

definiert. Bei den Rechnungen wird dann dieser Parameter k variiert und angegeben. Ein typischer K_c -Wert für ein stark sorbierendes Nuklid beträgt $K_c = 5 \text{ m}^3/\text{kg}$. Die Kolloidkonzentration wird zwischen drei Werten variiert: ohne Kolloide $\chi = 0 \text{ kg/m}^3$, $\chi = 0,02 \text{ kg/m}^3$ und $\chi = 0,2 \text{ kg/m}^3$. Zum Vergleich: die von Missana et al. [27] gemessenen Kolloidkonzentrationen betragen maximal $\chi = 0,01 \text{ kg/m}^3$. Für den dimensionslosen Parameter k werden somit die drei Werte 0, 0,1 und 1 angenommen. Als Orientierung für die Überprüfung der sicherheitstechnischen Relevanz des kolloidgetragenen Schadstofftransports sollen die Testrechnungen für $k = 0,1$ als Referenz dienen.

2.3.1.1 Zeitlich unbegrenzte und konstante Freisetzung aus dem Nahfeld

In diesem Abschnitt wird ein langlebiges Radionuklid betrachtet, das über die gesamte Modellzeit von 10^7 Jahren mit konstanter Rate aus dem Nahfeld freigesetzt wird. Langlebig soll dabei bedeuten, dass die Halbwertszeit des Radionuklids größer ist als der betrachtete Zeitraum, so dass die Effekte durch den radioaktiven Zerfall des Radionuklids vernachlässigt werden können. Die Fließgeschwindigkeit der Kolloide wurde gleich der Darcy-Geschwindigkeit des Wassers angenommen, die Sorption der Kolloide an der Kluftwand wurde vernachlässigt. Die Farben der Kurven repräsentieren unterschiedliche K_d -Werte, während die Linienstile für die unterschiedlichen Kolloidkonzentrationen stehen. Abbildung 2.2 zeigt den zeitlichen Verlauf des Nuklidstroms aus dem Fernfeld in die Biosphäre.

Alle Kurven erreichen im stationären Zustand die Freisetzungsrates aus dem Nahfeld. Der Einfluss des radioaktiven Zerfalls über die Transportstrecke ist wie erwartet nicht signifikant. Die Transportzeit durch das Fernfeld vergrößert sich mit zunehmendem Einfluss der Sorption des Radionuklids an der Matrix, also größerem Verteilungskoeffizienten K_d .

Mit größerem k -Wert, also zunehmender Kolloidkonzentration, nimmt die Transportzeit ab. Die Kolloide bewirken also eine Beschleunigung des Schadstofftransports, die direkt von der Kolloidkonzentration abhängig ist. Dieses Ergebnis lässt sich unter den für diese Rechnung getroffenen Annahmen mit Hilfe der mathematischen Herleitung plausibel machen: nach Gleichung 2.31 und der Definition von k ist der Rückhalteparameter $R_f = 1 + k$. Eine Erhöhung des k -Wertes von 0 auf 1 bedeutet somit eine Vergrößerung des Rückhalteparameters um einen Faktor zwei. Nach Gleichung 2.32 bedeutet dies weiterhin,

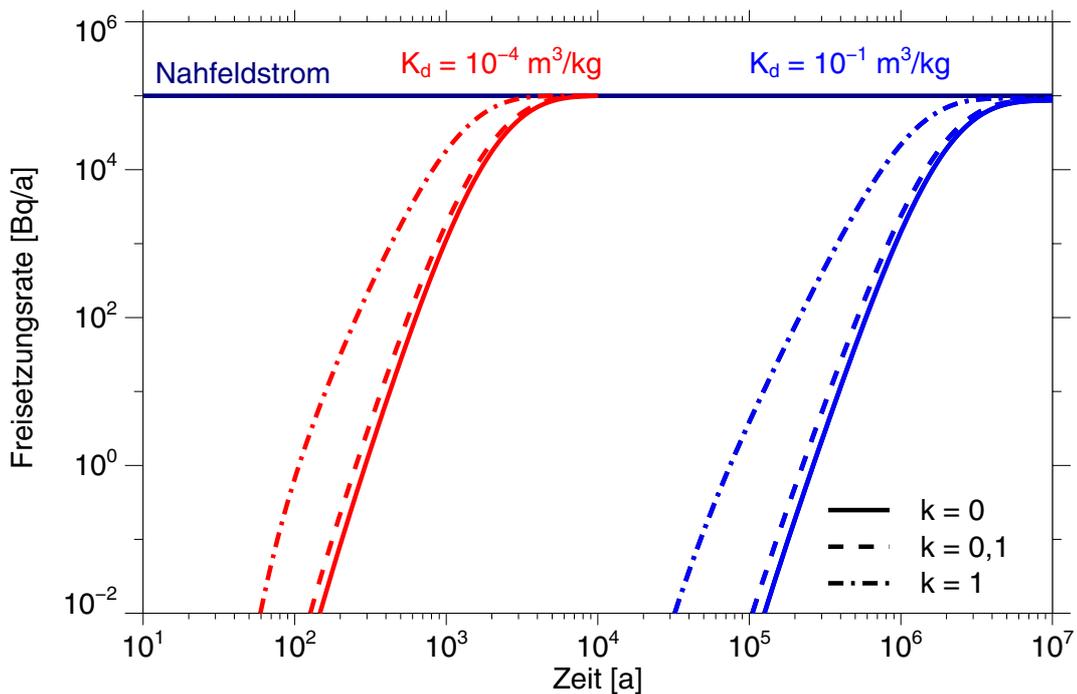


Abb. 2.2 Zeitliche Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld für ein langlebiges Radionuklid bei einem zeitlich konstanten Strom aus dem Nahfeld.

dass der Einfluss der Kolloide auf den Schadstofftransport bei einem k -Wert von 1 die gleichen Auswirkungen hat, wie der Schadstofftransport ohne Kolloide, aber mit einem nur halb so großen Diffusionskoeffizienten in der Porenmatrix. Die Verringerung des Diffusionskoeffizienten in der Porenmatrix verringert auch gleichzeitig die Rückhaltung in der Porenmatrix, wodurch sich der Schadstofftransport beschleunigt.

2.3.1.2 Zeitlich begrenzte Freisetzung aus dem Nahfeld

In diesem Abschnitt wird ein langlebiges Radionuklid mit einer auf einhundert Jahre zeitlich begrenzten Freisetzung aus dem Nahfeld betrachtet. Alle anderen Parameter wurden wie im vorangegangenen Abschnitt gewählt. Abbildung 2.3 zeigt den zeitlichen Verlauf des Nuklidstroms aus dem Fernfeld in die Biosphäre. Die Freisetzungsrates aus dem Fernfeld steigt zunächst mit der Zeit an. Bei dem Fall mit geringer Sorption des Radionuklids an der Porenmatrix - rote Kurven - entspricht der Anstieg weitgehend dem im vorangehenden Abschnitt betrachteten Fall der zeitlich konstanten Quelle (Abbildung 2.2).

Aufgrund des Versiegens der Quelle im Nahfeld erreicht der Strom aus dem Fernfeld ein Maximum und geht dann wieder zurück. Die weiteren Betrachtungen beziehen sich vor allem auf die Lage und die Höhe dieses Maximums der Freisetzungsrates.

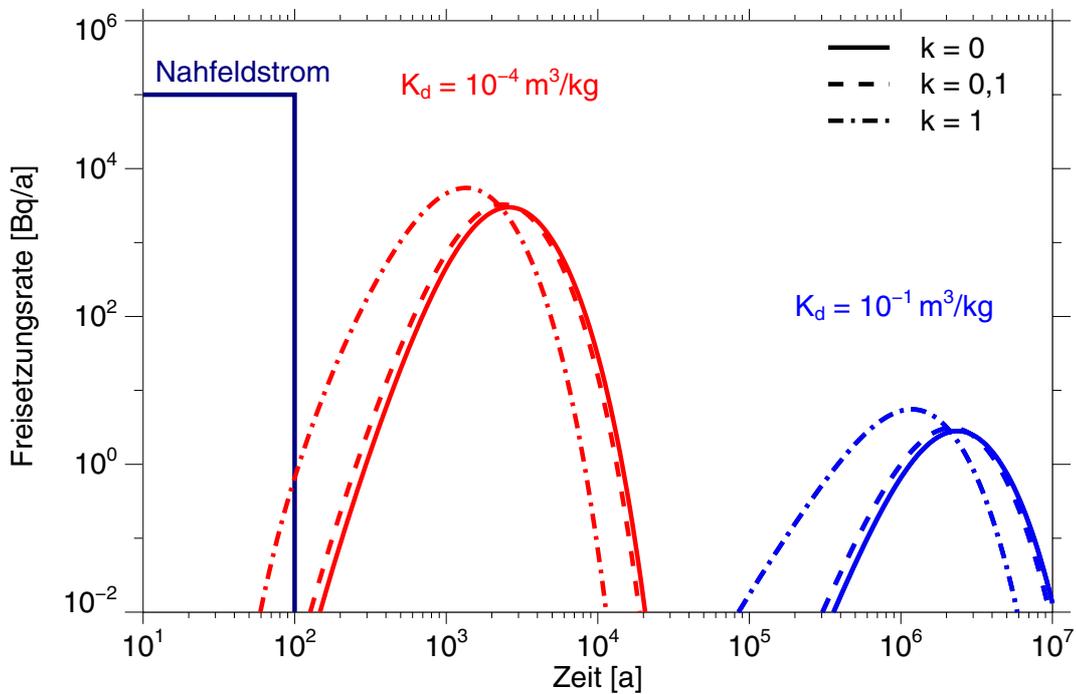


Abb. 2.3 Zeitliche Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld bei einem auf 100 Jahre zeitlich begrenzten Strom eines langlebigen Nuklids aus dem Nahfeld.

Mit steigenden K_d -Werten verringert sich der Maximalwert des Nuklidstroms aus dem Fernfeld. Dies ist auf eine „Verbreiterung“ der Kurve zurückzuführen. Es ist kein Effekt des radioaktiven Zerfalls, da wie im vorangegangene Fall ein langlebiges Radionuklid betrachtet wurde. Eine „Verbreiterung“ der Kurve entspricht einer Erhöhung der Geschwindigkeitsdispersion. Mathematisch bedeutet dies, dass die Standardabweichung der Transportzeiten des Radionuklids größer wird. Die Fläche unter den Kurven - also die durch das Fernfeld transportierte Aktivität - bleibt natürlich für ein langlebiges Radionuklid in jedem Fall gleich.

Einfluss der Kolloidkonzentration

Der Einfluss der Kolloide hebt den Einfluss der Sorption zu einem gewissen Grad wieder auf: der Maximalwert der Freisetzungsrates aus dem Fernfeld wächst mit zunehmendem k -Wert. Weiterhin verschiebt sich der Zeitpunkt für das Erreichen des Maximalwertes zu kleineren Zeiten. Der Einfluss der Kolloide führt somit zu einem schnelleren Schadstofftransport und zu einer Verringerung der Geschwindigkeitsdispersion. Der Einfluss der Kolloide auf die Höhe des Maximums ist allerdings eher gering. So erhöht sich die maximal erreichte Freisetzungsrates für die angenommenen Transportparameter bis zu einem Wert von $k = 1$ nur um etwa einen Faktor zwei. Die Zeitspanne bis zum Erreichen des Maximums wird etwa halbiert.

Einfluss der Halbwertszeit

Bei einem Radionuklid mit einer kürzeren Halbwertszeit hat eine veränderte Transportzeit auch Auswirkungen auf den radioaktiven Zerfall. Ein kürzerer oder längerer Transport im Fernfeld wirkt sich in einem geringeren oder größeren Anteil des Radionuklids aus, der während des Transports zerfällt. Kolloide können dementsprechend bei Radionukliden mit einer kürzeren Halbwertszeit einen deutlich größeren Einfluss auf deren Stromstärke aus dem Fernfeld haben. Einen solchen Fall zeigt Abbildung 2.4. Hier werden zwei Radionuklide unter gleichen Sorptions- und Transportbedingungen, aber mit unterschiedlichen Halbwertszeiten verglichen.

Die blauen Kurven repräsentieren ein langlebiges, die grünen ein kurzlebiges Radionuklid. Die blauen Kurven entsprechen den blauen Kurven in Abb. 2.3. Für das kurzlebigere Radionuklid verstärkt sich der Einfluss der Kolloide gegenüber dem langlebigeren. Während der maximal erreichte Strom bei einem Wert von $k = 1$ bei dem langlebigen Radionuklid nur um einen Faktor zwei über dem Strom ohne Berücksichtigung der Kolloide liegt, beträgt die Erhöhung der Stromstärke für das kurzlebige Radionuklid mehr als einen Faktor 500.

Ein besonders großer Einfluss der Kolloide auf die Stromstärke aus dem Fernfeld wird immer dann erwartet, wenn die mittlere Transportzeit des Radionuklids das drei- bis sechsfache seiner Halbwertszeit ist. Nach einer Zeit von drei bis sechs Halbwertszeiten

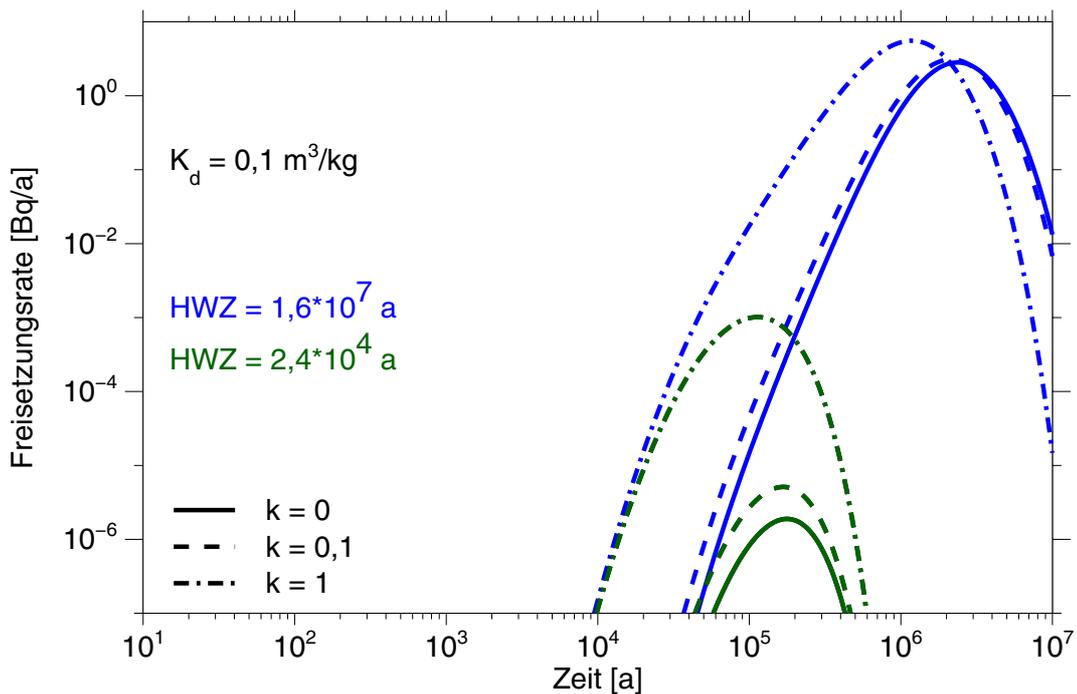


Abb. 2.4 Zeitliche Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld für einen über 100 Jahre zeitlich begrenzten Strom aus dem Nahfeld für zwei Radionuklide mit unterschiedlichen Halbwertszeiten (HWZ).

hat der radioaktive Zerfall schon zu einer deutlichen Verminderung des Stroms aus dem Fernfeld gegenüber jenem aus dem Nahfeld geführt. Eine auch nur geringe Verringerung der Transportzeit aufgrund des kolloidgetragenen Transports kann daher schon zur Folge haben, dass ein deutlich geringerer Anteil des Nuklids zerfallen ist und der Strom aus dem Fernfeld in die Biosphäre signifikant steigt.

Einfluss der Kolloidgeschwindigkeit

Wie zu Beginn gesagt, kann es zu einer relativen Beschleunigung der Kolloide gegenüber der mittleren Geschwindigkeit des Kluftwassers kommen, da sich die Kolloide bevorzugt in der Mitte der Kluft aufhalten, in der die Abstandsgeschwindigkeit des Wassers größer ist als am Rand [31]. Die Erhöhung der Geschwindigkeit der Kolloide aufgrund dieses Effekts sollte geringer als 30 % sein. Abbildung 2.5 zeigt die Abhängigkeit der Freisetzungsrates von der Transportgeschwindigkeit der Kolloide, wobei für die Kolloidgeschwindigkeit v_c eine erhöhte Geschwindigkeit relativ zur mittleren Wassergeschwindigkeit v_f um

10 % bzw. 30 % angenommen wurde. Die blauen Kurven entsprechen den Kurven aus Abb. 2.3 und somit dem Verhalten mit einer Kolloidgeschwindigkeit gleich der mittleren Wassergeschwindigkeit, während die grünen Kurven den beschleunigten Transport der Kolloide zeigen. Eine Erhöhung der Kolloidgeschwindigkeit führt nur zu einer geringen Beschleunigung des Schadstofftransports. Der Maximalwert der Freisetzungsrates wird durch die Kolloidgeschwindigkeit nicht verändert. Eine beschleunigte Geschwindigkeit der Kolloide gegenüber der Klufwasserströmung spielt somit nur eine untergeordnete Rolle.

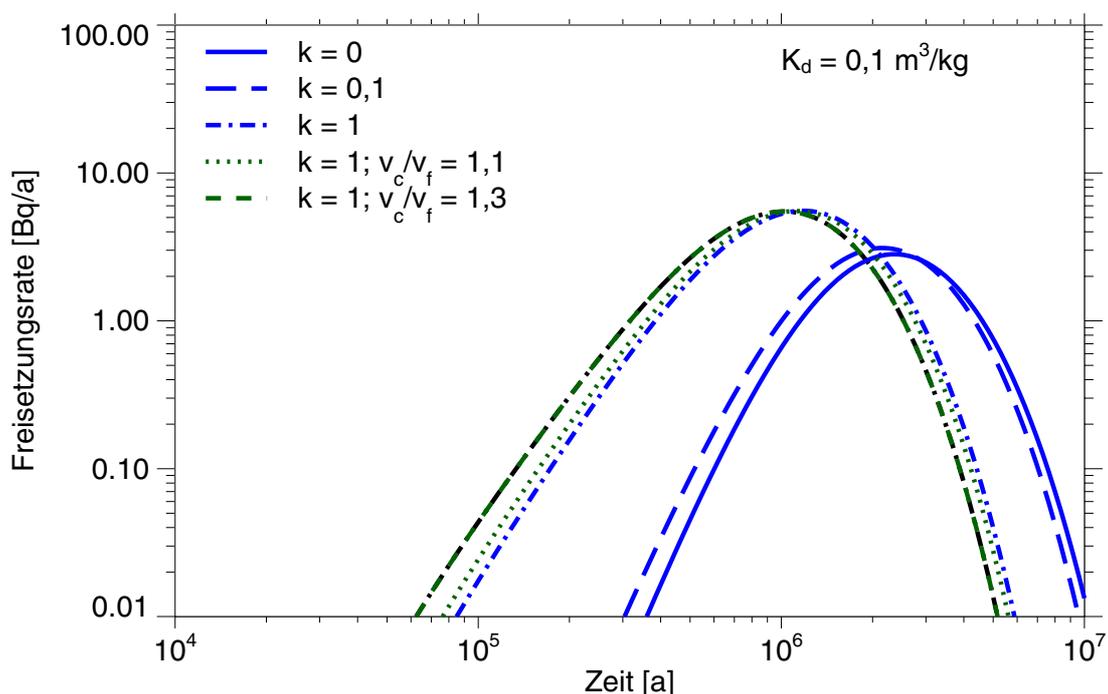


Abb. 2.5 Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld von der Kolloidgeschwindigkeit

Einfluss der Sorption an der Klufwand

Ein Teil der Kolloide kann an der Klufwand sorbiert werden. Dadurch werden auch die an den Kolloiden sorbierten Schadstoffe an der Klufwand festgehalten. Im Folgenden soll untersucht werden, ob sich dadurch unter Umständen sogar ein den Schadstofftrans-

port retardierender Effekt ergeben kann. Das Verhältnis zwischen den an der Kluftwand sorbierten, immobilen Kolloiden und den mobilen Kolloiden wird als der Verteilungskoeffizient K_a definiert.

Abbildung 2.6 zeigt die Abhängigkeit des Radionuklidstroms aus dem Fernfeld unter Berücksichtigung der Sorption der Kolloide an der Kluftwand. Die blauen Kurven entsprechen wiederum den blauen Kurven aus Abb. 2.3 und somit dem Verhalten ohne Berücksichtigung der Sorption der Kolloide an der Kluftwand. Die grünen Kurven zeigen für den Fall mit der höchsten Kolloidkonzentration den Einfluss der Sorption der Kolloide an der Kluftwand für zwei unterschiedliche Verteilungskoeffizienten K_a . Die beiden grünen Kurven sind also mit der gestrichpunkteten blauen Kurve zu vergleichen. Durch die Sorption der Kolloide an der Kluftwand wird der Schadstofftransport gegenüber dem Fall mit gleicher Kolloidkonzentration aber ohne Sorption verlangsamt. Mit zunehmender Sorption der Kolloide wird zusätzlich auch die maximale Freisetzungsrate verringert.

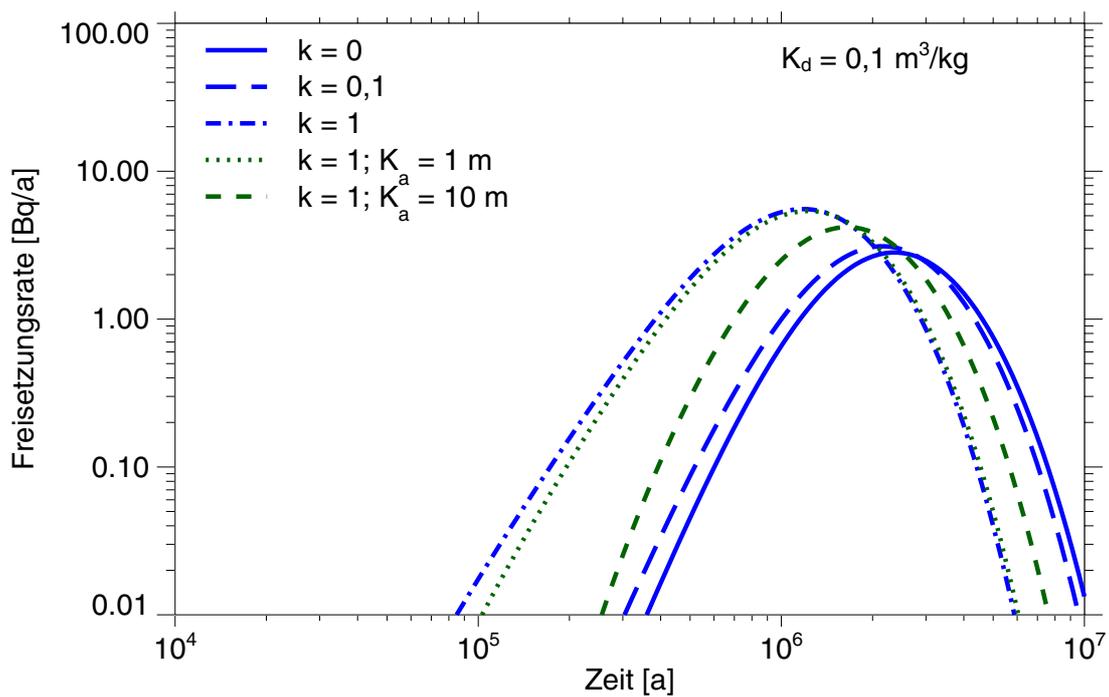


Abb. 2.6 Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld von der Sorption der Kolloide an der Kluftwand bei starker Matrixsorption

Selbst bei $K_a = 10$ - wenn ein Großteil der Kolloide an der Kluftwand sorbiert ist - ist der Radionuklidtransport immer noch schneller, als wenn keine, oder nur wenige Kolloide vorhanden sind. Die Ursache dafür ist, dass für die hier gewählten Parameter - insbesondere den Verteilungskoeffizienten des Radionuklids in der Matrix von $0,1 \text{ m}^3/\text{kg}$ - der Vorgang der Sorption und Desorption der Radionuklide an den immobilen Kolloiden ein schnellerer Prozess ist als die Diffusion der Radionuklide in die Gesteinsmatrix und deren Sorption und Desorption dort, d.h. dass der Retardationseffekt durch immobile Kolloide geringer ist als jener der Matrixdiffusion.

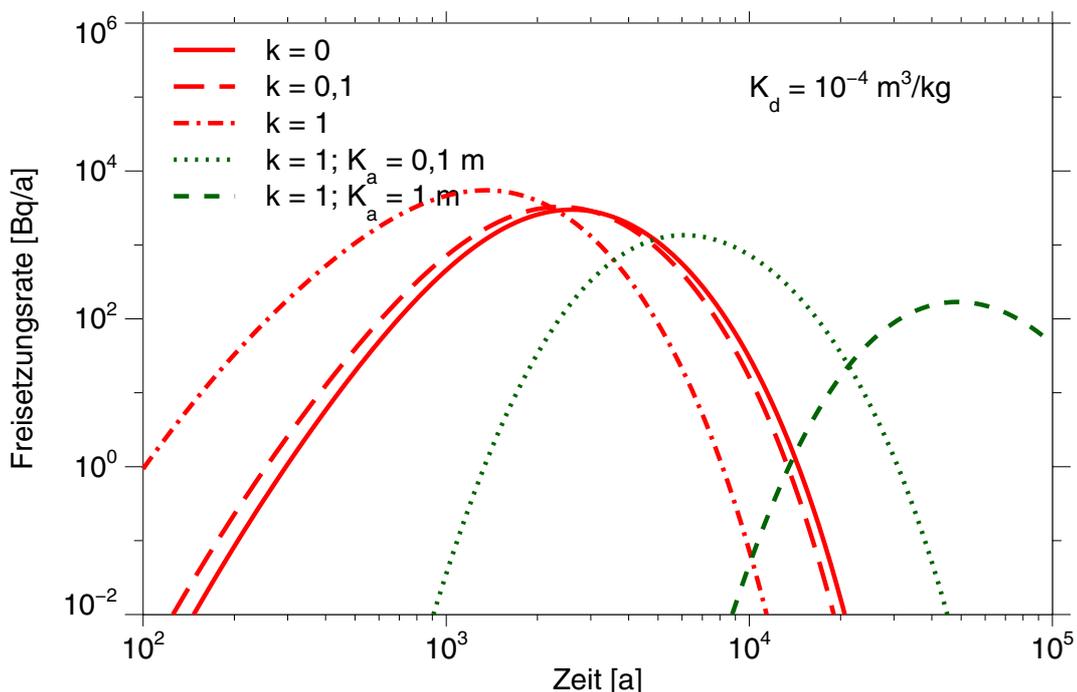


Abb. 2.7 Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld von der Sorption der Kolloide an der Kluftwand bei schwacher Matrixsorption

Dies ändert sich, wenn der Verteilungskoeffizient für die Sorption der Radionuklide in der Gesteinsmatrix klein ist. Ein Beispiel dafür zeigt Abbildung 2.7 für einen K_d -Wert der Radionuklide an der Matrix von $10^{-4} \text{ m}^3/\text{kg}$. Die roten Kurven entsprechen den drei roten Kurven aus Abb. 2.3 für den Transport ohne Berücksichtigung der Sorption der Kolloide an der Kluftwand. Die grünen Kurven zeigen für zwei unterschiedliche Verteilungskoeffizienten K_a den Einfluss der Sorption der Kolloide an der Kluftwand für den Fall mit der höchsten Kolloidkonzentration. Die beiden grünen Kurven sind also mit der gestrichpunkt-

teten roten Kurve zu vergleichen. Durch die Sorption der Kolloide an der Kluftwand ist in diesem Fall der Transport sogar gegenüber dem Transport ganz ohne Betrachtung der Kolloide - der durchgezogenen roten Kurve - verzögert.

Dies bedeutet, dass es für Radionuklide, bei denen die Matrixdiffusion einen großen Retardationseffekt hat, keine Rolle spielt, ob die Kolloide an der Kluftwand sorbiert werden oder nicht. Bei Radionukliden, die keine oder nur eine geringe Rückhaltung durch die Matrixdiffusion erfahren, kann die Sorption der Kolloide an der Kluftwand sogar zu einer Retardation des Radionuklidtransports führen.

2.3.2 BENIPA-Referenzfall

Nachdem im vorangegangenen Abschnitt gezeigt wurde, dass die Bentonitkolloide einen deutlichen Einfluss auf den Schadstofftransport haben können, soll in diesem Abschnitt die Relevanz für die Langzeitsicherheit eines Endlagers untersucht werden. Diese Untersuchungen wurden im Rahmen des Projektes BENIPA [1] durchgeführt. Der in diesem Projekt definierte Referenzfall für die Bohrlochlagerung im Granit entspricht jenem für Olkiluoto aus der finnischen Langzeitsicherheitsanalyse TILA-99 [46]. Der Schadstofftransport im Fernfeld wird mit dem Modell für den kolloidgetragenen Transport berechnet und mit dem ursprünglichen Ergebnis der TILA-Studie ohne Berücksichtigung der Kolloide verglichen.

Das Modell der Freisetzung der Radionuklide aus dem Nahfeld wird in den beiden genannten Studien beschrieben und ist für die Untersuchung des Einflusses der Bentonitkolloide auf den Radionuklidtransport im Fernfeld nicht relevant. Daher soll die Freisetzungsrates der Radionuklide aus dem Nahfeld hier vorgegeben werden, sie ist für die Radionuklide mit den größten Nuklidströmen in Abbildung 2.8 dargestellt.

Für das Fernfeld wurde die Rechnung mit dem für den Kolloidtransport modifizierten Code CHETMAD durchgeführt. Eine Sorption der Kolloide an der Kluftwand wurde in dieser Rechnung ebensowenig betrachtet wie die Beschleunigung des advektiven Kolloidtransports gegenüber dem Wasserfluss. Die Geometriedaten für das Fernfeld und die Daten zum Wasserfluss wurden der Studie TILA-99 entnommen und sind in Tabelle 2.2 zusammengefasst.

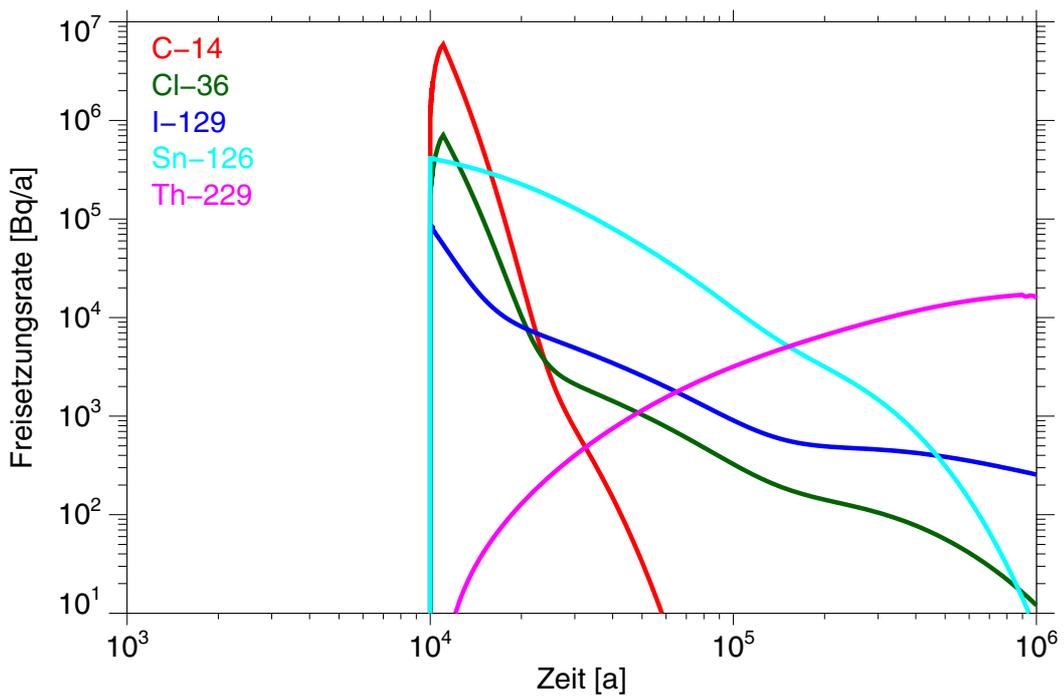


Abb. 2.8 Nuklidstrom aus dem Nahfeld im BENIPA-Referenzfall

Tab. 2.2 Geometriedaten des Fernfelds

Parameter		Wert
Länge des Transportwegs	[m]	600
Verweildauer des Wassers	[a]	25
Volumenfluss in der EDZ	[m ³ /a]	1,2·10 ⁻³
Öffnungsweite der Kluft	[m]	5·10 ⁻⁴
Spurlänge der Kluft	[m/m ²]	1·10 ⁻⁴
Diffusionskoeffizient in der Matrix	[m ² /a]	6,3·10 ⁻⁴
Matrixporosität		1·10 ⁻³
Verteilungskoeffizient der Nuklide in der Matrix		siehe Tabelle 2.3
Verteilungskoeffizient der Nuklide auf den Kolloiden		
Kolloidkonzentration	[ppm]	0; 1; 10; 100
Verteilungskoeffizient der Kolloide an der Kluftwand	[m]	0
Beschleunigung der Kolloide relativ zur Darcy-Geschwindigkeit		1

Die Daten für die Verteilungskoeffizienten der Radionuklide an der Granitmatrix wurden ebenfalls der Studie TILA-99 entnommen. In dieser Studie sind mehrere Datenreihen für unterschiedliche chemische Milieus aufgelistet. Für diese Berechnungen wurden die Daten für Süßwasserverhältnisse verwendet, da bei salinaren Bedingungen nicht damit zu rechnen ist, dass die Bentonitkolloide im Kluftwasser stabil sind. Daten für die Verteilungskoeffizienten der Radionuklide an den Bentonitkolloiden sind nicht bekannt, daher wurden die Referenzwerte für die Verteilungskoeffizienten der Radionuklide am Bentonit aus der Studie SPA verwendet [26]. Die Daten für alle Verteilungskoeffizienten sind in Tabelle 2.3 aufgelistet.

Tab. 2.3 Verteilungskoeffizienten der Nuklide im Fernfeld

Element	Verteilungskoeffizient [m^3/kg]	
	auf Granitmatrix	auf Bentonitkolloiden
C	$1 \cdot 10^{-4}$	0,01
Cl	0	0
Ni	0,1	1
Se	$5 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-3}$
Sr	$5 \cdot 10^{-3}$	0,01
Zr	0,2	1
Nb	0,02	1
Tc	0,05	0,1
Pd	$1 \cdot 10^{-3}$	1
Sn	$1 \cdot 10^{-3}$	1
I	0	$5 \cdot 10^{-3}$
Cs	0,05	0,01
Sm	0,02	5
Ra	0,2	0,01
Th	0,2	5
Pa	0,05	1
U	0,1	5
Pu	0,5	5
Np	0,2	5
Am	0,04	5
Cm	0,04	5

Um den Einfluss des kolloidgetragenen Radionuklidtransports auf die Langzeitsicherheit abschätzen zu können, wurde die Strahlenexposition aus dem Radionuklidstrom aus dem Fernfeld berechnet. Die dazu verwendeten Dosiskonversionsfaktoren wurden entsprechend dem WELL-97-Szenario gewählt, welches sowohl in TILA-99 als auch in der SPA-Studie verwendet wurde. Dieses Szenario basiert auf Annahme einer Freisetzung der Radionuklide in das Einzugsgebiet einer tiefen Trinkwasserquelle.

Abbildung 2.9 zeigt den Einfluss des kolloidgetragenen Radionuklidtransports auf die Strahlenexposition der Bevölkerung. Die schwarze Linie (0 ppm) entspricht der jährlichen Strahlenexposition ohne Berücksichtigung der Kolloide, während die anderen drei Kurven den Einfluss für drei unterschiedliche Kolloidkonzentrationen von 1, 10 und 100 ppm zeigen.

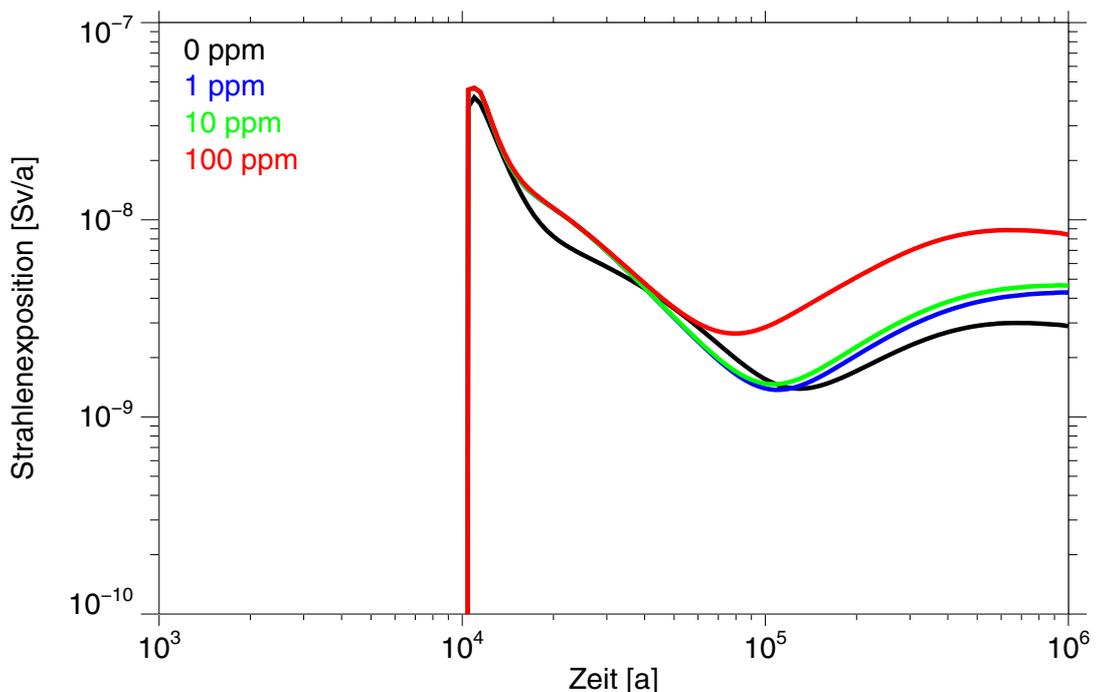


Abb. 2.9 Einfluss der Kolloidkonzentration auf die Strahlenexposition

Es zeigt sich, dass der Einfluss des kolloidgetragenen Radionuklidtransports auf die Summe der Strahlenexpositionen für den betrachteten Fall und Zeiten kleiner als 10⁵ Jahre gering ist. Für die Kolloidkonzentrationen von 1 und 10 ppm wird zum Zeitpunkt von 7 · 10⁴ Jahren sogar ein kleiner Rückgang der Strahlenexposition beobachtet. Für Zei-

ten größer als 10^5 Jahre nimmt die Strahlenexposition mit der Kolloidkonzentration zu, aber die Zunahme ist mit einem maximalen Faktor von 1,6 bei einer Kolloidkonzentration von 10 ppm eher gering. Die relative Zunahme der Strahlenexposition mit der Kolloidkonzentration ist auch in Abbildung 2.10 in einer linearen Darstellung zu sehen.

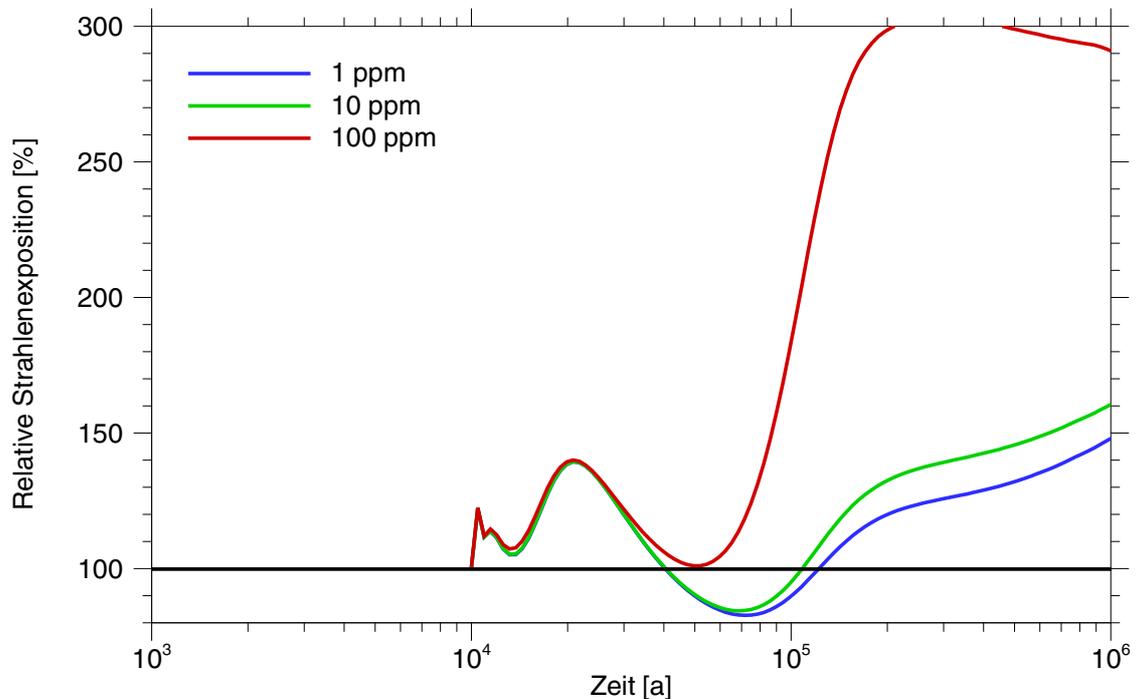


Abb. 2.10 Relative Strahlenexposition in Abhängigkeit von der Kolloidkonzentration

Wie auch aus der Prinzipstudie im vorangegangenen Abschnitt folgt, haben die Kolloide vor allem zwei Auswirkungen auf den Schadstofftransport:

- Die Anwesenheit von Kolloiden beschleunigt den Schadstofftransport. Ein schnellerer Transport führt in Folge dazu, dass ein geringerer Anteil eines Radionuklids auf dem Transportweg zerfällt, wodurch sich die Freisetzung erhöht.
- Die Schadstoffe werden nicht nur schneller transportiert, sondern auch die Geschwindigkeitsdispersion nimmt ab, d.h. ein Großteil der Schadstoffe wird mit der gleichen Geschwindigkeit transportiert, nämlich mit der der Kolloide. Dies führt dazu, dass die Schadstoffe zur gleichen Zeit in der Biosphäre ankommen. Das Tailing der Strahlenexpositions-Zeit-Kurve nimmt ab und dafür der Maximalwert und somit die Strahlenexposition zu.

Diese beiden Effekte zeigen sich besonders gut an den beiden Radionukliden Sn-126 und Pu-240 und werden im Folgenden diskutiert. Die Strahlenexposition, die auf das Radionuklid Sn-126 zurückzuführen ist, ist in Abbildung 2.11 dargestellt. Die maximale Strahlenexposition durch Sn-126 steigt durch den kolloidgetragenen Radionuklidtransport um etwa einen Faktor zwei. Dieser Anstieg ist nahezu unabhängig von der Kolloidkonzentration, was auf einen Sättigungseffekt hinweist. Die maximale Menge von Sn-126 ist schon bei einer Konzentration von 1 ppm an den Bentonitkolloiden sorbiert. Eine höhere Konzentration an Kolloiden führt damit nicht zu einer höheren Konzentration sorbierter Radionuklide. Dies liegt an dem kleinen Verteilungskoeffizienten von Sn-126 in der Matrix verglichen mit dem an den Kolloiden.

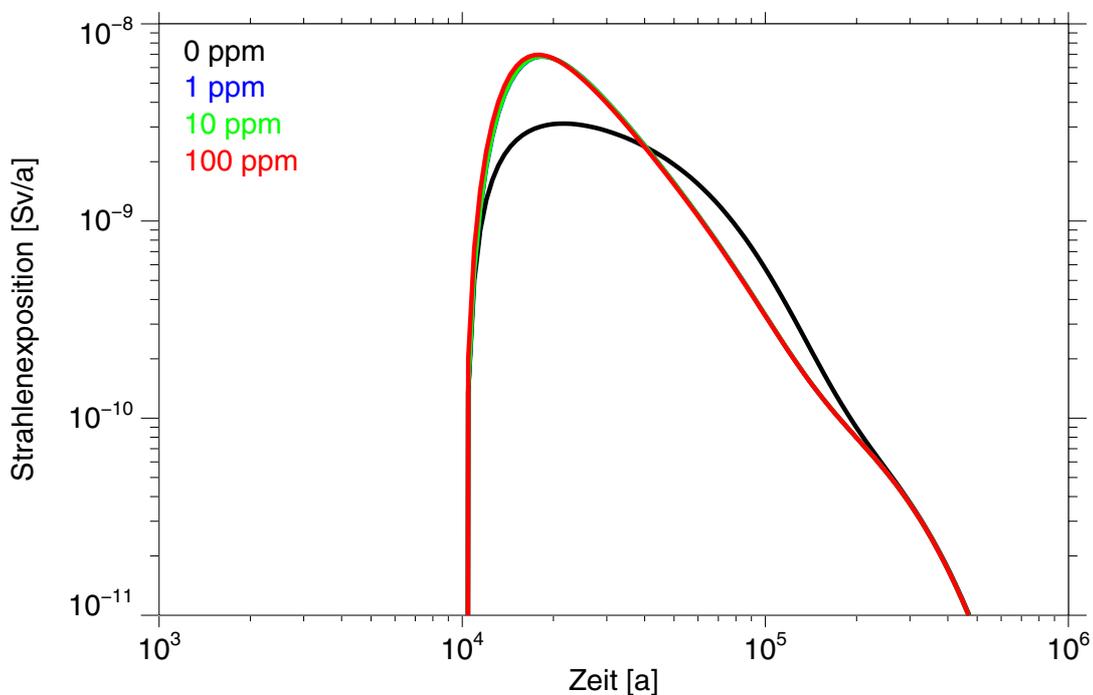


Abb. 2.11 Strahlenexposition durch Sn-126 in Abhängigkeit von der Kolloidkonzentration

Die Zunahme der Strahlenexposition durch Sn-126 ist hauptsächlich auf die Abnahme der Tailings der Kurve zurückzuführen. Ein großer Anteil des Sn-126 ist an den Bentonitkolloiden sorbiert und wird mit der Geschwindigkeit der Kolloide transportiert. Mehr Sn-126 kommt zur gleichen und früheren Zeit in der Biosphäre an und führt daher zu einer Erhöhung der Strahlenexposition. Da die Sn-126-Gesamtmenge aber konstant ist,

nimmt die Strahlenexposition durch Sn-126 zu späteren Zeiten - bei etwa $7 \cdot 10^4$ Jahren - ab. Da Sn-126 zu diesem Zeitpunkt das die Gesamtdosisrate dominierende Radionuklid ist, nimmt auch die Gesamtdosisrate ab.

Die Strahlenexposition, die auf Pu-240 zurückzuführen ist, ist in Abbildung 2.12 dargestellt. Dieses Radionuklid ist nicht für die Gesamtdosisrate relevant, aber es ist von prinzipiellen Interesse, da es ein anderes Verhalten zeigt, als Sn-126. Es gibt praktisch keinen Einfluss der Kolloide auf das Transportverhalten von Pu-240 bei einer Kolloidkonzentration von 1 ppm, einen geringen Einfluss mit der Zunahme der Strahlenexposition um einen Faktor 1,5 bei einer Konzentration von 10 ppm und eine große Zunahme der Strahlenexposition um einen Faktor 20 bei einer Konzentration von 100 ppm. Dieses Verhalten hängt mit dem Verhältnis von Lebensdauer und Transportzeit des Pu-240 zusammen.

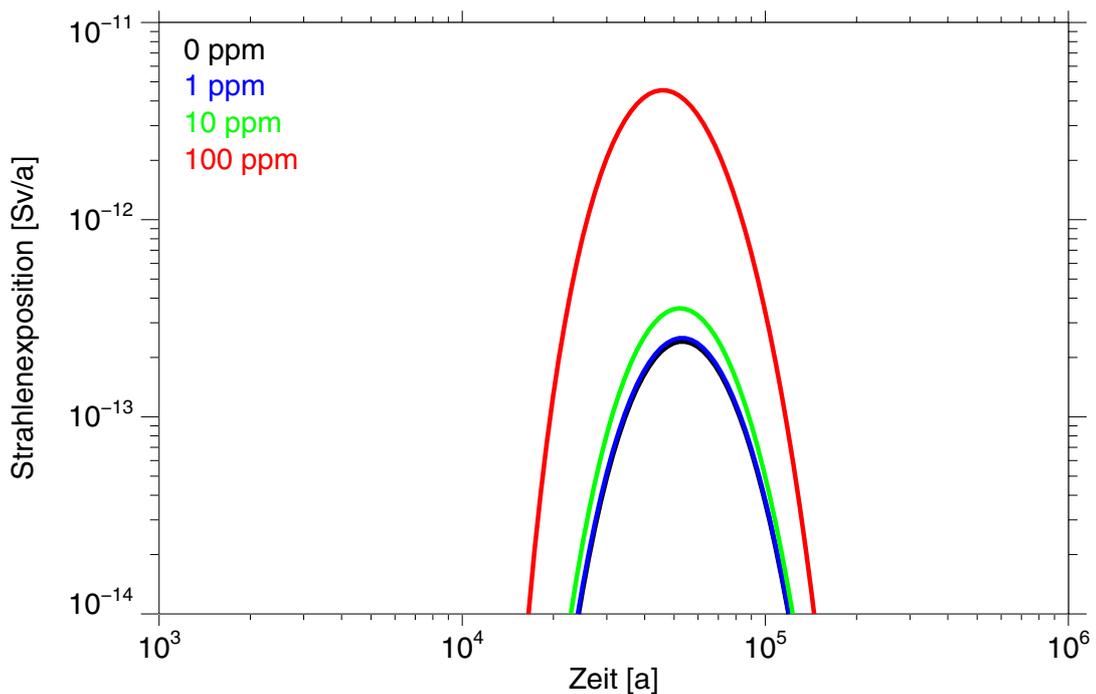


Abb. 2.12 Strahlenexposition durch Pu-240 in Abhängigkeit von der Kolloidkonzentration

Die Halbwertszeit von Pu-240 beträgt 6 542 Jahre. Zur Zeit des Eintreffens von Pu-240 in der Biosphäre ist dies schon zum Großteil zerfallen, da seine mittlere Transportzeit etwa acht mal seiner Halbwertszeit entspricht. Eine Kolloidkonzentration von 100 ppm führt zu einer Verringerung der mittleren Transportzeit um etwa 9 100 Jahre, was etwa das 1,4-fache der Halbwertszeit von Pu-240 ist. Dieses Beispiel zeigt, dass die Kolloide die Transporteigenschaften einiger Radionuklide signifikant verändern können.

2.4 Zusammenfassung

Die Entstehung von Bentonitkolloiden an der Grenzfläche einer Bentonitbarriere zum Granit-Wirtsgestein ist aufgrund von Experimenten von Missana et al. wahrscheinlich. Die zu erwartende Kolloidkonzentration in einer realen Endlagersituation ist nach dem derzeitigen Stand der Forschung nur schwer vorauszusehen. Konzentrationen in der Größenordnung von 1 bis 10 ppm erscheinen jedoch realistisch. Die Stabilität der Bentonitkolloide im Kluftwasser einer Granitformation ist nach Untersuchungen von Schäfer et al. an spezielle Anforderungen an das chemische Milieu gebunden [38]. So ist vor allem die Ionenstärke des Wassers ein begrenzender Faktor und nur in Umgebungen mit Süßwasser ist mit einer Langzeitstabilität der Kolloide zu rechnen.

Die Modellierung des kolloidgetragenen Schadstofftransports in einer Kluft lässt sich unter der Annahme linearer Sorption und einigen zusätzlichen einschränkenden Annahmen - wie der Vernachlässigung der Sorption der Kolloide an der Kluftwand - mit herkömmlichen Programmen für den Schadstofftransport in doppelporösen Medien ohne Modifikationen durchführen. Auch bei Berücksichtigung der Sorption der Kolloide an der Kluftwand und einer Beschleunigung der Kolloide relativ zur advektiven Wasserbewegung sind die Transportgleichungen des kolloidgetragenen Schadstofftransports sehr ähnlich zu jenen ohne Berücksichtigung der Kolloide. Somit ist die Modellierung schon mit geringfügigen Modifikationen bestehender Transportprogramme möglich. Sollen nicht-lineare Sorptionsprozesse der Schadstoffe an den Kolloiden berücksichtigt werden, müssen neue Transportprogramme entwickelt werden. Für die Betrachtung nicht-linearer Sorption stehen momentan allerdings noch keine Daten zur Verfügung.

Anhand einer Prinzipstudie wurde der Einfluss der Kolloide auf den Schadstofftransport untersucht. Die Ergebnisse können folgendermassen zusammengefasst werden:

- Die Anwesenheit von Kolloiden beschleunigt den Schadstofftransport. Aufgrund des radioaktiven Zerfalls kann ein schnellerer Transport auch dazu führen, dass ein geringerer Anteil der Radionuklide auf dem Transportweg zerfällt, was zu einer höheren Freisetzungsrates führt.
- Die Schadstoffe werden nicht nur schneller transportiert, sondern die Geschwindigkeitsdispersion nimmt ab. Ein größerer Anteil eines Radionuklids wird mit der Geschwindigkeit der Kolloide transportiert, wodurch dieser Anteil fast gleichzeitig in der Biosphäre ankommt, und somit die Strahlenexposition zunimmt.
- Eine mögliche Beschleunigung der Kolloide gegenüber der mittleren advektiven Geschwindigkeit des Kluftwassers hat nur eine geringe Auswirkung auf den Schadstofftransport.
- Die Sorption der Kolloide an der Kluftwand kann - für Schadstoffe die keine oder nur eine geringe Rückhaltung durch die Matrixdiffusion erfahren - zu einer Retardation des Schadstofftransports führen. Für Nuklide bei denen die Matrixdiffusion einen großen Retardationseffekt hat, spielt es dagegen nur eine geringe Rolle, ob die Kolloide an der Kluftwand sorbiert werden oder nicht.

Weiterhin wurde für den BENIPA-Referenzfall untersucht, ob bei der Langzeitsicherheitsanalyse für ein Endlager in einer Granitformation die Berücksichtigung der Bentonitkolloide im Fernfeld zu einer größeren Strahlenbelastung führt. Daraus können die folgenden Schlüsse gezogen werden:

- Der Einfluss des kolloidgetragenen Transports auf die von einem Radionuklid verursachte Strahlenexposition hängt von seinem Verteilungskoeffizienten an den Bentonitkolloiden ab. Die höchsten Verteilungskoeffizienten haben die Aktiniden und die Elemente Ni, Zr, Nb sowie Sn. Da sich aufgrund dieser Tatsache der Einfluss des kolloidgetragenen Transports vor allem auf die Aktiniden auswirkt, ist eine Erhöhung der Strahlenexposition in erster Linie für große Zeiten zu erwarten.
- In dem betrachteten Fall ist der Einfluss der Kolloide auf die Summe der Strahlenexpositionen eher klein. Eine Kolloidkonzentration von 10 ppm führte zu einer maximalen Erhöhung der Summe der Strahlenexpositionen um einen Faktor 1,6.

Kolloide können allerdings - abhängig von der Halbwertszeit und Transportdauer in der Geosphäre - bei bestimmten Radionukliden einen größeren Einfluss auf den Transport haben. Dies ist für den BENIPA-Referenzfall z.B. für Pu-240 der Fall. Obwohl dieses Radionuklid im betrachteten Fall nicht dosisrelevant ist, ist es möglich, dass bei anderen Fernfeldparametern oder Abfallzusammensetzungen der kolloidgetragene Radionuklidtransport doch einen stärkeren Einfluss auf die Summe der Strahlenexpositionen haben kann. Aus diesem Grund sollte der Einfluss der Kolloide in Langzeitsicherheitsanalysen betrachtet werden.

3 Modellierung der Aufsättigung der Bentonitbarriere

Die hier zusammengestellten Ergebnisse zur Aufsättigung von Bentonitbarrieren beruhen auf Zwischenergebnissen des mittlerweile abgeschlossenen BMWA-Vorhabens [24]. Die daraus zum Zeitpunkt der Bearbeitung verfügbaren neuen Aufsättigungsmodelle wurden verwendet, um eine erste Vorstellung von der Dauer der Aufsättigung eines fiktiven Buffers zu bekommen. Da die Entwicklung der verwendeten Modelle nicht deutschsprachig dokumentiert ist, werden hier die wesentlichen Teile daraus wiederholt.

International wird Bentonit in den Einlagerungskonzepten für radioaktive Abfälle als Buffermaterial in Betracht gezogen. Eine wichtige Aufgabe des lufttrocken eingebrachten und kompaktierten Bentonits ist dabei, den Zufluss von Wasser aus der EDZ zu den Abfallbehältern zu verzögern und zu minimieren. Sobald der Bentonit in Kontakt mit Wasser kommt, beginnt der Prozess der Aufsättigung. Dieser Vorgang ist im Hinblick auf die Langzeitsicherheitsanalyse von Interesse im Hinblick auf

- die Dauer der Aufsättigung und
- den Zustand des Bentonits am Ende der Aufsättigung.

Die Aufsättigung ist ein physikalisch sehr komplexer Vorgang, bei dem eine Reihe von thermischen, hydraulischen und mechanischen (THM) Prozessen miteinander gekoppelt sein können. Dementsprechend schwierig ist es, die Dynamik der Aufsättigung vorherzusagen. Aus diesem Grund beschränken sich die hier vorgestellten Untersuchungen auf die Frage nach der Dauer der Aufsättigung unter isothermen Bedingungen. Dies entspricht der Situation in einem Endlager mit schwach aktiven Abfällen mit nur geringer Wärmeentwicklung. Es werden jedoch auch Varianten mit unterschiedlichem hydraulischen Druck betrachtet.

Für sehr einfache physikalische Bedingungen, d.h. für Atmosphärendruck und für konstante, nicht erhöhte Temperatur, existiert ein phänomenologischer Ansatz, der die Aufsättigung formal wie einen Diffusionsvorgang nach dem Fickschen Gesetz beschreibt. Das darauf basierende Modell wird im Folgenden als „empirisches Diffusionsmodell“ bezeichnet.

Da das empirische Diffusionsmodell nicht auf Situationen mit erhöhtem hydraulischen Druck oder mit erhöhten oder veränderlichen Temperaturen anwendbar ist, wurden bei der GRS neue Modelle zur Aufsättigung entwickelt, namentlich das „Advektionsmodell“ für die Aufsättigung mit flüssigem Wasser und das „Dampfdiffusionsmodell“ für die Aufsättigung mit Wasserdampf [22]. Grundlage der beiden neuen Modelle sind gut untersuchte Prozesse wie die Darcy-Strömung und die binäre Gasdiffusion. Dadurch haben die Modelle das Potenzial für die Anwendbarkeit auf physikalisch kompliziertere Problemstellungen.

Die neuen Modelle bieten eine Alternative zum empirischen Diffusionsmodell. Darüber hinaus erlauben sie eine erste Abschätzung des Einflusses des hydraulischen Drucks auf die Aufsättigungsgeschwindigkeit, wenngleich eine Bestätigung für die Gültigkeit der neuen Modelle für höhere Drücke noch aussteht.

Nachfolgend werden die hier aufgeführten drei Modelle beschrieben. Danach werden Testfälle für die Modelle definiert, die weitgehend an die Verhältnisse bei einer Bohrlochlagerung angelehnt sind. Ausgehend von einem Referenzfall, bei dem der hydraulische Druck dem Atmosphärendruck entspricht, wird eine Variante mit einem Druck betrachtet, der einer Tiefe von 500 m unter GOK entspricht. Die Ergebnisse der Modellrechnungen werden abschließend interpretiert.

3.1 Beschreibung der Aufsättigungsmodelle

Der Bentonitbuffer bei einer Bohrlochlagerung bildet geometrisch einen Hohlzylinder, in dessen Inneren sich der Behälter befindet. Ersatzweise könnte somit auch ein Schnitt senkrecht zur Achse des Behälters betrachtet werden, wie in Abb. 3.1 dargestellt ist. Der Ringspalt zwischen Behälter und Bohrlochwand ist üblicherweise kleiner als der Behälterradius. Das zweidimensionale System kann also unter der Annahme der Radialsymmetrie sogar näherungsweise auf ein eindimensionales System zurückgeführt werden, wodurch die im Folgenden beschriebenen eindimensionalen Modelle anwendbar sind.

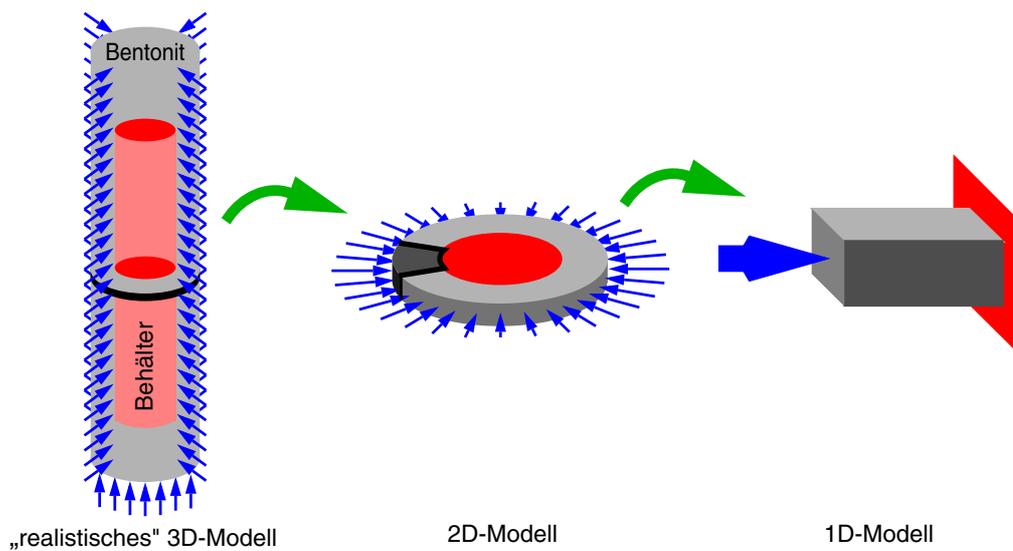


Abb. 3.1 Geometrische Vereinfachung des Modellgebietes für einen Bentonitbuffer nach [24]

3.1.1 Empirisches Diffusionsmodell

Das empirische Diffusionsmodell beschreibt die Aufnahme von flüssigem Wasser in einem Bentonitkörper als ein eindimensionales Problem. Es basiert dabei formal auf dem Fickschen Ansatz für die Diffusion mit einem konstanten Koeffizienten:

$$\frac{\partial w}{\partial t} + D_{emp} \frac{\partial^2 w}{\partial x^2} = 0 \quad (3.1)$$

D_{emp} - Koeffizient des empirischen Diffusionsmodells [m^2/s]

w - Wassergehalt [-]

Die Analogie zum Fickschen Gesetz hat dazu geführt, dass der Koeffizient D_{emp} in (3.1) allgemein als „Diffusionskonstante“ bezeichnet wird, obwohl dieser Ansatz rein empirisch ist. Tatsächlich bestätigt sich die Anwendbarkeit des empirischen Diffusionsmodells da-

durch, dass die aus verschiedenen Messungen ermittelten Zahlenwerte für den Koeffizienten D_{emp} zwischen $1 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2$ und $3 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2$, das heißt innerhalb einer Bandbreite von nur etwas mehr als einer Größenordnung liegen [3], [4], [20], [21], [33].

Der Einfachheit halber werden in diesen Experimenten üblicherweise der integrale Wassergehalt einer Bentonitprobe oder die Wasseraufnahmerate gemessen. Die analytischen Lösungen von (3.1), wie sie sich zum Beispiel in [8] finden, können dann zur Bestimmung des Koeffizienten D_{emp} herangezogen werden:

$$\bar{w} = 1 + \left(-\frac{8(w_{Rand} - w_0)}{\pi^2} \right) \left(\sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{(2n+1)^2} \left\{ e^{-\frac{D_{emp}(2n+1)^2 \pi^2 t}{4l^2}} \right\} \right) + w_0 \quad (3.2)$$

\bar{w} - mittlerer Wassergehalt im Bentonitkörper [-]

$$w' = \frac{D_{emp}(w_{Rand} - w_0)}{\sqrt{\pi D_{emp} t}} \left(1 + 2 \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n e^{-\frac{n^2 l^2}{D_{emp} t}} \right) \quad (3.3)$$

w' - Fluss über den Zustromrand [$1/(\text{m}^3 \text{ s})$]

3.1.2 Advektionsmodell

Das Advektionsmodell beschreibt wie auch das empirische Diffusionsmodell die Aufnahme von flüssigem Wasser. Dabei ist auf den Fall der Aufsättigung eines Bentonitbuffers zugeschnitten, der im Ringspalt zwischen der wasserführenden EDZ des Wirtsgesteins und einem Abfallbehälter eingebracht ist. Die maßgebenden Prozesse im Advektionsmodell für die Aufsättigung mit flüssigem Wasser sind die Darcy-Strömung im Porenraum und die Hydratation des Wassers in den Zwischenschichten der Tonminerale. Zusätzlich werden die folgenden Annahmen getroffen:

- instantane Hydratation,
- isotherme Bedingungen,

- kein Einfluss des Behälters auf die Aufsättigung,
- kein Gastransport in der flüssigen Phase,
- Unterscheidung zwischen Poren- und Zwischenschichtwasser,
- lokale Gleichheit der Zunahme an Zwischenschichtvolumen und der Abnahme des Porenvolumens
- unbewegliche Gebietsgrenzen zum Gebirge und zum Behälter hin und
- Vernachlässigung der mechanischen Verformungen durch Quellung.

Diese Annahmen führen auf ein konzeptuelles Modell für die Aufsättigung, das in [22] eingehender beschrieben und in Abb. 3.2 illustriert ist. Das Wasser in der EDZ steht unter hydrostatischem Druck und dringt in den Porenraum des Bentonits ein. Auf die Flüssigkeit wirkt damit zum einen der hydrostatische Druck in der EDZ und zum anderen die Saugspannung des lufttrocken eingebrachten Bentonits im Inneren des Buffers. Der so entstehende Druckgradient wird als konstant angenommen und verursacht eine Darcy-Strömung von Wasser aus der EDZ in den Bentonit hinein. Das in den Bentonit transportierte Wasser hydratisiert nur an der Feuchtigkeitsfront, da die Hydratation als instantan angenommen wird. Aus dem gleichen Grund kann die Feuchtigkeitsfront erst dann weiter fortschreiten, wenn der Ort der Flüssigkeitsfront vollständig gesättigt ist. Die Strömung zur Feuchtigkeitsfront erfolgt damit im Buffer durch einen vollständig aufgesättigten Bereich. Die Darcy-Geschwindigkeit errechnet sich mit Hilfe der Permeabilität des gesättigten Bentonits. Da die Wasseraufnahme der Zwischenschichten auf Kosten des Porenraums erfolgt, ist der für die Strömung zugängliche Porenraum in diesem Zustand minimal.

Die Parameter für dieses Modell sind einfach zu ermitteln. Lediglich die Permeabilität im gesättigten Zustand und die Saugspannung sind problematisch, da sie stark vom Kompaktionsgrad des Bentonits abhängen. Kompilationen von Messergebnissen aus [22] und aus [24] zeigen jedoch, dass sich sowohl die Permeabilität als auch die Saugspannung mit einer Unsicherheit von weniger als einer halben Größenordnung als eine Funktion der Bentonittrockendichte angeben lassen.

Darüber hinaus bildet das Produkt aus Permeabilität und Saugspannung näherungsweise eine Konstante [24]. Das Advektionsmodell liefert daher unabhängig vom Kompaktionsgrad immer dieselbe Aufsättigungsdynamik, sofern der Wasserdruck in der EDZ ge-

genüber der Saugspannung vernachlässigbar ist. Insofern ist das Modell konsistent mit der Beobachtung, dass der Koeffizient des empirischen Diffusionsmodells, wie in Kapitel 3.1.1 erläutert, bei unterschiedlichen Versuchen in etwa eine Konstante bildet.

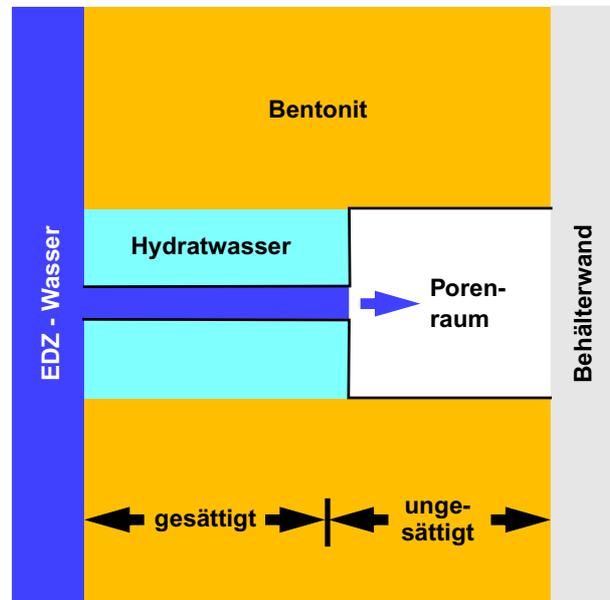


Abb. 3.2 Aufsättigung des Bentonits mit flüssigem Wasser im Advektionsmodell nach [24]

3.1.3 Dampfdiffusionsmodell

Im eindimensionalen Dampfdiffusionsmodell schließt der Porenraum an die EDZ an, ohne dass flüssiges Wasser in den Bentonit eindringt. Durch Verdunstung beträgt die relative Luftfeuchtigkeit an dieser Stelle 100%. Der andere Rand grenzt an den Behälter und ist daher für die Strömung geschlossen. Die Strömung von Wasserdampf durch den ungesättigten Bentonit erfolgt im Modell durch binäre Gasdiffusion im Porenraum eines porösen Mediums. Antrieb für die Diffusion ist dabei der Gradient der Dampfpartialdichte bzw. der Gradient des Dampfpartialdrucks.

Der Bentonit als poröses Medium weist jedoch zwei Besonderheiten auf, eine lokal veränderliche Porosität Φ und eine lokal veränderliche Senke r für den Dampf. Die Porosität verändert sich dabei mit dem Wassergehalt w . Porosität und Dampfpartialdichte p sind also zeit- und ortsabhängige Variablen, während der Koeffizient D der binären Diffusion

von Dampf in Luft unter isothermen Bedingungen eine Konstante ist. Vereinfachend wird auch eine konstante Tortuosität angenommen. Unter diesen Bedingungen ergibt sich die eindimensionale Massenerhaltungsgleichung (3.4) [24]. Der Vorgang der Aufsättigung über Dampf ist in Abb. 3.3 skizziert.

$$\frac{\partial}{\partial t}(\Phi\rho) - \tau D \frac{\partial}{\partial x}\left(\Phi \frac{\partial\rho}{\partial x}\right) = r \quad (3.4)$$

ρ_v - Dampfpartialdichte [kg/m^3]

Φ - Porosität [-]

τ - Tortuosität [-]

D - Koeffizient des empirischen Diffusionsmodells [m^2/s]

r - Massenquellendichte [$\text{kg}/(\text{m}^3 \text{s})$]

t - Zeit [s]

x - Abstand vom Zustromrand [m]

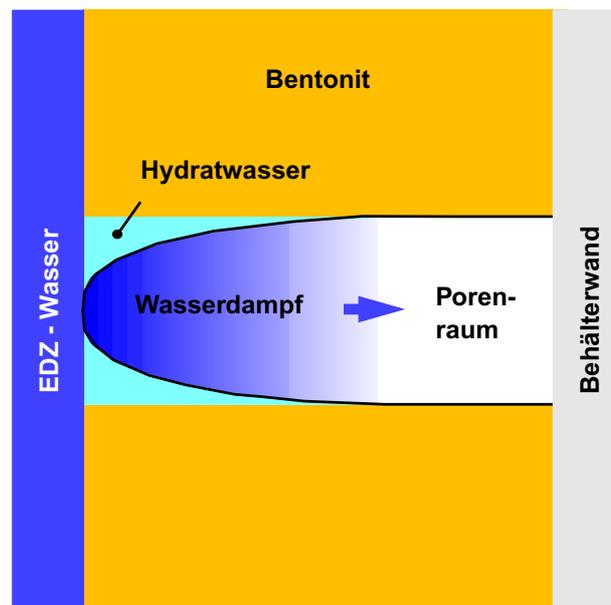


Abb. 3.3 Aufsättigung des Bentonits mit Wasserdampf im Dampfdiffusionsmodell nach [24]

Für die Lösung von Gleichung (3.4) ist die Bestimmung der Hydratationsrate \dot{m} , das heißt der Rate, mit der das Wasser aus dem Porenraum in die Zwischenschichten der Tonminerale übergeht, von entscheidender Bedeutung. Zum einen wird die veränderliche

Porosität mit Hilfe des lokalen Wassergehalts ermittelt, der sich wiederum aus einem Integral des lokalen Hydratationsstroms über der Zeit ergibt. Zum anderen geht die Hydratationsrate direkt in den Senkenterm in (3.4) ein.

Die Hydratationsrate hängt vom chemischen Potenzial des Wasserdampfs im Porenraum und dem chemischen Potenzial des Zwischenschichtwassers ab. In [23] wird gezeigt, wie die Differenz dieser Potenziale mathematisch mit Hilfe von thermodynamischen Überlegungen, einer Adsorptionsisotherme für den Bentonit und einigen vereinfachenden Annahmen als Funktion des Wassergehalts und der Wasserdampfpartialdichte beschrieben werden kann:

$$\dot{m} = \dot{m}_{ref} \ln \frac{\rho}{\rho_{sat} r_{h eq}(w)} \quad (3.5)$$

\dot{m} - spezifische Hydratationsrate [kg_{Wasser}/(kg_{Bentonit} s)]

\dot{m}_{ref} - Referenzhydratationsrate [kg_{Wasser}/(kg_{Bentonit} s)]

ρ - Dampfpartialdruck [Pa]

ρ_{sat} - Sättigungsdampfdruck [Pa]

$r_{h eq}$ - relative Luftfeuchtigkeit im Gleichgewicht mit dem Wassergehalt [-]

Gleichung (3.5) enthält eine mathematische Funktion $r_{h eq}(w)$ für den Zusammenhang zwischen relativer Luftfeuchtigkeit und dem zugehörigen Wassergehalt im thermodynamischen Gleichgewicht. Dieser funktionale Zusammenhang wird Adsorptionsisotherme genannt und ist für den hier betrachteten Bentonit MX-80 zum Beispiel in [30] zu finden. Die weiter unten vorgestellten Modellrechnungen basieren auf einer linearen Funktion für $r_{h eq}(w)$, die allerdings insbesondere im Bereich hoher relativer Luftfeuchtigkeiten nur eine grobe Näherung an die Isotherme darstellt:

$$r_{h eq}(w) = \frac{w}{w_{max}} \quad (3.6)$$

w_{max} - geschätzter Wassergehalt bei 100% Luftfeuchtigkeit [-]

Weiterhin ist in Gleichung (3.5) ein konstanter Proportionalitätsfaktor \dot{m}_{ref} enthalten, der als Referenzhydratationsrate (RHR) bezeichnet wird und noch bestimmt werden muss. Dazu ist ein einfaches Experiment ausreichend, in dem der Wassergehalt einer Bentonitprobe bei erhöhter, konstanter Luftfeuchtigkeit als Funktion der Zeit bestimmt wird. Mit diesen Daten und mit Hilfe von (3.5) lässt sich dann die Referenzhydratationsrate ableiten. Vorversuche zu den experimentellen Arbeiten in [24] sowie eine Auswertung von Daten aus [21] deuteten auf einen Wert zwischen $1 \cdot 10^{-8}$ und $1 \cdot 10^{-6}$ hin.

3.2 Definition der Testfälle

Ausgangspunkt der nachfolgend dokumentierten Testfälle bildet ein zylindrisches Modellgebiet, in dem ein Abfallbehälter rotationssymmetrisch von vorkompaktiertem MX-80 Bentonit umschlossen ist. Die Maße für Behälterhöhe und -durchmesser sowie Bohrlochhöhe und -durchmesser sind Abb. 3.4 zu entnehmen. Betrachtet wird die Aufsättigung des Bentonits im Ringspalt um den Behälter.

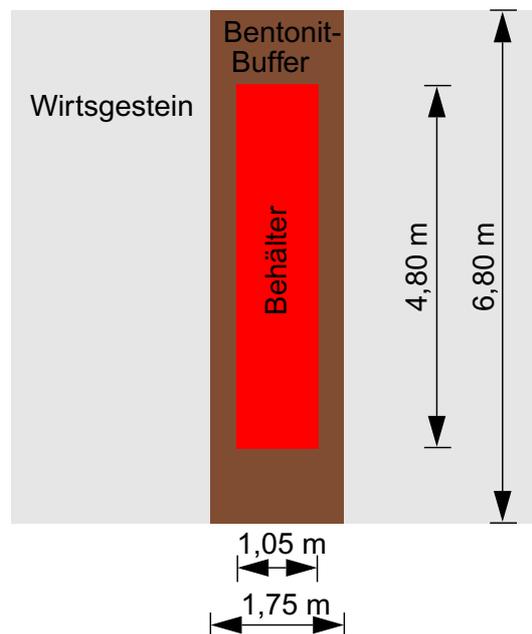


Abb. 3.4 Einlagerung eines Abfallbehälters mit Bentonitbuffer

Den Überlegungen in Kap. 3.1 folgend wird der Buffer im Ringspalt durch ein eindimensionales Modell nachgebildet, dessen Länge der Ringspaltweite und dessen Querschnittsfläche dem Umfang des Buffers entspricht. Der Bentonit soll eine Einbaudichte

von 1600 kg/m^3 bei einem Anfangswassergehalt von 10% aufweisen. Nach [24] ist mit diesen Daten eine Permeabilität von $1,5 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ und eine Saugspannung von 2 MPa konsistent. Im Referenzfall wird ein Atmosphärendruck von 0,1 MPa in der EDZ angenommen, in einer Variante der Druck von 5 MPa, wie er in etwa 500 m Tiefe zu erwarten ist. Zu Vergleichszwecken wird der Testfall auch mit dem empirischen Diffusionsmodells und einem „Diffusionskoeffizienten“ von $1,5 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ modelliert.

Für das Dampfdiffusionsmodell ist die Referenzhydratationsrate (RHR) anzugeben. Um die Bandbreite möglicher Ergebnisse und damit die Sensitivität der Ergebnisse bezüglich dieses Parameters abzuschätzen, werden ein Fall mit einer niedrigen RHR von $1 \cdot 10^{-8} \text{ 1/s}$ und ein Fall mit einer hohen RHR von $1 \cdot 10^{-6} \text{ 1/s}$ untersucht. Eine Tortuosität von 0,1 und eine Endporosität von 2% werden angenommen. Der Koeffizient der binären Gasdiffusion von Wasserdampf in Luft beträgt $2,4 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2/\text{s}$ bei 20°C , der Sättigungsdampfdruck bei 20°C beträgt 2230 Pa.

3.3 Ergebnisse des Advektionsmodells

Die Äquivalenz des empirischen Diffusionsmodells und des Advektionsmodells zeigt Abb. 3.5 anhand des in Kap. 3.2 definierten Referenzfalls. Dargestellt sind der Wassergehalt (in blau), die Wasseraufnahmerate (in rot) und die Eindringtiefe der Flüssigkeitsfront in den Bentonit (in grün) aus den beiden Modellen. Die Eindringtiefe ist bei dem empirischen Diffusionsmodell ad hoc als der Ort der 50%igen Aufsättigung definiert. Kleine Abweichungen ergeben sich demnach nur gegen Ende des betrachteten Zeitraums, da die vollständige Aufsättigung im Advektionsmodell nach einer endlichen Zeit erreicht wird, während die Ergebnisse im empirischen Diffusionsmodell asymptotisch gegen diesen Zustand konvergieren.

Die Ergebnisse des Advektionsmodells bei erhöhtem hydrostatischen Druck im Vergleich zum Referenzfall sind in Abb. 3.6 dargestellt. Die erforderliche Zeit bis zur vollständigen Aufsättigung beträgt danach 25 Jahre im Referenzfall und 7 Jahre in der Variante. Der Prozess der Aufsättigung wird offenbar stark durch die Erhöhung des Wasserdrucks in der EDZ beschleunigt. Der Unterschied von fast 5 MPa in den beiden Testfällen erhöht den Druckgradienten im Advektionsmodell um mehr als den Faktor drei und verkürzt die Aufsättigungsdauer dementsprechend.

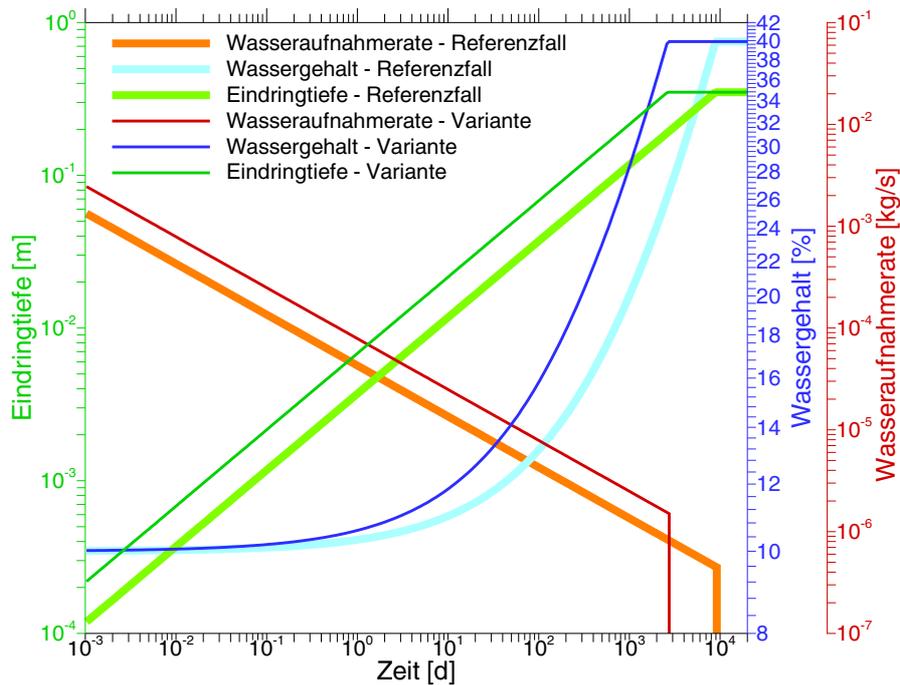


Abb. 3.5 Ergebnisse des Advektionsmodells und des empirischen Diffusionsmodells zum Referenzfall

Mit zunehmender Kompaktion des Bentonits gewinnt die Saugspannung gegenüber dem hydrostatischen Druck jedoch an Bedeutung und dominiert schließlich das Aufsättigungsverhalten im Advektionsmodell. Bei einer Trockendichte von 1800 kg/m^3 erhöht sich die Saugspannung nach [24] auf 20 MPa. Eine entscheidende Verkürzung der Aufsättigungsdauer durch den hydrostatischen Wasserdruck ist unter diesen Umständen nicht mehr zu erwarten.

Die Wasseraufnahmeraten, die das Modell liefert, geben Aufschluss darüber, mit welcher Rate das Wasser aus der EDZ nachströmen muss, um eine Aufsättigung, wie im Modell simuliert, zu gewährleisten. Wie Abb. 3.6 zu entnehmen ist, geht die Wasseraufnahmerate exponentiell zurück. Tab. 3.1 gibt daher Aufschluss über die Wasseraufnahmeraten für den Referenzfall und für die Variante zu drei Zeitpunkten. Liefert die EDZ weniger als die darin aufgeführten Raten, wird die Aufsättigung durch die Menge des nachgelieferten Wassers bestimmt. Damit vergrößert sich dann auch die Aufsättigungsdauer.

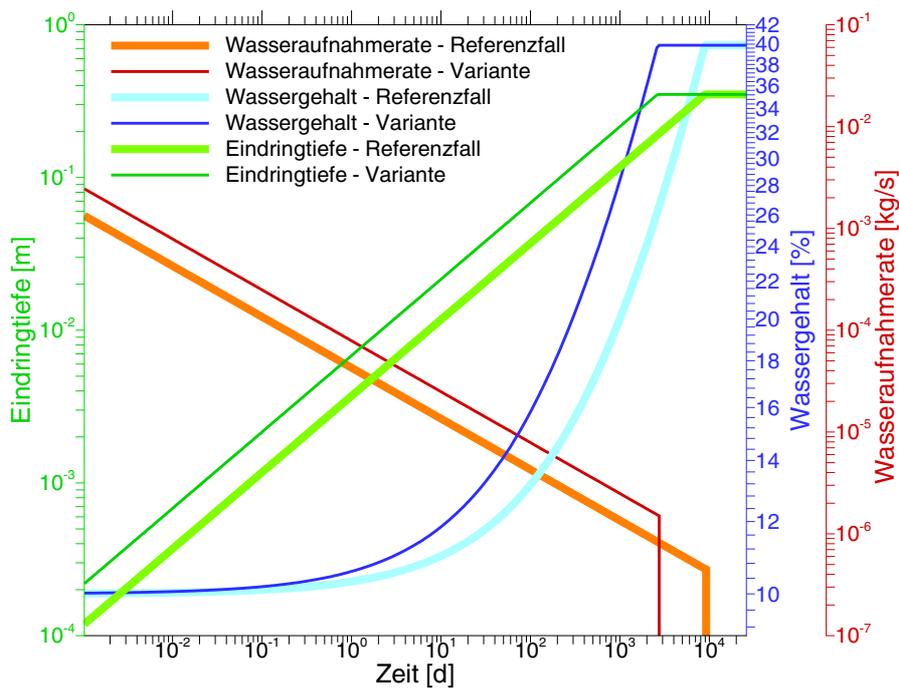


Abb. 3.6 Ergebnisse des Advektionsmodells zum Referenzfall und zur Variante

Grundsätzlich müsste die Zuflussrate aus der EDZ mindestens so groß wie die im Modell errechnete Wasseraufnahmerate des Bentonits, um einen modellkonformen Aufsättigungsvorgang zu gewährleisten. Da die Wasseraufnahmerate mathematisch zu Beginn unendlich groß ist, und danach exponentiell zurückgeht, ist dies jedoch nicht möglich. Statt dessen ist eine Annahme zutreffen, wie stark der Zufluss begrenzt sein kann, ohne dass sich wesentliche Veränderungen beim Aufsättigungsvorgang einstellen. Nach etwa drei Monaten beträgt die Wasseraufnahmerate in der Variante noch 50 kg/(a m). Für einen Vergleich mit einer standortspezifischen Situation liefert dieser Wert einen Anhaltspunkt.

Tab. 3.1 Wasseraufnahmeraten für den Referenzfall und für die Variante in [kg/(a lfd. m Behälter)]

	Referenzfall	Variante
nach einem Tag	283	497
nach 100 Tagen	28	50
nach 7 Jahren	6	10

3.4 Ergebnisse des Dampfdiffusionsmodells

Im Gegensatz zum Advektionsmodell geht der hydraulische Druck in der EDZ nicht in das Dampfdiffusionsmodell ein. Daher hat eine Erhöhung des Drucks gegenüber dem Referenzfall keine Auswirkungen auf die Ergebnisse. Nimmt man jedoch zusätzlich an, dass mit dem erhöhten Druck in der EDZ auch der Gasdruck ansteigt, wächst der Sättigungsdruck für den Wasserdampf proportional an. Bei einem Luftdruck von 5 MPa beträgt der Sättigungsdruck damit 111.500 Pa und der Dampfmassenstrom kann dadurch ebenfalls ansteigen. Die räumliche Verteilung des Wassergehalts im Bentonit ist in Abb. 3.7 für drei verschiedene Zeitpunkte sowohl für den Referenzfall als auch für die Variante angegeben. Die Zeitpunkte für Referenzfall und Variante sind nicht deckungsgleich, sondern sollen einen qualitativen Vergleich von drei charakteristischen Phasen der Aufsättigung ermöglichen.

Durch den erhöhten Dampfstrom in der Variante wird der Bentonit schneller und gleichmäßiger aufgesättigt als im Referenzfall. Im Referenzfall dauert die Aufsättigung etwa 1000 Jahre, in der Variante etwa 20 Jahre. Die erste Phase in Abb. 3.7 (rote Linien) ist in der Variante etwa um den Faktor 10 früher erreicht, die zweite und dritte Phase (grüne und blaue Linien) sogar um den Faktor 40 bis 45.

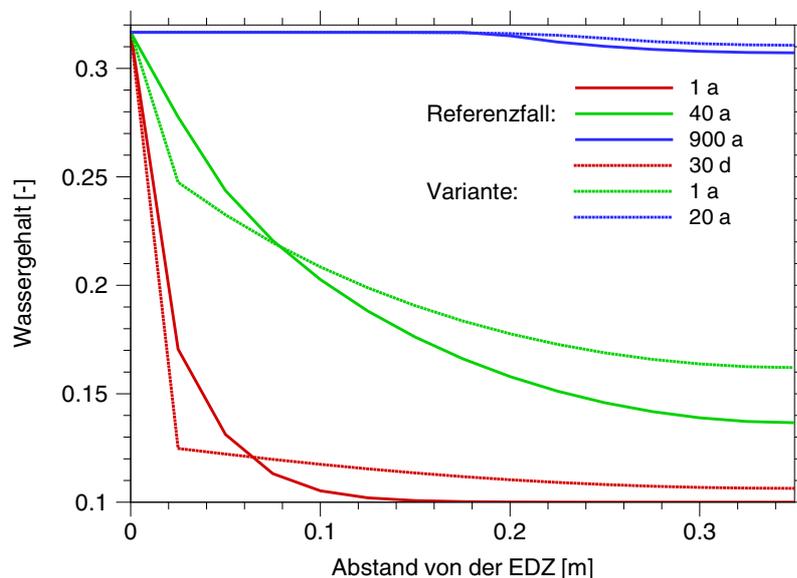


Abb. 3.7 Ergebnisse des Dampfdiffusionsmodells zum Referenzfall und zur Variante für eine Referenzhydratationsrate von $1 \cdot 10^{-8}$ 1/s

Die Abbildungen 3.8 und 3.9 zeigen den Wassergehalt für den Referenzfall und die Variante jeweils unter der Annahme einer niedrigen und einer hohen Referenzhydratationsrate. Während im Referenzfall kaum ein Unterschied zu erkennen ist, ergeben sich in der Variante deutlich unterschiedliche Kurven.

Offenbar wird die Hydratation im Referenzfall durch den diffusiven Dampfstrom begrenzt und nicht durch die Hydratationsgeschwindigkeit. Durch Vergrößerung des Dampfstroms bei erhöhtem Luftdruck hat der Dampfmassenstrom gegenüber der Hydratation jedoch eine signifikante Größenordnung erreicht und führt zu einer deutlichen Änderung der Aufsättigungsdynamik. Die Aufsättigungsdauer wird davon allerdings nicht berührt und ist somit lediglich eine Funktion des Dampfpartialdrucks am Zustromrand.

3.5 Schlussfolgerungen

Der aussagekräftigste Vergleich der Modellergebnisse ergibt sich anhand der errechneten Aufsättigungsdauern, die in Tab. 3.2 zusammengestellt sind. Die Werte für die Diffusionsgesteuerten Modelle müssen dabei wegen der asymptotischen Annäherung an den vollständig gesättigten Zustand geschätzt werden.

Tab. 3.2 Simulierte Aufsättigungsdauer der verschiedenen Modelle in [a]

	Basisfall	Variante
empirisches Diffusionsmodell	ca. 30	(nicht anwendbar)
Advektionsmodell	25	7
Dampfdiffusionsmodell	ca. 1000	ca. 22

Mit einer Ausnahme ergeben alle Modellrechnungen eine Aufsättigungsdauer von unter 40 Jahren für den Bentonitbuffer im Ringspalt zwischen Behälter und Wirtsgestein. Lediglich im Fall der Dampfdiffusion unter Atmosphärendruck liefert das Dampfdiffusionsmodell eine Dauer von etwa 1000 Jahren.

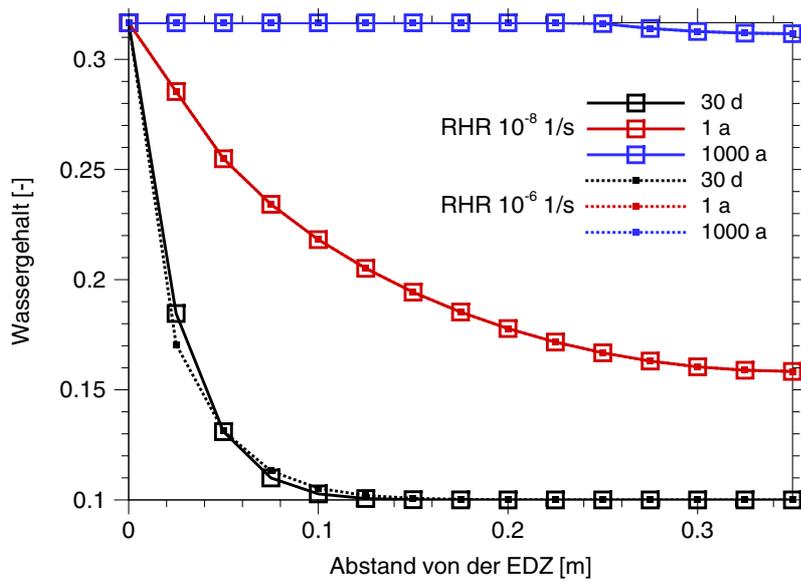


Abb. 3.8 Variation der Referenzhydratationsrate im Referenzfall

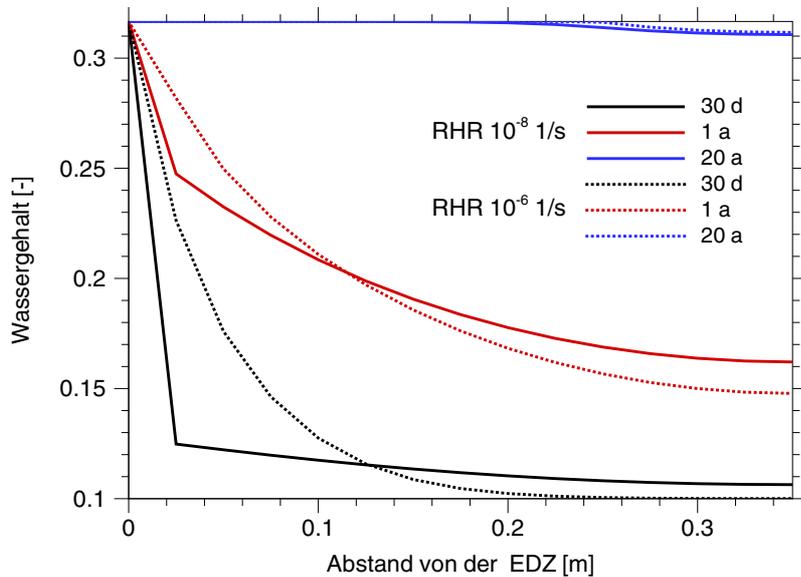


Abb. 3.9 Variation der Referenzhydratationsrate in der Variante

Die Ergebnisse des Advektionsmodells zeigen, dass der Einfluss des hydrostatischen Drucks auf die Aufsättigungsgeschwindigkeit bei gering kompaktierten Bentoniten sehr stark sein kann, wenn der hydrostatische Druck mindestens in der Größenordnung der

Saugspannung liegt. Der Einfluss lässt jedoch mit zunehmender Kompaktion wegen der damit einhergehenden Erhöhung der Saugspannung nach. Bei den hohen Kompaktionsgraden, wie sie zum Beispiel bei den in-situ Versuchen im HRL Äspö erreicht werden, ist der hydrostatische Druck in der EDZ nicht mehr von entscheidender Bedeutung.

Während der Aufsättigung ist ein potentieller Wasserzufluss durch die EDZ in der Größenordnung von 50 kg Wasser pro Jahr und pro laufendem Meter Abfallbehälter erforderlich, um eine modellkonforme Aufsättigungsdynamik zu gewährleisten. Andernfalls wird die Aufsättigung durch die Menge an nachgeführtem Wasser bestimmt und dementsprechend verzögert.

Im Dampfdiffusionsmodell ist die Referenzhydratationsrate ein Maß für die Hydratationsgeschwindigkeit. Unter Atmosphärendruck sind die Ergebnisse der Testfälle gegenüber der Referenzhydratationsrate jedoch nicht sensitiv. Die Aufsättigung wird in diesen Fällen durch die Wassernachführung durch Dampf im Porenraum bestimmt. In der Variante mit einem 50fachen Dampfpartialdruck zeigen sich bei der Variation der RHR dagegen deutliche Unterschiede bei der Wasserverteilung im Bentonit.

Unklar bleibt der Einfluss des Kompaktionsgrades auf das Aufsättigungsverhalten. Die Anfangsporosität und damit die Stärke des anfänglichen Diffusionsstroms gehen einerseits mit dem Kompaktionsgrad zurück. Andererseits verringert sich dadurch aber auch die aufnehmbare Wassermenge. Ein gewisser Einfluss des Kompaktionsgrades auf die Aufsättigungsdynamik ist also nicht auszuschließen.

Abschließend muss noch darauf hingewiesen werden, dass der Effekt eines erhöhten hydraulischen Randdrucks in den experimentellen Arbeiten zur Aufsättigung durch Flüssigkeiten bislang nicht isoliert von anderen Einflüssen wie der Temperatur untersucht wurde. Für die Aufsättigung durch Dampf existieren mit Ausnahme von [24] überhaupt keine experimentellen Untersuchungen, die Aufschluss über Dynamik und Relevanz dieses Prozesses geben. Insofern können Vorhersagen zu Aufsättigung mit den hier vorgestellten oder mit irgendwelchen anderen Modellen kaum mehr als nur einen orientierenden Charakter haben, solange nicht alle für die Aufsättigung relevanten Prozesse verstanden und mathematisch beschrieben sind und dies durch experimentelle Befunde belegt ist.

4 Schadstofftransport im eindimensionalen Nahfeldmodell

Die Ausbreitung von Schadstoffen in tiefen geologischen Schichten kann prinzipiell mit Hilfe von Rechencodes ermittelt werden, welche den Transport dreidimensional abbilden. Beispiele solcher Rechencodes sind d^3f [12] und r^3t [11]. Während mit d^3f eine dichtegetriebene Strömung berechnet wird, erlaubt r^3t die Berechnung eines Schadstofftransports unter Berücksichtigung von Rückhalteeffekten. Im Folgenden wird für die dreidimensionalen Vergleichsrechnungen der Rechencode d^3f eingesetzt, wobei der Transport durch die konstant angenommene Dichte beschrieben wird.

Zur Abbildung komplexer Grubengebäudestrukturen in salinaren Formationen werden andere Rechencodes eingesetzt, die den Schadstofftransport eindimensional modellieren. Der Vorteil dieser Rechencodes liegt darin, dass sie detaillierte Modelle zur Beschreibung beispielsweise der Mobilisierung oder der chemischen Rückhaltung von Schadstoffen enthalten können und gleichzeitig eine akzeptable Rechengeschwindigkeit erreichen. Beispiele für diese Art von Rechencodes sind LOPOS und REPOS [18, 44].

Im Programmpaket LOPOS besteht das Modell eines Grubengebäudes aus einem Verbund miteinander verknüpfter Segmente. Ein Segment stellt einen Bereich des Modellierungsgebietes mit homogenen Eigenschaften und mit einer vorgegebenen Strömungsrichtung, im Allgemeinen längs der Richtung der größten Ausdehnung, dar. Die Strömungsrichtung kann sich beim Übergang von einem Segment zum nächsten ändern; insbesondere können von der Mitte eines Segmentes weitere Segmente in unterschiedliche Richtungen verzweigen. Die wesentlichen Parameter des Strömungs- und Transportmodells, welche physikalische Eigenschaften eines Segments repräsentieren, sind

- die Länge,
- der Querschnitt,
- die Porosität,
- und die Permeabilität.

Diese Parameter sind innerhalb eines Segmentes räumlich konstant, können aber beispielsweise durch Gebirgskonvergenz zeitlich variieren. LOPOS berechnet zunächst innerhalb eines Zeitschrittes den Fluidstrom und anschließend den Transport von Schadstoffen im Grubengebäude. Die transportierten Schadstoffinventare entstehen durch

Quellterme, die das Mobilisierungsverhalten in den Segmentmodellen der Einlagerungskammern modellieren, oder gelangen durch einen aufgeprägten, mit Schadstoff belasteten Zufluss in den Modellierungsbereich. Da die Modellparameter innerhalb eines Segmentes räumlich konstant sind, kann es an den Grenzflächen benachbarter Segmente zu einer unstetigen Änderung der Parameterwerte und damit der Strömungs- und Transporteigenschaften kommen. LOPOS berücksichtigt jedoch an den Segmentgrenzflächen bei der Strömungsberechnung den Erhalt des Volumenstroms des Fluids und bei der Transportrechnung die Stetigkeit des advektiven und diffusiv-dispersiven Schadstoffstroms. Dabei sind der Volumen- und Schadstoffstrom jeweils über den Segmentquerschnitt gemittelt.

Zielsetzung: Durch die segmentweise vorgegebene Strömungsrichtung des Fluids und die Mittelung der Schadstoffkonzentration über den Segmentquerschnitt ergibt sich ein (segmentweise) eindimensionales Modell für den Schadstofftransport. Eine exakte, die vollständige Geometrie eines Grubengebäudes berücksichtigende Berechnung der Strömung und des Schadstofftransportes würden sowohl in der Beschreibung der Geometrie wie in der Berechnung einen erheblichen Aufwand bedeuten. Im Folgenden wird nachgewiesen, dass die eindimensionale Modellierung in LOPOS den segmentweisen Schadstofftransport im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalyse korrekt abbildet und dass eine mehrdimensionale Modellierung in dieser Hinsicht keine weitergehenden Erkenntnisse erwarten lässt. Um diese These zu belegen, werden Modellrechnungen in LOPOS einer zweidimensionalen (2d) Modellierung mit dem Programmpaket d³f gegenüber gestellt.

4.1 Beschreibung der Testfälle

4.1.1 Das Modellgebiet

Die Vergleichsrechnungen werden für ein Gebiet bestehend aus zwei Segmenten gleicher Orientierung und Länge, wie es in Abbildung 4.1 dargestellt ist, durchgeführt. Das Gebiet ist von Beginn an mit dem transportierenden Fluid gefüllt. Den Segmenten können jeweils die Porosität, Permeabilität und Querschnittsfläche unabhängig voneinander vorgegeben werden. Die Vergleichsfälle werden durch die Variation *eines* Modellparameters in *einem* Segment gegenüber einem Referenzfall erzeugt:

- **Referenzfall:** beide Segmente besitzen eine identische Parametrisierung, d. h. identische „physikalische Eigenschaften“. Die Porosität beträgt in beiden Segmenten 0,3 und die Querschnittsfläche 25 m^2 .
- **Fall P1:** Die Porosität des Segments 2 ist 0,5.
- **Fall P2:** Die Porosität des Segments 2 ist 0,1.
- **Fall Q1:** Die Querschnittsfläche des Segments 2 ist 100 m^2 ; es besitzt die vierfache Höhe des Segments 1.
- **Fall Q2:** Die Querschnittsfläche des Segments 1 ist 100 m^2 ; es besitzt die vierfache Höhe des Segments 2.

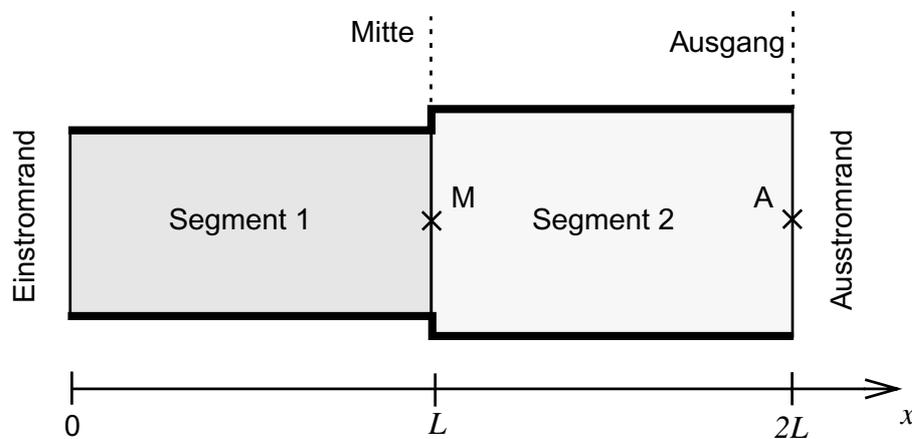


Abb. 4.1 Modellgebiet aus zwei Segmenten mit Vergleichspunkten M und A

Weitere Modellparameter der fünf Testfälle sind in Tabelle 4.1 aufgeführt, wobei für LOPOS auch auf die Realisierung der Randbedingungen eingegangen wird, die formal als Datenstrukturen für Segmente ohne Volumen aber mit speziellen Eigenschaften implementiert sind.

Zum Vergleich der Rechnungen mit LOPOS und d^3f werden jeweils die Konzentrationsverläufe eines Testfalles an den in Abbildung 4.1 markierten Stellen M in der Mitte und A am Ausgang des Gebietes gegenüber gestellt.

Tab. 4.1 Modellparameter des Referenzfalles und der Varianten

Parameter	Ref.	P1	P2	Q1	Q2
Segmentlänge L [m]	50				
Breite (nur LOPOS) [m]	5				
Höhe [m]	5	5	5	20	20
Permeabilität [m^2]	$1,0 \cdot 10^{-14}$				
Porosität	0,3	0,5	0,1	0,3	0,3
Dispersionslänge [m]	5				
Diffusionskoeffizient [m^2/s]	$1,0 \cdot 10^{-9}$				
Fluiddichte [kg/m^3]	1292,0				
dynamische Viskosität [Pa s]	0,0056				
Druckdifferenz (nur LOPOS) [MPa]	0,1				
Geschwindigkeit am Einstromrand [m/a]	0,032	0,032	0,032	0,056	0,010
LOPOS-Segmentmodelle:					
Strecke 1, Strecke 2	Modell für ein Streckensegment mit nicht kompaktierbarem Versatz				
Einstromrand	Modell eines Randsegmentes mit konstantem Fluiddruck und konstantem Strömungswiderstand; konstante Schadstoffkonzentration $c=c_0$				
Ausstromrand	Modell für einen unbegrenzten Fluidzu- und -austritt; konstanter Schadstoffgradient $dc/dx=0$				

4.1.2 Das Strömungsmodell

Die Fluidströmung im gesättigten porösen Medium berechnet sich nach dem Darcy-Gesetz

$$\mathbf{q} = -\frac{k}{\mu} \nabla(p - g\rho z), \quad (4.1)$$

wobei \mathbf{q} die Darcy-Geschwindigkeit, k die Permeabilität, μ die dynamische Viskosität und p der Druck sind. Der Einfluss des Schwerfeldes wird an dieser Stelle nicht berücksichtigt, so dass der Term $\nabla(g\rho z)$ verschwindet.

Der Volumenstrom S des mit der Darcy-Geschwindigkeit \mathbf{q} durch eine Fläche F fließenden Fluids ergibt sich aus dem Flächenintegral

$$S = \int_F \mathbf{q} \cdot d\mathbf{n} \quad , \quad (4.2)$$

wobei der Integrand das Skalarprodukt der Geschwindigkeit mit dem Differential der Flächennormalen \mathbf{n} darstellt.

In LOPOS wird die Strömung in den Testrechnungen durch eine vorgegebene zeit-invariante Druckdifferenz Δp zwischen Ein- und Ausstromrand realisiert. Die Darcy-Geschwindigkeit in den Segmenten berechnet sich dann aus dem Strömungswiderstand und der aus dem Prinzip der Massenerhaltung folgenden Erhaltung des Volumenstroms über die Grenzfläche benachbarter Segmente. Die Strömungsberechnung in LOPOS ist detailliert in [18] dargestellt.

Der Volumenstrom S_{ij} zwischen zwei miteinander verknüpften Segmenten i und j , in denen der Druck p_i bzw. p_j herrscht, berechnet sich in LOPOS gemäß

$$S_{ij} = R_{ij}^{-1} (p_i - p_j). \quad (4.3)$$

Dabei ermittelt sich der für den Strom durch die Grenzfläche wirksame Strömungswiderstand $R_{ij} = R_{ji}$ aus den Strömungswiderständen der beteiligten Segmente in Abhängigkeit ihrer Orientierung zueinander [18]. Der Erhalt des Volumenstroms drückt sich in der Beziehung

$$S_{ij} + S_{ji} = 0 \quad (4.4)$$

aus. Die Segmentdrücke p_i berechnen sich dann aus der Strömungsbilanz

$$\sum_j S_{ij} = \sum_l \dot{Q}_{il} \quad (4.5)$$

für jedes Segment i , in der j die benachbarten Segmente und l die externen Strömungsquellen bzw. -senken \dot{Q}_{il} des Segmentes i indiziert. Im hier betrachteten Fall stellen der Einstromrand die einzige Strömungsquelle und der Ausstromrand die einzige Senke dar.

In d^3f wird eine konstante Darcy-Geschwindigkeit q_E auf dem Einstromrand mit dem von LOPOS aus der vorgegebenen Druckdifferenz im Segment 1 berechneten Wert als Randbedingung gesetzt. Die in Abbildung 4.2 fett gezeichneten Segmentgrenzen sind impermeabel, d. h. es gilt dort die Bedingung

$$q \cdot n = 0, \quad (4.6)$$

wobei n der Normalenvektor des Segmentrandes ist. Als letzte Randbedingung des Strömungsmodells von d^3f wird der Druck auf dem Ausstromrand auf null gesetzt. Eine ausführliche Darstellung zur Strömungsberechnung in d^3f enthält der Bericht [12]. Abbildung 4.2 stellt die Randbedingungen der beiden Strömungsmodelle anschaulich dar.

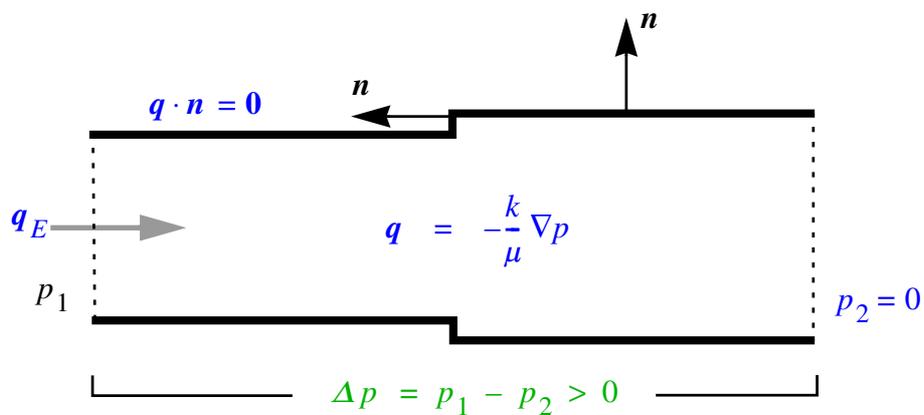


Abb. 4.2 Randbedingungen des Strömungsmodells in d^3f und LOPOS

Die Abbildungen 4.3, 4.4 und 4.5 zeigen die drei verschiedenen Typen der in den d^3f -Testrechnungen auftretenden Strömungsfelder. Durch den Mittelungsprozess werden die durch die Gebietsgeometrie verursachten Einflüsse auf das Strömungsfeld in den Fällen Q1 und Q2 in LOPOS nicht nachgebildet. Dort liegt stets in jedem der beiden Segmente ein homogenes Geschwindigkeitsfeld vor, wobei das Produkt aus Darcy-Geschwindigkeit und Segmentquerschnittsfläche, also der Volumenstrom konstant ist.

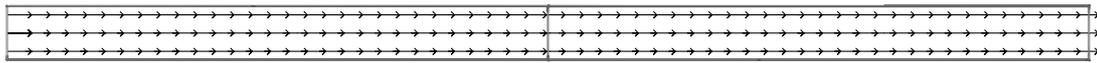


Abb. 4.3 Homogenes Feld der Darcy-Geschwindigkeit in d^3f für die Testfälle mit konstantem Segmentquerschnitt (Referenzfall, Fall P1, Fall P2)

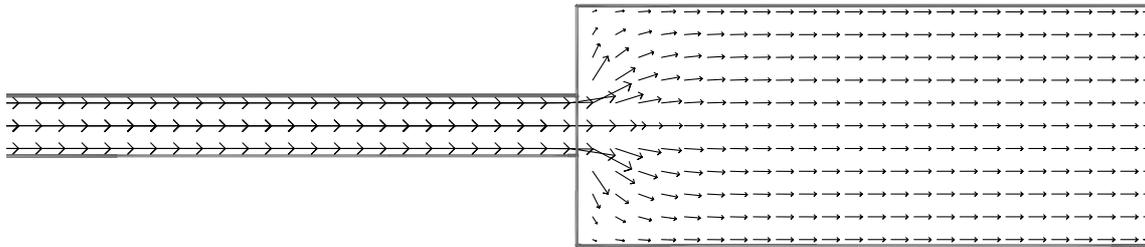


Abb. 4.4 Darcy-Geschwindigkeitsfeld in d^3f bei Querschnittserweiterung im Fall Q1

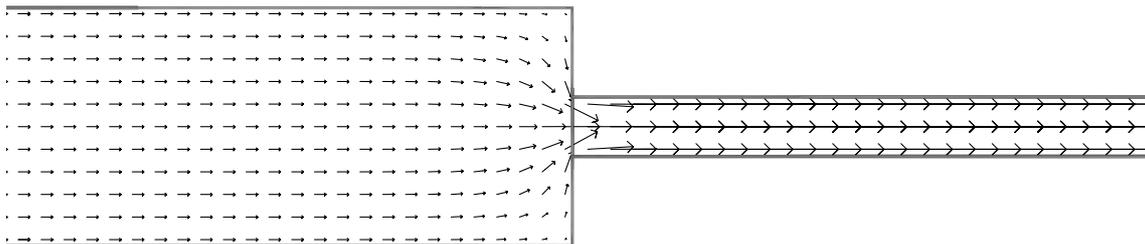


Abb. 4.5 Darcy-Geschwindigkeitsfeld in d^3f bei Querschnittsverengung im Fall Q2

4.1.3 Das Transportmodell

Die Transportgleichung eines Schadstoffes der Konzentration c im porösen Medium der Porosität ϕ lautet

$$\frac{\partial}{\partial t}(\phi c) - \nabla \cdot D \nabla c - c \mathbf{q} = f. \quad (4.7)$$

Der Quellterm f stellt in LOPOS die Mobilisierung des Schadstoffes aus den eingelagerten Abfällen oder den radioaktiven Zerfall dar. Die hydrodynamische Dispersion D hat hier die Form

$$D = D_m + \alpha |q_x| \quad (4.8)$$

mit dem molekularen Diffusionskoeffizienten D_m und dem Dispersionskoeffizienten $\alpha |q_x|$, der sich aus der longitudinalen Dispersionslänge α und der Geschwindigkeitskomponente längs der Segmentorientierung q_x zusammen setzt; in d³f wird darüber hinaus noch der transversale Dispersionskoeffizient mit einem Zehntel des longitudinalen Wertes tensoriell berücksichtigt.

Der durch die Fluidströmung verursachte advective Schadstoffstrom $c q$ führt in LOPOS zum advectiven Anteil des Schadstoffstroms von Segment i nach j gemäß

$$A_{ij}^a = c_{ij} S_{ij} \quad (4.9)$$

mit

$$c_{ij} = \begin{cases} c_i, & \text{falls } S_{ij} \geq 0 \\ c_j, & \text{falls } S_{ij} < 0 \end{cases} = c_{ji} \quad (4.10)$$

und dem Volumenstrom S_{ij} , der im vorherigen Abschnitt dargestellt ist. Der Erhalt des advectiven Schadstoffstroms $A_{ij}^a + A_{ji}^a = 0$ ist dann wegen (4.4) gegeben. Der diffusiv-dispersive Schadstoffstrom von Segment i nach j beträgt

$$A_{ij}^D = Y_{ij}^{-1} (c_i - c_j), \quad (4.11)$$

wobei der Koeffizient

$$Y_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{L_i}{F_i \phi_i D_m^i + \alpha_i |S_{ij}|} + \frac{L_j}{F_j \phi_j D_m^j + \alpha_j |S_{ji}|} \right) = Y_{ji} \quad (4.12)$$

in [18] abgeleitet wird und F_i die Querschnittsfläche und L_i die Länge des i -ten Segments bezeichnen. Wiederum gilt $A_{ij}^D + A_{ji}^D = 0$.

Segmente lassen sich in LOPOS zur feineren Diskretisierung des Schadstofftransportes in Teilsegmente längs der vorgegebenen Strömungsrichtung unterteilen. Alle Teilsegmente eines Segmentes besitzen die gleiche Länge, Parametrisierung und Darcy-Geschwindigkeit, so dass sie bei der Berechnung des Volumenstromes nicht einzeln behandelt werden müssen. Lediglich aus der Bilanzierung der Schadstoffströme wird die Schadstoffkonzentration in jedem Teilsegment berechnet. Dabei werden die beiden für zwei verschiedene Segmente aufgestellten Gleichungen (4.9) und (4.11) auf benachbarte Teilsegmente angewendet.

Als Randbedingung des Transportmodells wird für die Vergleichsrechnung am Einstromrand des Gebietes die Konzentration des Schadstoffs mit

$$c(x, y, t) \Big|_{x=0} = 1 \quad (4.13)$$

vorgegeben. Am Ausgang wird die freie Ausstrombedingung angenommen, die den Gradienten der Konzentration längs der Gebietsnormalen auf null setzt, d. h.

$$\frac{\partial}{\partial x} c(x, y, t) \Big|_{x=2L} = 0. \quad (4.14)$$

Die 2d-Rechnung in d^3f benötigt als Randbedingung an den undurchlässigen Segmenträndern das Verschwinden des diffusiv-dispersiven Stromes längs der Randnormalen, was hier durch

$$\mathbf{n} \cdot \nabla c = 0 \quad (4.15)$$

wiedergegeben wird. Die Randbedingungen des Transportmodells sind in Abbildung 4.6 dargestellt.

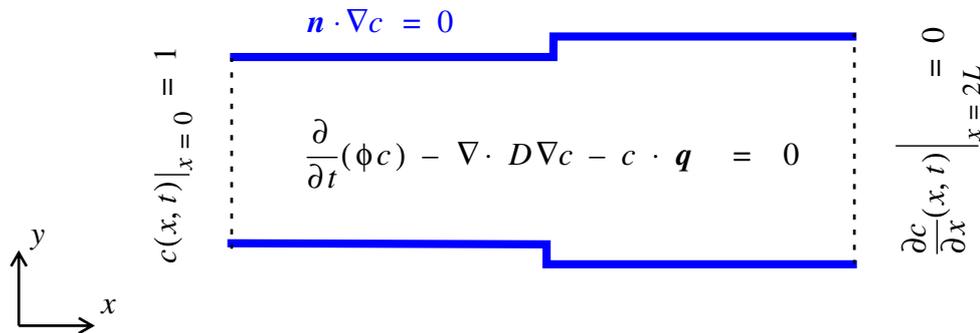


Abb. 4.6 Randbedingungen des Transportmodells

4.1.4 Aspekte der Diskretisierung

Die numerische Berechnung des Transportes erfordert eine räumliche Zerlegung des Modellgebietes. Das Programm d³f benötigt diese auch zur Berechnung der Strömung. Die Testrechnungen des LOPOS-Codes wurden mit einer Unterteilung eines Segmentes in 99 Teilsegmente längs der Strömungsrichtung durchgeführt, wie sie in Abbildung 4.7 angedeutet ist. Abbildung 4.8 zeigt einen Ausschnitt des wesentlich aufwändigeren Gitters der 2d-Rechnung. Dessen feine Gitterstruktur bedeutet eine sehr hohe Zahl von Freiheitsgraden und damit einen erheblich größeren Bedarf an Rechenressourcen.

Beide Codes unterscheiden sich auch in der Zeitdiskretisierung. Während LOPOS ein explizites Einschrittverfahren (explizites Euler-Verfahren) verwendet, benutzt d³f ein implizites Euler-Verfahren [12]. Beide Verfahren benutzen dabei eine Strategie zur Steuerung der Zeitschrittweite.

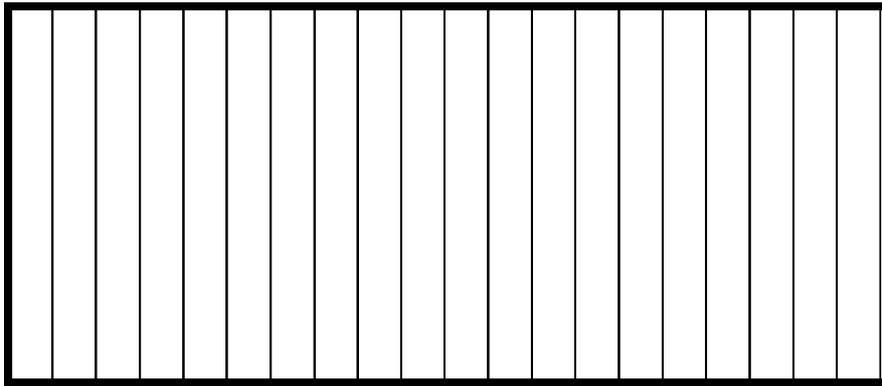


Abb. 4.7 LOPOS-Teilsegmente etwa eines Fünftels des Segmentes 1

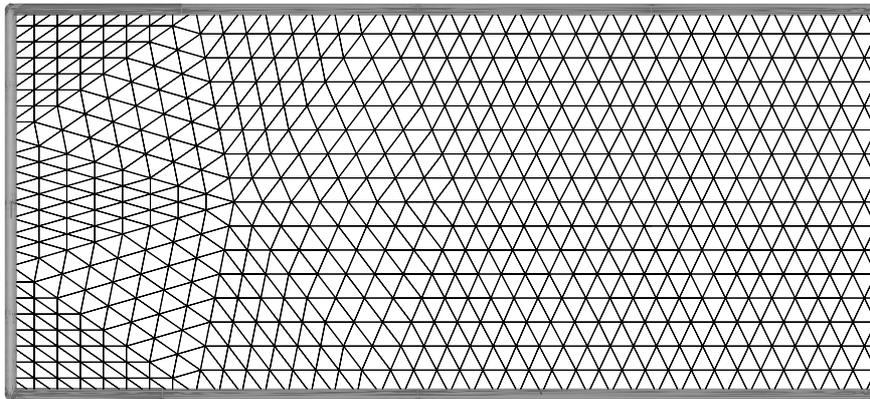


Abb. 4.8 d^3f -Diskretisierungsgitter etwa eines Fünftels des Segmentes 1

4.2 Auswertung der Testrechnungen

Nachfolgend werden die Ergebnisse der in Kapitel 4.1 beschriebenen Testfälle analysiert. Tabelle 4.2 zeigt die Werte der in den fünf Fällen variierten Parameter.

Die räumlich eindimensionale Diskretisierung in LOPOS lässt erwarten, dass die daraus berechnete Lösung bis auf numerische Effekte mit der exakten Lösung des Modells übereinstimmt, falls die physikalischen Modellparameter innerhalb eines Segmentes konstant sind und das Strömungsfeld der 2d-Rechnung parallel zur Ausbreitungsrichtung der LOPOS-Modellierung ausgerichtet ist. Dies ist im Referenzfall sowie den Fällen P1 und P2 gegeben.

Tab. 4.2 Höhe H_i und Porosität ϕ_i der fünf Testfälle in den Segmenten 1 und 2

Testfall	H_1 [m]	H_2 [m]	ϕ_1	ϕ_2
Referenzfall	5	5	0,3	0,3
P1	5	5	0,3	0,5
P2	5	5	0,3	0,1
Q1	5	20	0,3	0,3
Q2	20	5	0,3	0,3

Die von LOPOS und d^{3f} berechneten Konzentrationsverläufe des Referenzfalles in der Mitte und am Ausgang des Gebietes in Abbildung 4.9 stimmen sehr gut überein. Dies gilt auch für die Fälle P1 in Abbildung 4.10 und P2 in Abbildung 4.11. Die Differenzkurven $c_{d^{3f}} - c_{LOPOS}$ dieser drei Testfälle im Punkt M, in Abbildung 4.12, und im Punkt A, in Abbildung 4.14, zeigen ein sehr ähnliches Verhalten und eine größte Abweichung der beiden Konzentrationsverläufe von weniger als 0,018. Diese tritt während des Durchlaufs der Konzentrationsfront mit großen Konzentrationsgradienten auf und entsteht durch ein geringes zeitliches Vorauslaufen der LOPOS- gegenüber der d^{3f} -Front. Anhand der Differenzkurven lassen sich auch die durch die verschiedenen Porositäten verursachten Laufzeitunterschiede der Konzentrationsfront beobachten, die sich bei Erhöhung der Porosität und damit des verfügbaren Hohlraums in Segment 2 bei gleichem Volumenstrom verkleinert und entsprechend bei Verringerung der Porosität vergrößert. Die dargestellten Differenzkurven entstehen durch lineare Interpolation der von LOPOS berechneten Lösung auf dem Zeitgitter der d^{3f} -Lösung und anschließender Subtraktion der Konzentrationen auf diesem Zeitgitter. Der in den Abbildungen 4.13 und 4.15 dargestellte relative Fehler $(c_{d^{3f}} - c_{LOPOS})/c_{LOPOS}$ in den Punkten M und A wird in den ersten Zeitschritten (Zeitschrittweite von d^{3f} beträgt 50 a) durch die anfangs sehr kleine Konzentration c_{LOPOS} und eine nur geringe zeitliche Verschiebung der Kurven gegeneinander in den Fällen Q1 und Q2 sehr groß.

Die geometrischen Effekte der beiden Fälle mit Querschnittsveränderung auf die Strömung führen im Fall Q1 zu größeren Unterschieden in den Modelllösungen. Diese Unterschiede sind im Fall Q1 im Punkt M während einer fortgeschrittenen Phase des Durchbruchs der Konzentrationsfront von Segment 1 nach Segment 2 nach etwa 300 Jahren am größten, wie in den Abbildungen 4.12 und 4.16 zu sehen ist. Im Gegensatz zu den

Fällen mit unveränderten Segmentquerschnitten findet in d^3f der Transport bei den Fällen Q1 und Q2 auf der Segmentmittellinie an der Stelle M geringfügig schneller als in LOPOS statt. Abbildung 4.17 zeigt den Konzentrationsverlauf der 2d-Rechnung nach 300 Jahren. Offenbar gelangt in diesem Zeitbereich die stark gekrümmte Front an die undurchlässigen Segmentränder. Im weiteren Verlauf findet eine Begradigung der Front statt, so dass die Querschnittsbilanzen des LOPOS-Modells wieder einen geringeren Unterschied zur Punktkonzentration in d^3f aufweisen. Obwohl im Fall Q1 am Vergleichspunkt M die größten Konzentrationsunterschiede zwischen den Lösungen der betrachteten Testfälle auftreten, ist der am Ausgang auftretende Unterschied nach Abbildung 4.14 nur sehr gering. Der Fall Q2 in Abbildung 4.18 ist der einzige, bei dem die Differenz am Ausgang größer als in der Mitte ist. An beiden Stellen ist die größte Abweichung jedoch geringer als in den drei Fällen mit unverändertem Segmentquerschnitt.

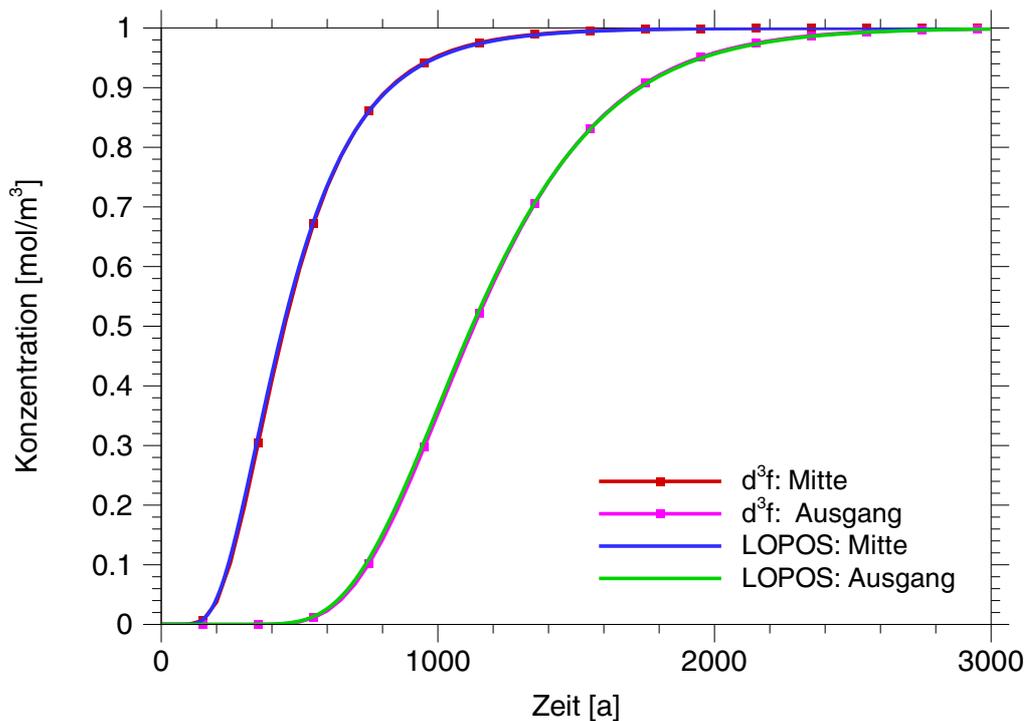


Abb. 4.9 Konzentrationsverläufe des Referenzfalles

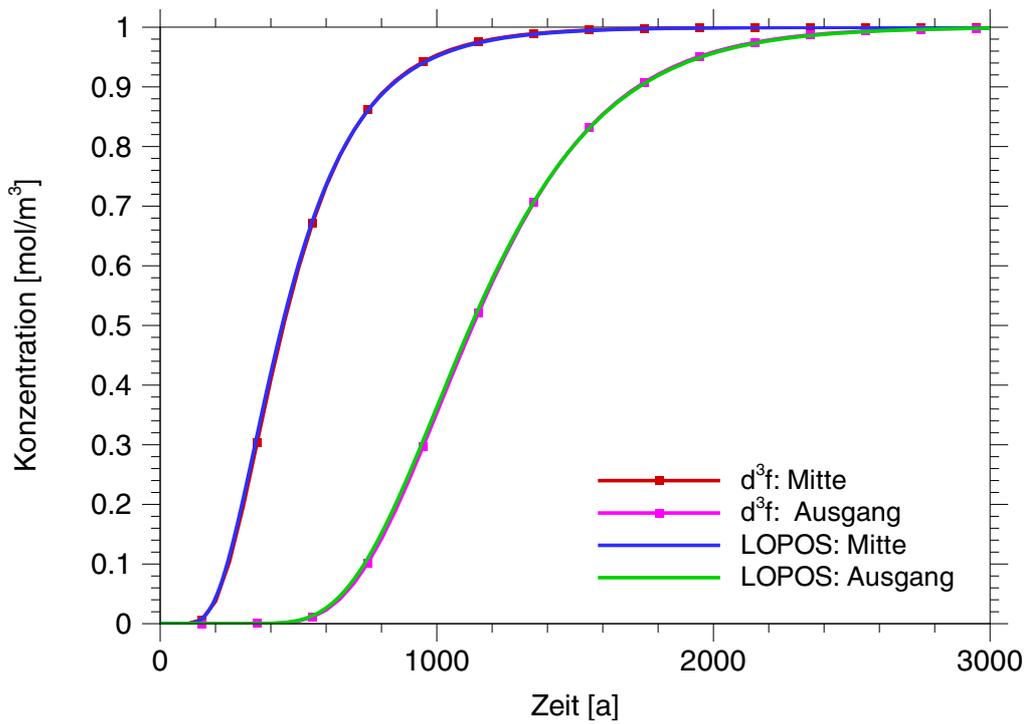


Abb. 4.10 Konzentrationsverläufe des Falles P1

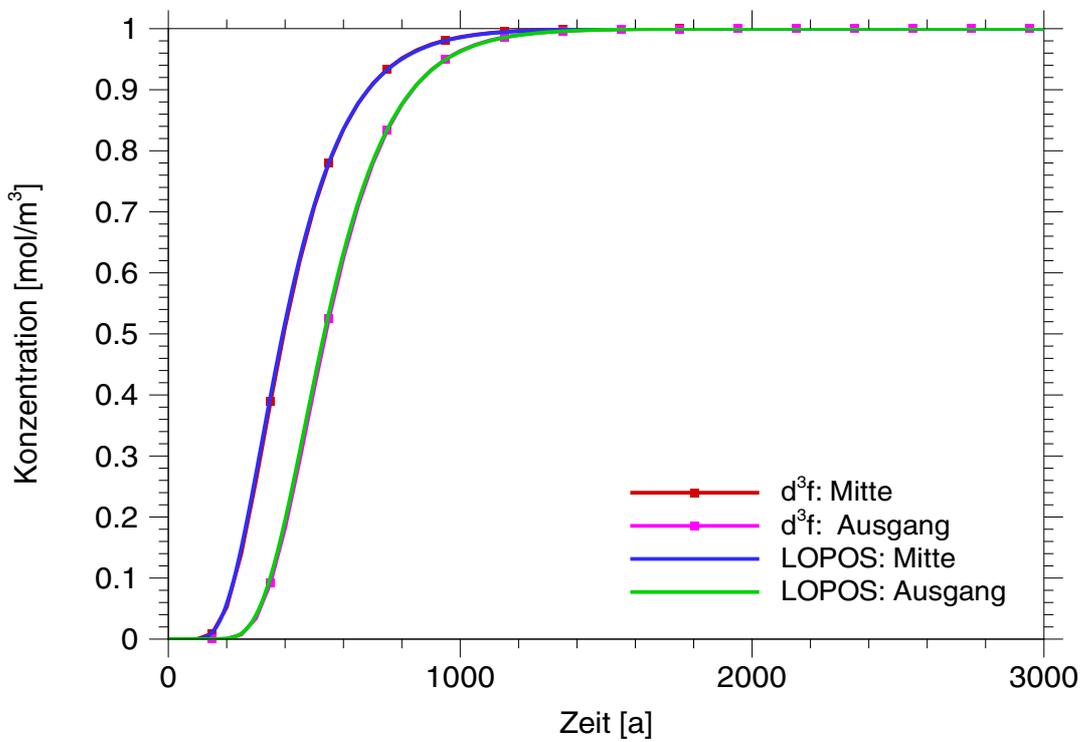


Abb. 4.11 Konzentrationsverläufe des Falles P2

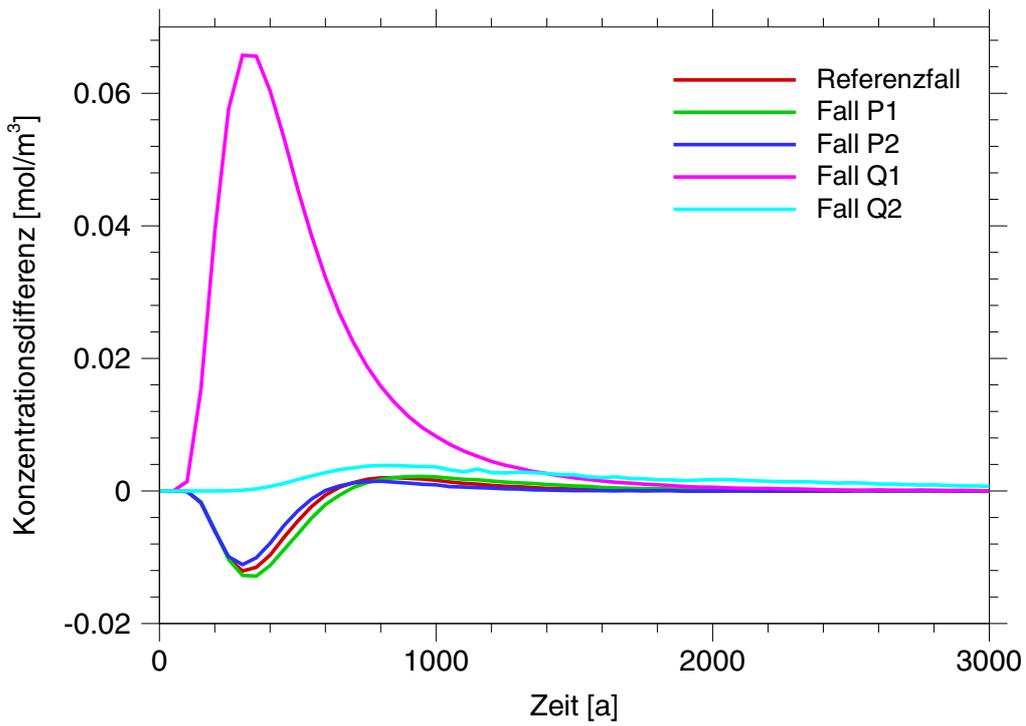


Abb. 4.12 Differenz der Konzentrationen $c_{d3f} - c_{LOPOS}$ im Punkt M

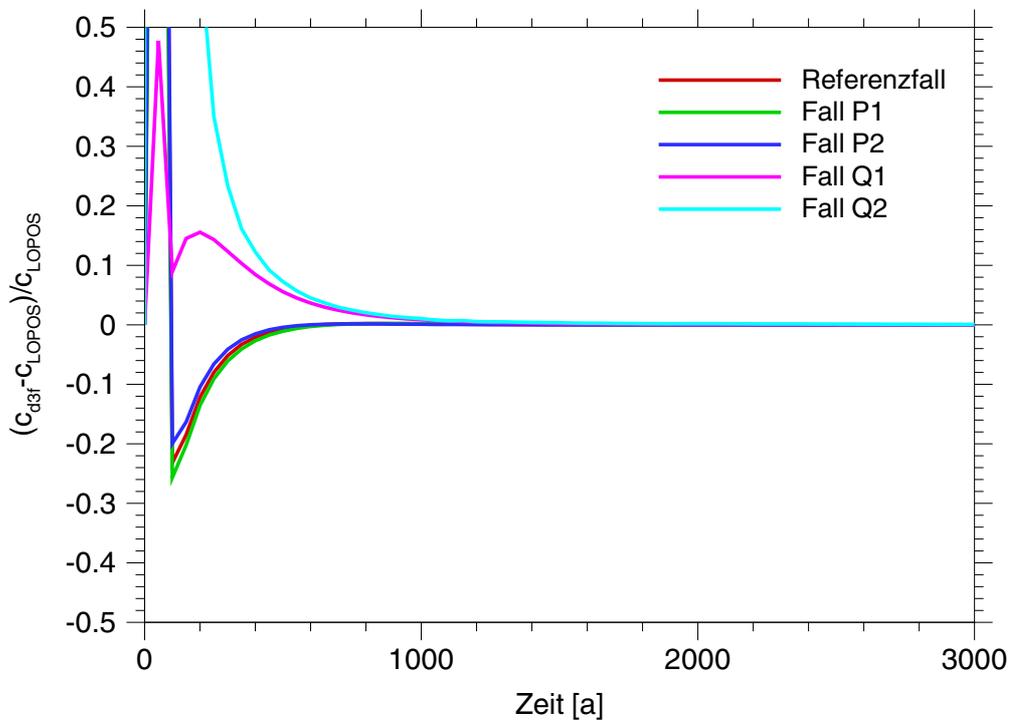


Abb. 4.13 Relativer Fehler in der Konzentration im Punkt M

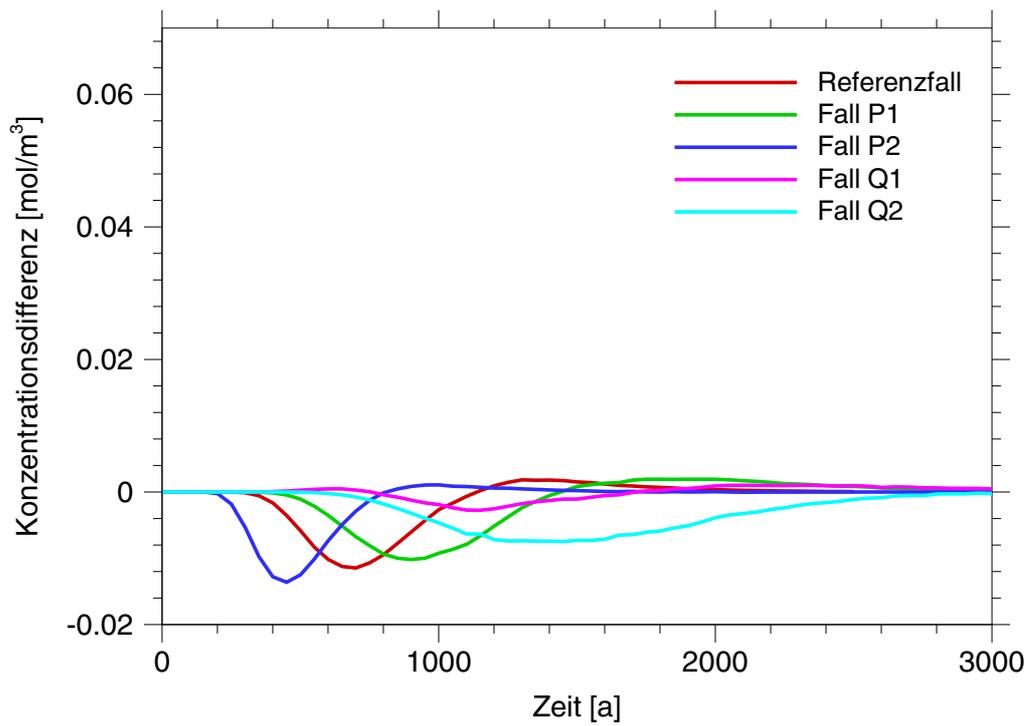


Abb. 4.14 Differenz der Konzentrationen $c_{d3f} - c_{LOPOS}$ im Punkt A

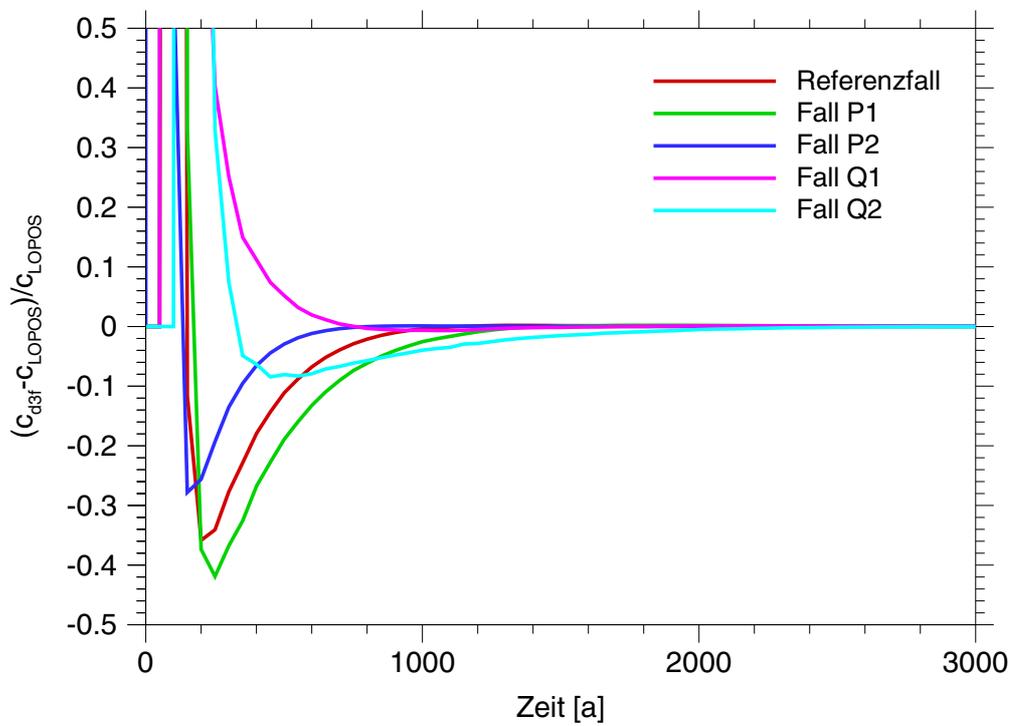


Abb. 4.15 Relativer Fehler in der Konzentration im Punkt A

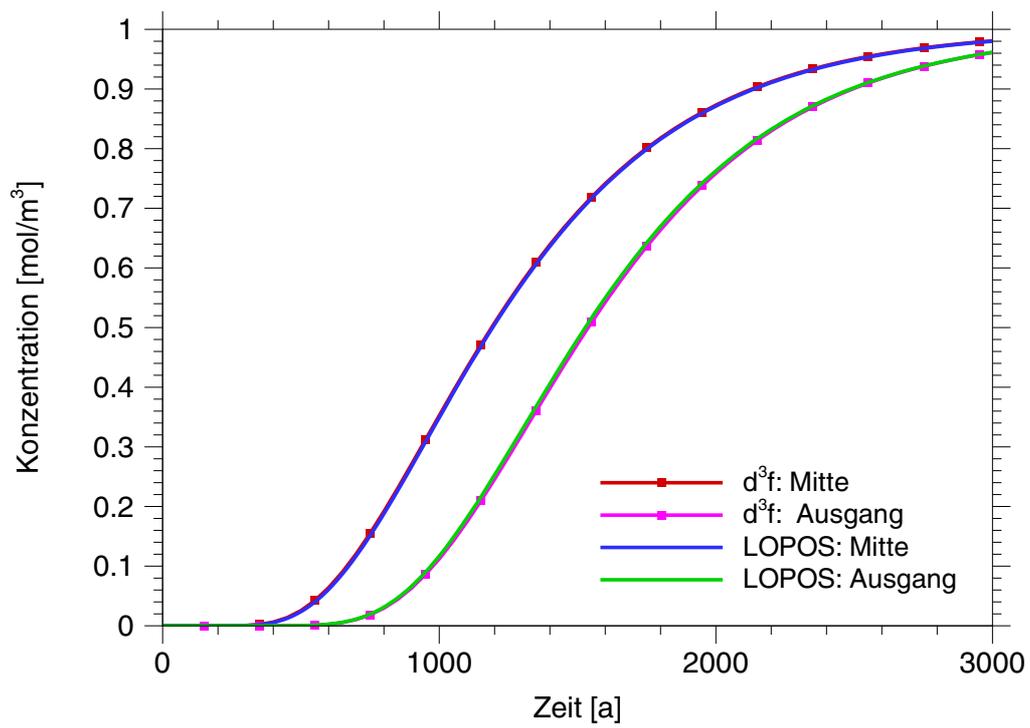


Abb. 4.16 Konzentrationsverläufe des Falles Q1

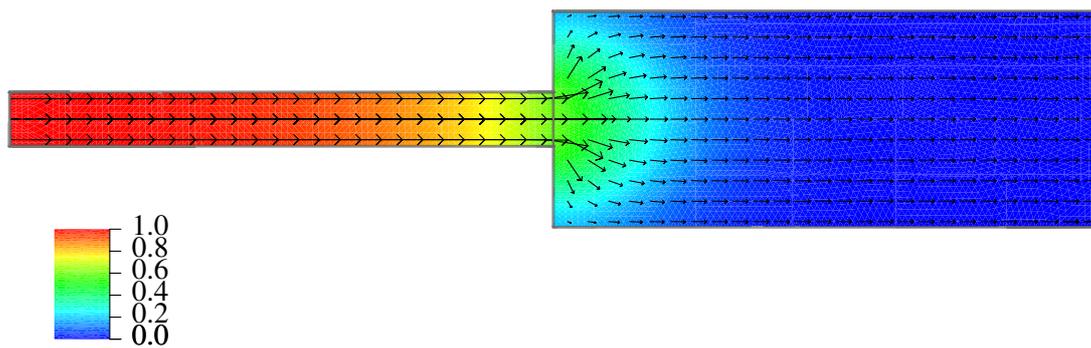


Abb. 4.17 Konzentrationsverteilung gemäß d^3f im Fall Q1 nach 300 Jahren

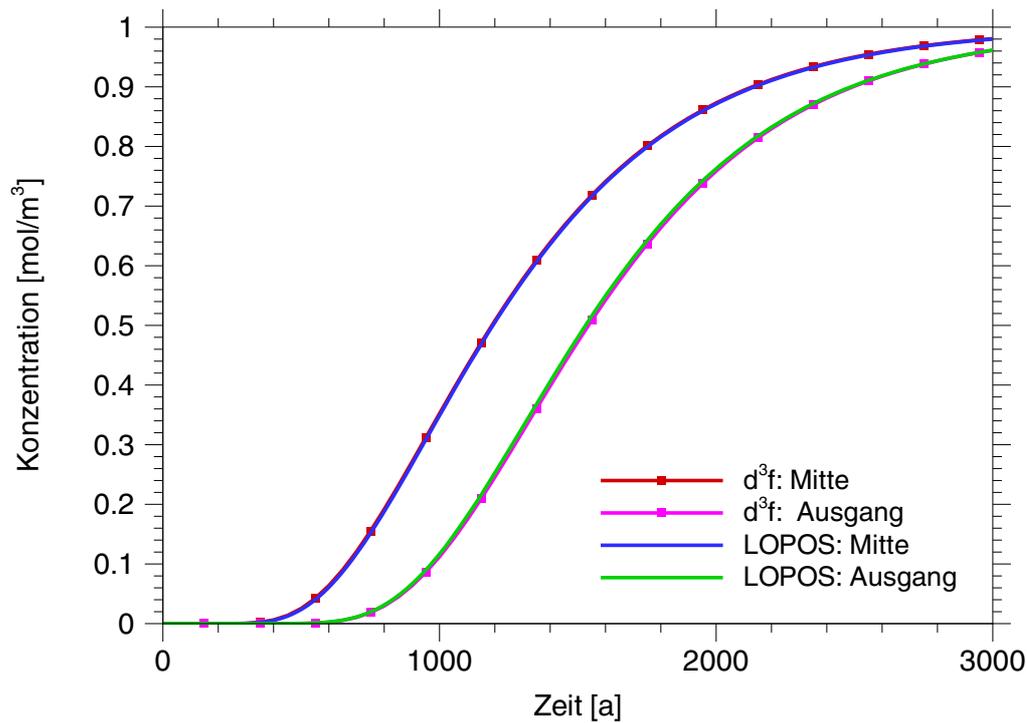


Abb. 4.18 Konzentrationsverläufe des Falles Q2

4.3 Zusammenfassung

Die vorgestellten Vergleichsrechnungen zeigen keine gravierenden Unterschiede zwischen den LOPOS- und 2d-Rechnungen in den dargestellten Testfällen. Dies belegt, dass die in LOPOS realisierte Modelldiskretisierung den Schadstofftransport in der Menge wie im Zeitverhalten korrekt abbildet. Dafür ist die durch die Grubengebäude bedingte röhrenartige Geometrie Voraussetzung, d. h. eine Segmentstruktur mit begrenzten Querschnitten, und Teilgebiete mit weitgehend homogenen Strömungs- und Transporteigenschaften und mit einer vorgegebenen Strömungsrichtung. Unter diesen Bedingungen bietet LOPOS die Möglichkeit der Simulation einer Schadstoffbewegung durch ein Grubengebäude im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalyse, der sich mit realisierbarem Aufwand bewältigen lässt.

5 Vergleich verschiedener Verfahren der probabilistischen Langzeitsicherheitsanalyse

Die bei Langzeitsicherheitsanalysen verwendeten Eingangsdaten sind mit Unsicherheiten behaftet, die zum Teil aus der Unvollkommenheit der Datenlage an sich resultieren, zum Teil aber auch aus der Schwierigkeit, Daten über sehr lange Zeiträume vorherzusagen. Demzufolge sind auch die Ergebnisse von Modellrechnungen zur Langzeitsicherheit von Endlagersystemen immer unsicher.

Durch probabilistische Analysen können derartige Unsicherheiten mathematisch abgeschätzt werden. Dazu wird eine Vielzahl von Einzelrechenläufen (Spiele) unter Variation unsicherer Eingangsdaten durchgeführt. Bei der Auswertung interessiert zum Einen die Streuung der Ergebnisse im Ganzen, woraus eine Aussage über die Unsicherheit des Gesamtsystems unter der gegebenen Datenlage abzuleiten ist. Dies wird als Unsicherheitsanalyse¹ (engl.: uncertainty analysis) bezeichnet. Zum Anderen ist eine Sensitivitätsanalyse (engl.: sensitivity analysis), also die Identifikation derjenigen Eingangsgrößen, deren Unsicherheiten einen hohen oder geringen Einfluss auf die Streubreite des Ergebnisses haben, nützlich für gezielte Anstrengungen zur Verbesserung der Datensituation.

Eine probabilistische Analyse besteht aus drei Schritten: Zunächst ist eine Stichprobenziehung vorzunehmen. Dazu wird für jede zu variierende Eingangsgröße eine Verteilungsfunktion vorgegeben. Bei korrelierten Größen sind die entsprechenden Korrelationskoeffizienten zu berücksichtigen. Nach einem für die beabsichtigte Auswertung geeigneten Verfahren werden Zahlenwerte für die Eingangsgrößen für eine vorgegebene Zahl von Spielen erzeugt. Im zweiten Schritt werden alle Spiele einzeln durchgerechnet. Der dritte Schritt besteht aus der gemeinsamen Auswertung der Ergebnisse aller Spiele. Sowohl für den ersten als auch für den dritten Schritt sind verschiedene statistische Verfahren mit spezifischen Vor- und Nachteilen bekannt.

¹ Im gegebenen Kontext könnte dieses Wort irreführend erscheinen, indem es einen semantischen Zusammenhang mit dem Begriff ‚Sicherheitsanalyse‘ (engl.: safety analysis) suggeriert, der natürlich nicht besteht. Da es sich aber um einen in der deutschsprachigen Fachliteratur eingeführten und durchgängig verwendeten Terminus handelt, soll hier nicht davon abgewichen werden.

Die Module des Programmpakets EMOS [6] stellen technisch die Möglichkeit bereit, eine vorgegebene Stichprobe von Eingangsdatensätzen in einer Folge von Einzelrechenläufen sukzessive abzuarbeiten. Dies wird durch einen zentralen Statistikrahmen gesteuert. Weiterhin umfasst das Paket einen Präprozessor, der die Stichprobenziehung vornimmt, sowie einen Postprozessor, der die Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse erlaubt. Während die implementierten Methoden der Unsicherheitsanalyse als hinreichend aussagekräftig angesehen werden können, ist den klassischen Verfahren der Sensitivitätsanalyse gemeinsam, dass sie streng genommen einen linearen Zusammenhang zwischen der jeweiligen Eingangs- und der Ausgangsgröße voraussetzen. Bei nicht-linear-monotonen Zusammenhängen ist mit Hilfe der Rangtransformation in vielen Fällen zumindest noch eine qualitative Sensitivitätsaussage möglich. Mit diesem Werkzeug wurden bereits in den 80er und frühen 90er Jahren probabilistische Sicherheitsanalysen durchgeführt [43, 7].

In den vergangenen Jahren wurden verschiedene Verfahren entwickelt, die eine quantitative Sensitivitätsanalyse auch bei Vorliegen hochgradig nichtlinearer und nichtmonotoner Zusammenhänge erlauben [35]. Gerade bei so komplexen Systemen wie Endlagern für radioaktive Abfälle sind derartige Zusammenhänge zu erwarten. Es ist daher sinnvoll, die Möglichkeiten des Programmpakets EMOS in dieser Hinsicht zu erweitern.

Ziel der in diesem Kapitel dargestellten Arbeiten war zunächst, die technische Möglichkeit der Anwendung moderner probabilistischer Verfahren im Rahmen des Programmpakets EMOS zu schaffen. Dies wurde mithilfe der Software SimLab [40] realisiert. Weiterhin war eine kritische Überprüfung der im Programmpaket EMOS implementierten probabilistischen Auswerteverfahren durch Vergleich mit moderneren Methoden in Hinblick auf zukünftige probabilistische Analysen vorzunehmen.

Auf die Methoden der Stichprobenziehung und der Unsicherheitsanalyse wird in diesem Bericht nicht eingegangen, dazu sei z. B. auf die Darstellung in [35] verwiesen. Im Folgenden werden zunächst die Grundlagen einiger klassischer Verfahren der Sensitivitätsanalyse in knapper Form zusammengefasst. Anschließend werden zwei moderne Verfahren, die Methode nach Sobol und der *Fourier Amplitude Sensitivity Test* (FAST), untersucht und verglichen. Die FAST- Methode wird schließlich anhand von zwei Beispielen den klassischen Verfahren gegenüber gestellt und bewertet.

5.1 Terminologie

An dieser Stelle sollen zunächst einige im Folgenden verwendete Begriffe definiert und erläutert werden.

Ein numerisches Modell hängt von einer Anzahl von unabhängigen Variablen oder **Eingangsgrößen** ab und erzeugt eine abhängige Variable oder **Ausgangsgröße** als mathematische Funktion der Eingangsgrößen. Der Zusammenhang ist eindeutig, d. h. identische Zahlenwerte für die Eingangsgrößen liefern stets dasselbe Ergebnis für die Ausgangsgröße. Es wird immer nur eine Ausgangsgröße betrachtet.

Der Zusammenhang zwischen der Ausgangsgröße Y und den Eingangsgrößen X_i eines numerischen Modells ist **linear**, wenn alle partiellen Differentialquotienten $(\partial Y)/(\partial X_i)$ konstant sind. Wenn die partiellen Differentialquotienten zumindest ihr jeweiliges Vorzeichen stets beibehalten, ist der Zusammenhang **monoton**. Bei einfacher Monotonie können die Differentialquotienten auch den Wert null annehmen, bei strenger Monotonie ist dies ausgeschlossen.

Eine Eingangsgröße, deren Zahlenwert zufallsabhängig ist, wird als **Zufallsgröße** bezeichnet. Die Zufallsabhängigkeit kann von z. B. einem ungenauen Messverfahren herrühren. Wenn ein Modell von mehreren Zufallsgrößen abhängt, bilden diese einen **Zufallsvektor**. Ein einzelner, unter Zufallseinfluss ermittelter Zahlenwert einer Zufallsgröße oder eines Zufallsvektors heißt eine **Realisierung**. Unter einer **Stichprobe** vom Umfang N wird ein Satz von N Realisierungen einer Zufallsgröße oder eines Zufallsvektors verstanden. In der probabilistischen Numerik werden Eingangsgrößen, deren Zahlenwert nicht genau quantifiziert werden kann oder soll, als Zufallsgrößen behandelt.

Jede Zufallsgröße X unterliegt einer charakteristischen **Verteilungsdichte** f_X . Das Integral $\int_a^b f_X(x) dx$ gibt die Wahrscheinlichkeit dafür an, dass eine Realisierung von X im Intervall zwischen a und b liegt. $E(X) = \bar{X} = \int_{-\infty}^{\infty} x f_X(x) dx$ heißt **Erwartungswert** von X .

5.2 Klassische Verfahren der Sensitivitätsanalyse

Die folgenden Verfahren werden in diesem Kapitel dargestellt:

- Korrelationskoeffizienten nach Pearson bzw. Spearman,
- standardisierte Regression,
- partielle Korrelationskoeffizienten,
- Smirnov-Test.

Bis auf den Smirnov-Test können diese Verfahren sowohl auf Basis der tatsächlichen Werte als auch auf Rangbasis durchgeführt werden. Auswertung auf Rangbasis bedeutet, dass die bei den einzelnen Spielen verwendeten Stichprobenwerte sowie die errechneten Werte der Ausgangsgröße jeweils in einer Rangliste nach ihren Zahlenwerten sortiert und dann durch ihren Listenplatz, d. h. ihren Rang, ersetzt werden. Identische Stichprobenwerte erhalten als Rangzahl ggf. das arithmetische Mittel derjenigen Ränge, die sie bei leichter Verschiedenheit belegen würden. Durch dieses Verfahren wird ein monotoner Zusammenhang in einen linearen überführt, wobei allerdings die genaue quantitative Beziehung verlorengeht. Da bei Modellrechnungen zur Langzeitsicherheit von Endlagern im Allgemeinen nichtlineare Zusammenhänge erwartet werden, sind im statistischen Postprozessor des Programmpakets EMOS nur die rangbasierten Verfahren implementiert.

Im Folgenden sei angenommen, das zu analysierende Modell hänge von k Zufallsgrößen X_1, \dots, X_k ab und produziere eine Ausgangsgröße Y (z. B. die Summendosisrate zu einem bestimmten Zeitpunkt). Es sei nun eine Stichprobe von N Realisierungen des Zufallsvektors gegeben, die mit (x_{1i}, \dots, x_{ki}) , $i=1, \dots, N$ bezeichnet werden. Die Ausgangsgröße nehme damit die Werte y_i , $i=1, \dots, N$ an. Die Sortierung in Ranglisten liefere für die Eingangsgröße X_j die Rangzahlen r_{ji} . Das bedeutet z. B. $r_{ji} = 1$, wenn der Wert x_{ji} die größte in der Stichprobe vorkommende Realisierung der Eingangsgröße X_j ist, $r_{ji} = 2$ für den zweitgrößten Wert, u.s.w. Die Rangzahlen der Ausgangsgröße seien mit s_i bezeichnet.

5.2.1 Korrelationskoeffizient nach Pearson bzw. Spearman

Eine lineare statistische Korrelation zweier Größen kann durch den Korrelationskoeffizienten nach Pearson beschrieben werden [35]. Seine Definition lautet z. B. für die Eingangsgröße X_j und die Ausgangsgröße Y

$$\rho(X_j, Y) = \frac{\sum_{i=1}^N (x_{ji} - \bar{X}_j)(y_i - \bar{Y})}{\sqrt{\sum_{i=1}^N (x_{ji} - \bar{X}_j)^2 \sum_{i=1}^N (y_i - \bar{Y})^2}}, \quad (5.1)$$

wobei \bar{X}_j und \bar{Y} die statistischen Erwartungswerte der Variablen bezeichnen. Der Korrelationskoeffizient kann Werte zwischen -1 und 1 annehmen, wobei die Grenzen für streng linear korrelierte Größen gelten. Bei unkorrelierten Größen wird er null. Negative Werte bedeuten eine inverse Korrelation, d. h. Zunahme der einen ist mit Abnahme der anderen Größe verbunden.

Berechnet man den Korrelationskoeffizienten für die Rangzahlen, so erhält man den Rang-Korrelationskoeffizienten nach Spearman. Man kann zeigen, dass sich dieser auch nach der einfacheren Formel

$$\rho_j = 1 - \frac{6}{N(N^2 - 1)} \sum_{i=1}^N (r_{ji} - s_i)^2 \quad (5.2)$$

berechnen lässt. Der numerische Wert von ρ_j kann zum Testen der Hypothese „es existiert keine Korrelation zwischen X_j und Y “ herangezogen werden. Zueiner vorgegebenen Signifikanzzahl α wird die Hypothese dann abgelehnt, wenn der Betrag von ρ_j größer ist als das entsprechende Quantil $W_N(1-\alpha/2)$ der Testverteilung. Für hinreichend große Stichprobenumfänge ($N > 30$) gilt

$$W_N(1 - \alpha / 2) = \frac{x_{1 - \alpha / 2}}{\sqrt{N - 1}}, \quad (5.3)$$

mit den Quantilen $x_{1-\alpha/2}$ der Standardnormalverteilung nach Tabelle 5.1. Dieser Signifikanztest wird als Spearman-Test bezeichnet. Die damit als signifikant identifizierten Parameter können anschließend in eine Bedeutungsrangfolge entsprechend der Werte des Rang-Korrelationskoeffizienten gebracht werden.

Tab. 5.1 Quantile der Standardnormalverteilung

α	0,2	0,1	0,05	0,02	0,01
$x_{1-\alpha/2}$	1,2816	1,6449	1,9600	2,3263	2,5758

5.2.2 Standardisierte Regression

Ein lineares Regressionsverfahren beruht auf dem Versuch, das zu analysierende Modell möglichst gut durch eine lineare Schätzfunktion wiederzugeben:

$$\hat{Y} = b_0 + \sum_{j=1}^k b_j X_j. \quad (5.4)$$

Für jeden Parametersatz aus der Stichprobe ergibt sich dann ein absoluter Fehler ε_i :

$$y_i = b_0 + \sum_{j=1}^k b_j x_{ji} + \varepsilon_i = \hat{y}_i + \varepsilon_i. \quad (5.5)$$

Die Koeffizienten $b_j, j = 0, \dots, k$ sind so zu bestimmen, dass der gesamte Fehler minimal wird, was üblicherweise nach der Methode der kleinsten Quadrate geschieht, d. h.:

$$\sum_{i=1}^N \varepsilon_i^2 = \min. \quad (5.6)$$

Die Koeffizienten b_1, \dots, b_k stellen dann ein Maß für die Sensitivität der Ausgangsgröße Y gegenüber Variationen der Eingangsgrößen X_1, \dots, X_k dar. Um eine einheitliche Bewertung dieser Maßzahlen zu ermöglichen, werden die Parameter so transformiert, dass sie den Erwartungswert 0 und die Standardabweichung 1 erhalten, d. h. Gleichung 5.4 wird umgeschrieben in die Form

$$\frac{\hat{Y} - \bar{Y}}{\hat{s}} = \sum_{j=1}^k \frac{b_j \hat{s}_j}{\hat{s}} \cdot \frac{X_j - \bar{X}_j}{\hat{s}_j} \quad (5.7)$$

mit

$$\bar{Y} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \hat{y}_i, \quad \bar{X}_j = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N x_{ji},$$

$$\hat{s} = \left(\sum_{i=1}^N \frac{(\hat{y}_i - \bar{Y})^2}{N-1} \right)^{1/2} \quad \text{und} \quad \hat{s}_j = \left(\sum_{i=1}^N \frac{(x_{ji} - \bar{X}_j)^2}{N-1} \right)^{1/2}. \quad (5.8)$$

Die Koeffizienten $(b_j \hat{s}_j) / \hat{s}$ heißen standardisierte Regressionskoeffizienten (SRCs). Sie liegen immer im Bereich zwischen -1 und +1, wobei negative Werte eine inverse Korrelation anzeigen. Wird diese Analyse mit den rangtransformierten Größen durchgeführt, erhält man die standardisierten Rangregressionskoeffizienten (SRRCs).

Der so genannte Koeffizient der Modellbestimmtheit

$$R^2 = \left(\sum_{i=1}^N (\hat{y}_i - \bar{y})^2 \right) / \left(\sum_{i=1}^N (y_i - \bar{y})^2 \right) \quad (5.9)$$

zeigt an, wie gut das Modell durch die lineare Regression wiedergegeben wird. Man kann zeigen, dass der Wert immer zwischen 0 und 1 liegt, wobei die 1 nur erreicht wird, wenn der Schätzer exakt ist, also $\hat{y}_i = y_i$ für alle i gilt. Ein Wert nahe 0 bedeutet, dass der Schätzer immer in die unmittelbare Nähe des Mittelwertes führt, also eine sehr geringe Aussagekraft besitzt.

5.2.3 Partielle Korrelation

Wenn bereits die Eingangsgrößen X_1, \dots, X_k in der Stichprobe untereinander statistische Korrelationen aufweisen, was z. B. durch ein entsprechendes Ziehungsverfahren bewusst herbeigeführt worden sein kann, existiert eine Kopplung ihrer Einflüsse auf die Ausgangsgröße. Die bisher beschriebenen Methoden der Sensitivitätsanalyse können diese Kopplung nicht auflösen, d. h. sie beschreiben den gesamten Einfluss einer Eingangsgröße auf die Ausgangsgröße inklusive des indirekten Einflusses über andere Eingangsgrößen. Um die Einflüsse zu trennen, kann man zwei Regressionsansätze machen:

$$\begin{aligned} \hat{X}_j &= c_{j0} + \sum_{p=1, p \neq j}^k c_{jp} X_p \quad \text{und} \\ \hat{Y} &= b_0 + \sum_{p=1, p \neq j}^k b_p X_p. \end{aligned} \quad (5.10)$$

Damit werden die Einflüsse aller von X_j verschiedenen Eingangsgrößen auf X_j sowie auf die Ausgangsgröße charakterisiert. Der partielle Korrelationskoeffizient (PCC) zwischen X_j und Y ist definiert als der Korrelationskoeffizient zwischen den Fehlern $(X_j - \hat{X}_j)$ und $(Y - \hat{Y})$ dieser Schätzwerte. Er kann als Maß für die Sensitivität der Ausgangsgröße gegenüber der Eingangsgröße allein, d. h. reduziert um alle Fremdeinflüsse, angesehen werden. Man kann zeigen, dass diese Koeffizienten im Fall unkorrelierter Eingangsgrößen mit den standardisierten Regressionskoeffizienten übereinstimmen. Wendet man das Verfahren auf die rangtransformierten Größen an, erhält man die partiellen Rangkorrelationskoeffizienten (PRCCs).

5.2.4 Smirnov-Test

Der Smirnov-Test prüft, ob ein Parameter X_j signifikanten Einfluss auf die Ausgangsgröße Y hat. Dazu wird die Gesamtheit aller Werte von X_j , $\{x_{ji} \mid i = 1, \dots, N\}$, entsprechend dem 90%-Quantil der Verteilung der Ausgangsgröße in zwei Teilmengen aufgeteilt, d. h. diejenigen Werte des Eingangsparameters, die zu den 10 % der Spiele mit den höchsten Ausgangswerten führten, werden von den restlichen abgetrennt. Wenn nun beide Teilmengen keinen signifikanten Unterschied in der Werteverteilung zeigen, kann man folgern, dass der betrachtete Parameter keinen nennenswerten Einfluss auf das Ergebnis hat. Um dies zu beurteilen, werden zunächst die empirischen Häufigkeitsverteilungen F_{j1} und F_{j2} der beiden Teilmengen ermittelt. Als Testgröße wird die maximale absolute Differenz

$$T_{Y, X_j} = \max_x |F_{j1}(x) - F_{j2}(x)| \quad (5.11)$$

verwendet. Die Hypothese gleicher Verteilungen wird dann abgelehnt, wenn der ermittelte Wert der Testgröße beim Signifikanzniveau α das $1-\alpha$ -Quantil $k_{N_1, N_2, 1-\alpha}$ der Testverteilung übersteigt. Dafür gilt näherungsweise [9]:

$$k_{N_1, N_2, 1-\alpha} \approx \lambda_{1-\alpha} \sqrt{\frac{N_1 + N_2}{N_1 N_2}} \quad (5.12)$$

mit den Quantilen der Kolmogorov-Verteilung gemäß Tabelle 5.2.

Eine Bedeutungsrangfolge der Eingangsparameter kann aufgrund der Größe der Testwerte nach (5.11) aufgestellt werden. Eine detailliertere Darstellung dieser Methode findet sich in [9].

Tab. 5.2 Quantile der Kolmogorov-Verteilung

α	0,2	0,1	0,05	0,02	0,01
$\lambda_{1-\alpha}$	1,07	1,22	1,36	1,52	1,63

5.2.5 Bewertung der klassischen Verfahren

Die vier in diesem Kapitel beschriebenen Verfahren der Sensitivitätsanalyse stehen derzeit für die Auswertung probabilistischer Modellrechnungen zur Langzeitsicherheit von Endlagern mit dem Programmpaket EMOS zur Verfügung. Bis auf den Smirnov-Test sind sie in ihrer rangbasierten Form implementiert, um den erwarteten nichtlinearen Zusammenhängen gerecht zu werden. Alle Methoden sind zur Aufstellung von Bedeutungsranklisten geeignet, liefern jedoch nur mehr oder weniger qualitative Sensitivitätsaussagen. Insbesondere der Smirnov-Test ist bei geringen Stichprobenumfängen wenig robust und wird daher, ebenso wie verwandte Verfahren, heute nicht mehr empfohlen [35].

Beim Vorliegen unkorrelierter Eingangsgrößen führen die standardisierten Rangregressionskoeffizienten und die partiellen Rangkorrelationskoeffizienten zum selben Ergebnis und müssen nicht einzeln untersucht werden. In diesem Fall genügt eine Analyse der Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman und der standardisierten Rangregressionskoeffizienten. Sofern die Eingangsgrößen eine statistische Korrelation aufweisen, kann zusätzlich die Berechnung der partiellen Rangkorrelationskoeffizienten von Interesse sein.

Die Berechnung der Korrelations- und Regressionskoeffizienten beruht auf der Annahme, dass der Zusammenhang zwischen Eingangs- und Ausgangsgröße wenigstens annähernd linear ist. Bei exakter Linearität würden diese Verfahren schon bei geringer Spieleanzahl exakte Ergebnisse liefern. Je mehr das Modell von der exakten Linearität abweicht, desto kleiner wird der Koeffizient R^2 der Modellbestimmtheit. Dieser wurde zwar im Zusammenhang mit den Regressionskoeffizienten definiert, seine Aussage gilt aber auch für die Korrelationskoeffizienten, da diese ebenfalls auf einem linearen Ansatz beruhen.

Durch die Rangtransformation kann der Koeffizient der Modellbestimmtheit in vielen Fällen deutlich erhöht werden. Dabei geht jedoch der direkte Bezug zwischen den Eingangsgrößen und der Ausgangsgröße verloren. Dadurch wird zwar eine sinnvolle Analyse nichtlinearer Zusammenhänge ermöglicht, andererseits dürfen die Ergebnisse nur qualitativ gesehen werden, d. h. sie können zur Aufstellung einer Bedeutungsrangfolge herangezogen werden, sollten aber nicht als Maß für den tatsächlichen Einfluss der Schwankungsbreite einer Eingangsgröße auf diejenige der Ausgangsgröße verstanden werden.

Bei nichtmonotonen Zusammenhängen, wenn also das Vergrößern eines Eingangsparameters unter bestimmten Bedingungen eine Zunahme der Ausgangsgröße und unter anderen Voraussetzungen eine Abnahme bewirkt, können die beschriebenen Methoden im Allgemeinen keine verlässlichen Aussagen mehr liefern.

5.3 Varianzbasierte Methoden der Sensitivitätsanalyse

Angesichts der erwähnten Nachteile der im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Verfahren wurden verschiedene Methoden entwickelt, die aus der Varianz der Ausgangsgröße Maßzahlen für die Größe des Einflusses einer Zufallsgröße ableiten [35]. Derartige, so genannte Bedeutungsmaße (engl.: measures of importance) liefern eine quantitative, d. h. über die bloße Festlegung einer Rangfolge hinausgehende Aussage über die Stärke des Einflusses der betrachteten Eingangs- auf die Ausgangsgröße. Solche Verfahren setzen keinen linearen oder monotonen Zusammenhang voraus.

An dieser Stelle sei an die Definition des Erwartungswertes $E(Z)$ einer mit der Verteilungsdichte f verteilten Variablen Z

$$E(Z) = \int_{-\infty}^{\infty} z \cdot f(z) dz \quad (5.13)$$

sowie der Varianz

$$\text{Var}(Z) = E[(Z - E(Z))^2] = E(Z^2) - (E(Z))^2 \quad (5.14)$$

erinnert. Ein wichtiges Bedeutungsmaß ist definiert durch

$$\frac{\text{Var}_{X_j}[E(Y | X_j = \text{const.})]}{\text{Var}(Y)}, \quad (5.15)$$

wobei mit $E(Y | X_j = \text{const.})$ der Erwartungswert der Ausgangsgröße Y unter der Nebenbedingung, dass die Eingangsgröße X_j konstant gehalten wird, gemeint ist. Dieser Erwartungswert wird mit X_j variiert, die Varianz wird dann ins Verhältnis zur totalen Varianz der Ausgangsgröße gesetzt.

5.3.1 Sensitivitätsindizes nach Sobol

Mithilfe der so genannten Sobol-Indizes ist es möglich, den Einfluss jedes einzelnen Eingangsparameters sowie jeder beliebigen Kombination von Parametern auf die Ausgangsgröße genau zu quantifizieren und miteinander zu vergleichen. Diese Indizes folgen aus einer eleganten mathematischen Theorie, die im Folgenden kurz umrissen wird [35, 36].

Zunächst wird der Raum der Eingangsvariablen auf den k -dimensionalen Einheitswürfel transformiert, d. h. für alle Variablen X_j gilt $0 \leq X_j \leq 1$. Das zu analysierende Modell werde durch eine Funktion $f: [0,1]^k \rightarrow \mathbb{R}$ beschrieben, es gilt also

$$Y = f(X_1, \dots, X_k). \quad (5.16)$$

Der Ansatz besteht nun darin, diese Funktion nach Termen ansteigender Dimensionalität zu zerlegen:

$$f(X_1, \dots, X_k) = f_0 + \sum_{j=1}^k f_j(X_j) + \sum_{1 \leq j_1 < j_2 \leq k} f_{j_1 j_2}(X_{j_1}, X_{j_2}) + \dots + f_{12\dots k}(X_1, \dots, X_k) \quad (5.17)$$

Eine solche Zerlegung ist stets möglich und eindeutig, wobei f_0 eine Konstante ist, und das Integral jeder Teilfunktion über eine ihrer eigenen Variablen verschwindet:

$$\int_0^1 f_{j_1 \dots j_p}(X_{j_1}, \dots, X_{j_p}) dX_{j_q} = 0 \quad \text{für } 1 \leq q \leq p. \quad (5.18)$$

Daraus folgt, dass die Summanden aus (5.17) ein orthogonales Funktionensystem bilden:

$$\int_{[0,1]^k} f_{j_1 \dots j_p}(X_{j_1}, \dots, X_{j_p}) f_{l_1 \dots l_q}(X_{l_1}, \dots, X_{l_q}) d^k X = 0$$

für $(j_1, \dots, j_p) \neq (l_1, \dots, l_q)$. (5.19)

Die einzelnen Funktionen können aus der Gesamtfunktion f bestimmt werden:

$$f_j(x_j) = -f_0 + \int_{[0,1]^{k-1}} f(X) d^{k-1} X_{-(j)}$$

$$f_{j_1 j_2}(x_{j_1}, x_{j_2}) = -f_0 - f_{j_1}(x_{j_1}) - f_{j_2}(x_{j_2}) - \int_{[0,1]^{k-2}} f(X) d^{k-2} X_{-(j_1 j_2)},$$
 (5.20)

wobei $-(j)$ und $-(j_1 j_2)$ für diejenigen Indextmengen stehen, die alle Indizes außer j bzw. j_1 und j_2 enthalten. Entsprechende Ausdrücke gelten für die höheren Terme.

Der Erwartungswert der Funktion f ist f_0 , und für ihre Varianz D gilt

$$D = \text{Var}(f) = \int_{[0,1]^k} f^2(X_1, \dots, X_k) d^k X - f_0^2.$$
 (5.21)

Mit den Funktionen aus (5.17) können partielle Varianzen definiert werden:

$$D_{j_1 \dots j_p} = \int_0^1 \dots \int_0^1 f_{j_1 \dots j_p}^2(X_{j_1}, \dots, X_{j_p}) d^p X.$$
 (5.22)

Man kann nun zeigen, dass die totale Varianz gleich der Summe aller partiellen Varianzen ist:

$$D = \sum_{j=1}^k D_j + \sum_{1 \leq j_1 \leq j_2 \leq k} D_{j_1 j_2} + \dots + D_{12\dots k} . \quad (5.23)$$

Die Sobol-Indizes erhält man, indem man die partiellen Varianzen durch die totale dividiert, sodass sie sich zu 1 summieren:

$$S_{j_1 \dots j_p} = \frac{D_{j_1 \dots j_p}}{D} \quad \text{für } 1 \leq j_1 < \dots < j_p \leq k , \quad (5.24)$$

$$\sum_{j=1}^k S_j + \sum_{1 \leq j_1 \leq j_2 \leq k} S_{j_1 j_2} + \dots + S_{12\dots k} = 1 . \quad (5.25)$$

Diese Indizes zeigen demnach an, welchen Anteil jede mögliche Kombination von Eingangsparametern an der Gesamtvarianz der Ausgangsgröße hat. Die Indizes 1. Ordnung, d. h. $S_j, j = 1, \dots, k$, quantifizieren den isolierten Einfluss der einzelnen Eingangsparameter auf die Ausgangsgröße. Von besonderem Interesse sind weiterhin die totalen Sensitivitätsindizes (TSIs). Für die Eingangsgröße X_j ist der TSI definiert durch die Summe der Indizes aller Ordnungen, die von X_j abhängen. Damit erhält man ein quantitatives Maß für den totalen Einfluss jedes Parameters auf die Ausgangsgröße, inklusive aller Wechselwirkungen mit anderen Parametern. Die Sobol-Indizes eignen sich gut für eine grafische Darstellung in Form eines Tortendiagramms, an dem man dann leicht die Bedeutung einzelner Parameter oder Parameterkombinationen ablesen kann. Das ist auch für die TSIs möglich, dabei ist allerdings zu beachten, dass diese sich i. A. nicht zu 1 addieren, da die Mischterme in mehrere TSIs einfließen.

5.3.2 Berechnung der Sobol- Indizes

Bei Vorliegen einer Stichprobe von N Realisierungen der Eingangsvariablen X_1, \dots, X_k , $\mathbf{x}_i = (x_{1i}, \dots, x_{ki})$, $i = 1, \dots, N$, können Schätzer für den Erwartungswert f_0 und die Varianz D leicht ermittelt werden:

$$\hat{f}_0 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f(\mathbf{x}_i), \hat{D} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f^2(\mathbf{x}_i) - \hat{f}_0^2. \quad (5.26)$$

Schwieriger gestaltet sich dagegen die Berechnung der partiellen Varianzen. Aus (5.20) kann man Schätzer für D_j ableiten:

$$\hat{D}_j = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f(\mathbf{x}_{-(j)i}^{(1)} x_{ji}^{(1)}) f(\mathbf{x}_{-(j)i}^{(2)} x_{ji}^{(2)}) - \hat{f}_0^2. \quad (5.27)$$

Darin bedeutet $\mathbf{x}_{-(j)i}$ den um die j -te Komponente reduzierten Variablenvektor in der i -ten Realisierung. Die oberen Indizes ⁽¹⁾ und ⁽²⁾ bedeuten, dass zwei verschiedene Stichproben benötigt werden, bei denen die j -te Komponente jeweils übereinstimmt. Daran ist zu erkennen, dass bereits für die Berechnung aller \hat{D}_j eine große Zahl von Modellauswertungen erforderlich ist. Für höhere Koeffizienten wird die Berechnung noch aufwendiger. Eine vollständige Sobol-Analyse bei höherer Parameterzahl ist daher in der Praxis kaum möglich.

Von Interesse für die Berechnung der TSIs ist noch der Koeffizient $D_{-(j)}$. Ein Schätzer dafür ergibt sich nach der Formel

$$\hat{D}_{-(j)} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N f(\mathbf{x}_{-(j)i} x_{ji}^{(1)}) f(\mathbf{x}_{-(j)i} x_{ji}^{(2)}) - \hat{f}_0^2. \quad (5.28)$$

Hierfür werden wieder zwei Stichproben benötigt, die diesmal in allen Komponenten außer der j -ten übereinstimmen. Einen Schätzer für den TSI erhält man dann aus der Differenz $\hat{D} - \hat{D}_{-(j)}$.

5.3.3 Die FAST Methode

Der Fourier Amplitude Sensitivity Test (FAST) [35, 36, 37] erlaubt die Bestimmung von Sensitivitätsindizes mit deutlich weniger Aufwand als bei der Sobol-Methode. Anstelle einer zufällig gezogenen Stichprobe wird dabei ein systematischer Scan des k -dimensionalen Variablenraums verwendet, der durch die parametrischen Gleichungen

$$x_j(s) = G_j(\sin(\omega_j s)) , j = 1, \dots, k \quad (5.29)$$

festgelegt ist. Der Parameter s wird dabei schrittweise variiert. Die Funktionen G_j sind mehr oder weniger frei wählbar und können genutzt werden, um den Variablenraum besser abzudecken. Die Periodizität der Eingangsgrößen wird sich auf die Ausgangsgröße übertragen. Die Idee besteht nun darin, die Ausgangsgröße einer Fourier-Analyse zu unterziehen. Dabei werden die Frequenzen ω_j jeweils gemeinsam mit ihren ganzzahligen Vielfachen erfasst. Wählt man die Frequenzen so, dass es in dieser Beziehung keine Überschneidungen gibt, können die Einflüsse der einzelnen Variablen X_j auf die Ausgangsgröße separiert werden. Um den gemeinsamen Einfluss mehrerer Variablen zu ermitteln, können aber auch mehrere Frequenzen auf gleiche Werte oder Vielfache voneinander gesetzt werden. Die höchste Frequenz, die mit einer diskreten Stichprobe von N Werte noch erfasst werden kann, ist

$$\omega_{\max} = (N-1)/2. \quad (5.30)$$

Daraus ergibt sich umgekehrt die erforderliche Zahl von Spielen, wenn die Frequenzen vorgegeben sind. Dabei muss eine hinreichend hohe Anzahl von Oberschwingungen mit erfasst sein.

Mit der FAST Methode können theoretisch beliebige Ordnungen von Sensitivitätsindizes berechnet werden, die dann bei hinreichend hoher Anzahl von Spielen mit den Sobol-Indizes übereinstimmen. Dafür ist allerdings mit steigender Parameterzahl eine zunehmend sorgfältige Auswahl der verwendeten Frequenzen erforderlich, und die Zahl der zu rechnenden Spiele wird dementsprechend hoch.

Die mathematischen und rechentechnischen Details der Methode sollen an dieser Stelle nicht näher ausgeführt werden, siehe dazu [36]. Im Folgenden werden stattdessen die Besonderheiten einer von Saltelli vorgeschlagenen und in der Software SimLab [40] integrierten speziellen Umsetzung der Methode erläutert.

Bei der hier beschriebenen speziellen Form der FAST Analyse wird nur mit zwei verschiedenen Grundfrequenzen gearbeitet. Der Eingangsvariablen x_i wird die höhere Frequenz ω_i zugewiesen, alle übrigen werden mit der niedrigen Frequenz $\omega_{-(i)}=1$ oder einer relativ kleinen ganzzahligen Vielfachen davon variiert. ω_i muss deutlich größer sein als das größte verwendete Vielfache von $\omega_{-(i)}$. Bei Vorgabe des Stichprobenumfangs erfolgt die genaue Bestimmung der Frequenzen und ihre Zuweisung zu den einzelnen Parametern durch einen bestimmten Algorithmus unter den Nebenbedingungen, dass möglichst viele verschiedene Vielfache der Grundfrequenz verwendet werden und der erlaubte Bereich möglichst optimal ausgenutzt wird [36].

Zur Ermittlung der Parameterstichprobe wird zunächst der Parameterraum unter Beachtung der Verteilungsfunktionen auf die Menge $[0,1]^k$ transformiert. Dann wird ein äquidistantes Sampling längs der Kurve mit der Parametrisierung

$$\begin{aligned}
 x_i &= \frac{1}{2} + \frac{1}{\pi} \operatorname{asin}(\sin(\omega_i s + \varphi_i)) \\
 x_j &= \frac{1}{2} + \frac{1}{\pi} \operatorname{asin}(\sin(n_j \omega_{-(i)} s + \varphi_j)) \text{ für } j \neq i.
 \end{aligned}
 \tag{ 5.31 }$$

durchgeführt, d. h. der Parameter s wird im Intervall $(-\pi, \pi)$ schrittweise variiert, sodass sich der gewünschte Stichprobenumfang ergibt. Die Phasenverschiebungen φ_i werden zufällig gewählt, um bei wiederholtem Sampling unterschiedliche Stichprobenwerte zu erhalten. Mit der genannten Parametrisierung ergibt sich, sofern die Frequenzen nach dem erwähnten Algorithmus ausgewählt wurden, eine abschnittsweise lineare Kurve im transformierten Parameterraum, die diesen so gut wie eben möglich abdeckt.

Da mit einer Parametrisierung der beschriebenen Art nur jeweils eine Eingangsgröße getrennt von den übrigen erfasst werden kann, werden für eine vollständige Analyse so viele Teilstichproben erzeugt, wie Eingangsgrößen vorhanden sind. Der vorgegebene Gesamtumfang der Stichprobe wird dementsprechend durch die Zahl der Eingangsparameter dividiert, um den Umfang der Teilstichproben zu erhalten.

Die Periodizität der Eingangsgrößen überträgt sich auf die Ausgangsgröße Y . Jede der Eingangsgrößen X_i wird separat unter Zugrundelegung der Auswertung der entsprechenden Teilstichprobe analysiert, indem eine Fourier-Analyse der Ausgangsgröße nach den beiden Grundfrequenzen $\omega_{-(i)}=1$ und ω_i durchgeführt wird. Alle von X_i verschiedenen Eingangsgrößen werden dabei gemeinsam erfasst, indem alle Amplitudenanteile von Vielfachen von $\omega_{-(i)}$, die unter ω_i liegen, addiert werden. Alle Amplitudenanteile von Vielfachen der höheren Grundfrequenz ω_i sind auf den Einfluss des Parameters X_i zurückzuführen. Bei ausreichendem Abstand der Grundfrequenzen bleiben störende Wechselwirkungen vernachlässigbar.

Auf diese Weise werden für jede Eingangsgröße X_i zwei Maßzahlen bestimmt, die den Einfluss dieser Größe allein bzw. den gemeinsamen Einfluss aller übrigen Größen auf die Ausgangsgröße kennzeichnen. Die erste entspricht dem Sobol-Index erster Ordnung. Subtrahiert man die zweite Maßzahl von 1, ergibt sich der Gesamteinfluss aller Größen, reduziert um die Summe aller Einflüsse, die nicht direkt oder indirekt von X_i herrühren, also die Gesamtheit aller Einflüsse, an denen der Parameter X_i beteiligt ist. Dies entspricht dem totalen Sensitivitätsindex (TSI) nach Sobol.

5.3.4 Vergleich zwischen Sobol- und FAST- Methode

Ausführliche Vergleiche zwischen der FAST-Methode und der Methode nach Sobol wurden von Saltelli et. al. [36] vorgenommen. Dabei wurden drei verschiedene Modelle betrachtet:

- die g -Funktion nach Sobol,
- der analytische Testfall nach McKay,
- der Level-E-Testfall zum Transport von Schadstoffen aus einem Endlager.

Für die ersten beiden Modelle können die Sensitivitätsindizes analytisch exakt berechnet werden, sodass ein direkter Vergleich mit den empirisch gefundenen Werten möglich ist. Der letzte Testfall stellt ein komplizierteres, nichtlineares und nichtmonotones Modell mit 12 Eingangsparametern dar, das in seiner Natur den typischen mit dem Programmpaket EMOS gerechneten Fällen sehr ähnlich ist. Alle Testmodelle wurden in verschiedenen Varianten und mit verschiedenen Stichprobenumfängen mit beiden Methoden gerechnet.

Die Testmodelle selbst sowie die detaillierte Zielsetzung und Auswertung der Vergleichsrechnungen sind in [36] ausführlich dargestellt. An dieser Stelle sollen lediglich die wesentlichen Ergebnisse zusammengefasst werden:

- Bei den analytischen Testfällen konvergieren beide Verfahren mit zunehmendem Stichprobenumfang gegen die theoretischen Werte der Sensitivitätsindizes.
- Der absolute Fehler der TSIs ist bei gleichen Stichprobenumfängen bei der FAST-Methode fast immer kleiner als bei der Sobol-Methode. Lediglich im ersten Testfall unter der Vorgabe, dass alle Parameter nicht signifikant sind, liefert das Sobol-Verfahren bei kleinen Stichprobenumfängen genauere Werte als die FAST-Methode.
- Im dritten Testfall wurde mit der FAST-Methode bei einem Stichprobenumfang von 1025 eine bessere Stabilität der Ergebnisse beobachtet als mit dem Sobol-Verfahren bei einem Stichprobenumfang von 8192. Bereits bei einem Stichprobenumfang von 257 identifizierte die FAST-Methode die vier einflussreichsten Parameter korrekt.

Diese Ergebnisse zeigen, dass die FAST-Methode dem Sobol-Verfahren bei kleinen Stichprobenumfängen überlegen ist. Ein weiterer Vorteil besteht darin, dass bei Anwendung der beschriebenen Form der FAST-Methode die Sensitivitätsindizes erster und totaler Ordnung für eine Eingangsgröße in einer einzigen Rechnung ermittelt werden, während bei der Sobol-Methode hierfür zwei getrennte Rechnungen mit eigenen Stichproben erforderlich sind.

Die Stichprobenumfänge, die hier genannt wurden, beziehen sich jeweils auf die für die Berechnung des Einflusses einer Zufallsgröße verwendete Teilstichprobe. Es ist zu beachten, dass diese für die Gesamtanalyse mit der Anzahl der zu variierenden Eingangsgrößen zu multiplizieren ist. Daher sind bei größerer Parameterzahl für eine zuverlässige

varianzbasierte Sensitivitätsanalyse in jedem Fall größere Stichproben erforderlich als für eine Korrelations- oder Regressionsanalyse, was zu einem erhöhten Rechenaufwand führt.

Ein weiterer Nachteil der FAST-Methode in der hier beschriebenen Form besteht in der Tatsache, dass sie nur für unkorrelierte Zufallsgrößenätze anwendbar ist. Dies rührt daher, dass sie ein spezielles Sampling benötigt, bei dem auf Korrelationen keine Rücksicht genommen werden kann. Jede Zufallsgröße muss unabhängig von den anderen nach einer deterministischen Vorschrift variiert werden. Auch die Sobol-Methode benötigt ein spezielles Samplingverfahren, auf das hier nicht weiter eingegangen wurde. Dabei sind Korrelationen zwar grundsätzlich zulässig, jedoch schwierig zu handhaben.

5.4 Vergleich der FAST-Methode mit klassischen Methoden

Im Folgenden werden zwei Modellbeispiele zur Langzeitsicherheit von Endlagern, die mit dem Programmpaket EMOS gerechnet wurden, jeweils zum Einen mit den klassischen Korrelations- und Regressionsverfahren und zum Anderen mit der FAST-Methode ausgewertet. Im ersten Beispiel wird eine einfache Grubengebäudestruktur betrachtet und im zweiten Beispiel der Fall „Gemeinsame Bohrloch- und Streckenlagerung“ aus der Systemanalyse Mischkonzept (SAM) [7] nachgerechnet. Die Auswertung wurde mit dem Programm SimLab, Version 1.1 [40] vorgenommen, das im Gegensatz zu EMOSStatist außer der rangbasierten auch die wertebasierte Analyse zulässt.

5.4.1 Einfaches Grubengebäude

Abb. 5.1 zeigt die Struktur des einfachen Grubengebäudes, das dem ersten Testfall zu Grunde liegt. Es besteht aus einem Abfallgebäude mit Uran-Brennstoff in einer Einlagerungsstrecke, einem Querschlag und einer Richtstrecke. Zwischen den Strecken befinden sich Verschlüsse. Im Wirtsgestein liegt ein Lösungseinschluss, der sich im Verlauf der Modellzeit zum Grubengebäude hin öffnet und Lösung in die Einlagerungsstrecke freisetzt. An das Grubengebäude schließt sich ein 9400 m langer eindimensionaler Transportweg durch das Deckgebirge mit linearen Sorptionseigenschaften an.

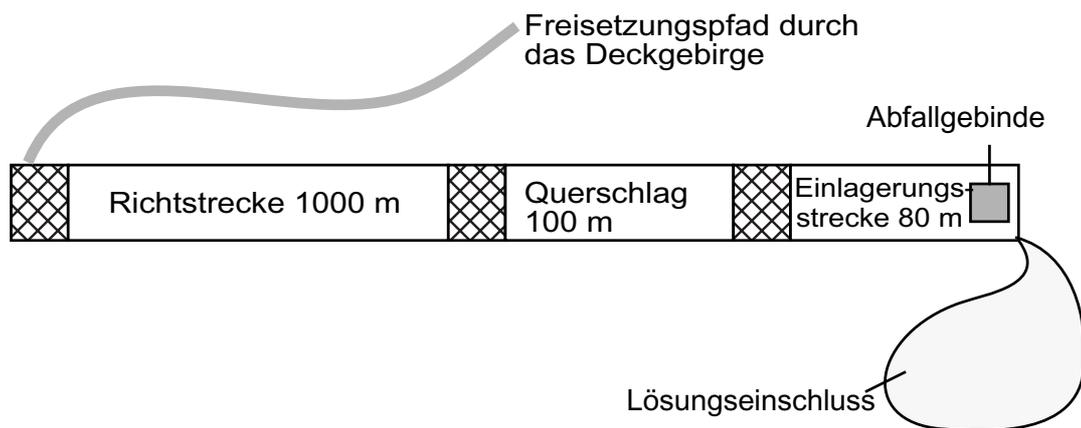


Abb. 5.1 Struktur eines einfachen Grubengebäudes

In Tab. 5.3 sind die Parameter aufgelistet, die variiert werden. Es wurden zwei verschiedene Stichproben gezogen, eine mit 1000 Wertesätzen nach einem Zufallsverfahren und eine mit 970 Wertesätzen nach der FAST-Methode. Nach Durchrechnung aller Spiele

Tab. 5.3 Variierte Eingangsgrößen im Testfall ‚Einfaches Grubengebäude‘

Nr.	Bezeichnung	Verteilung	Bereich ^a	Einheit
1	Zutrittszeitpunkt	Gleich	10 - 1000	a
2	Zwischenlagerzeit	Gleich	10 - 30	a
3	Abstand zur Referenztiefe	Gleich	-300 - 0	m
4	Volumen des Lösungseinschlusses	Log-Gleich	$10^2 - 10^4$	m^3
5	Anfangskorrosionsrate	Gleich	2 - 6	kg/a
6	mittlere Behälterstandzeit	Normal	500, 150	a
7	Referenzkonvergenzrate	Gleich	0,003 - 1	1/a
8	Dichte des Salzgesteins	Normal	2300, 100	kg/m^3
9	Natürlicher Grundwasserfluss	Gleich	$1 \cdot 10^4 - 6 \cdot 10^4$	m^3/a

a. Bei Normalverteilungen sind der Mittelwert und die Standardabweichung angegeben

wurde die Auswertung der errechneten Dosisraten mit den klassischen Methoden bzw. mit der FAST-Methode jeweils für die drei Zeitpunkte 10^4 , 10^5 und 10^6 Jahre vorgenommen. In Tab. 5.4 ist die unter Zugrundelegung der Zufallsstichprobe mit den verschiede-

nen klassischen Verfahren ermittelte Bedeutungs-Rangfolge der Parameter für die drei Zeitpunkte aufgelistet. Wie von der Theorie vorhergesagt, liefern PCC und SRC bzw. PRCC und SRRC jeweils identische Rangfolgen. Die Eingangsgrößen Nr. 4 (Volumen des Lösungseinschlusses) und Nr. 9 (Natürlicher Grundwasserfluss) werden von allen Verfahren eindeutig als diejenigen mit dem größten Einfluss auf die Dosisrate identifiziert, wobei die Reihenfolge dieser beiden Größen vom Zeitpunkt und vom Verfahren abhängt. Bei den weiteren Parametern ist die Rangfolge weniger eindeutig.

Tab. 5.4 Bedeutungs-ränge der Parameter nach den klassischen Verfahren^a. Es sind jeweils die Ränge zu den drei betrachteten Zeitpunkten angegeben

Nr	PEAR	SPEA	PCC	PRCC	SRC	SRRC
4	1 1 1	2 1 2	1 1 1	2 1 2	1 1 1	2 1 2
9	2 2 2	1 2 1	2 2 2	1 2 1	2 2 2	1 2 1
6	3 4 5	4 4 3	3 3 4	3 3 4	3 3 4	3 3 4
7	4 5 6	5 6 4	4 4 5	4 5 6	4 4 5	4 5 6
8	6 9 3	7 5 9	5 6 3	5 4 9	5 6 3	5 4 9
5	5 3 8	3 3 5	7 8 9	6 7 3	7 8 9	6 7 3
1	7 6 9	9 9 8	6 5 6	7 9 5	6 5 6	7 9 5
2	8 7 4	6 7 6	8 7 8	9 8 7	8 7 8	9 8 7
3	9 8 7	8 8 7	9 9 7	8 6 8	9 9 7	8 6 8

- a. PEAR = Korrelationskoeffizienten nach Pearson
 SPEA = Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman
 PCC = Partielle Korrelationskoeffizienten
 PRCC = Partielle Rangkorrelationskoeffizienten
 SRC = Standardisierte Regressionskoeffizienten
 SRRC = Standardisierte Rangkorrelationskoeffizienten

Der Koeffizient R^2 der Modellbestimmtheit ist ein Maß dafür, wie gut die gefundenen Werte durch einen linearen Regressionsansatz wiedergegeben werden (s. Kapitel 5.2.2). Er liegt immer zwischen null und eins, und sollte wenigstens über 0,5 liegen, wenn aus den hier berechneten Sensitivitätsmaßen belastbare Aussagen über die Bedeutung einzelner Eingangsgrößen für das Endergebnis hergeleitet werden sollen. In Tab. 5.5 sind diese Koeffizienten, jeweils für die wertebasierte und die rangbasierte Auswertung, für die drei Zeitpunkte angegeben. Der Wert für die rangbasierte Auswertung ist in allen Fällen höher

Tab. 5.5 Testfall Einfache Struktur: Koeffizienten der Modellbestimmtheit

	10^4 Jahre	10^5 Jahre	10^6 Jahre
wertbasierte Auswertung	0,218	0,788	0,302
rangbasierte Auswertung	0,493	0,847	0,835

als der für die wertbasierte, daher ist die rangbasierte Auswertung als aussagekräftiger anzusehen. Dies ist typisch für nichtlineare Modelle, daher sind auch im Postprozessor EMOSStatist nur die rangbasierten Methoden implementiert.

Die über Korrelations- und Regressionsmethoden berechneten Sensitivitätsmaße, insbesondere die rangbasierten, sollten nur als qualitativ angesehen werden. Aus diesem Grund sind die numerisch bestimmten Werte der Koeffizienten hier nicht aufgelistet, sondern nur die durch sie festgelegte Rangfolge. Bei einer FAST-Analyse haben die errechneten Sensitivitätsindizes dagegen eine quantitative Bedeutung. In Tab. 5.6 sind die unter Zugrundelegung der FAST-Stichprobe mit dieser Methode ermittelten Indizes erster und totaler Ordnung aufgelistet. Ebenso wie bei den klassischen Sensitivitätsmaßen wird die Rangfolge sowohl bei den Indizes erster Ordnung als auch bei den TSIs eindeutig von den Parametern Nr. 4 und Nr. 9 angeführt, die übrigen Eingangsgrößen sind von untergeordneter Bedeutung.

Diese Indizes sind auch quantitativ interpretierbar. Beachtet man die Tatsache, dass sich die Indizes aller Ordnungen zu 1 addieren müssen, so kann man aus der linken Hälfte der Tabelle z. B. ablesen, dass allein der isolierte Einfluss des Parameters Nr. 4 (Einschlussvolumen) nach 10^4 Jahren 31 %, nach 10^5 Jahren 69 % und nach 10^6 Jahren 12 % der Varianz der Dosisrate ausmacht. Für den Parameter Nr. 9 (Grundwasserfluss) betragen diese Werte 57 %, 14 % bzw. 35 %. Der Einfluss des Einschlussvolumens ist also zu dem mittleren Zeitpunkt besonders hoch, während zu dem frühen und zu dem späten Zeitpunkt der Einfluss des Grundwasserflusses überwiegt.

Die TSIs geben an, welcher Anteil der Varianz der Ausgangsgröße durch die jeweils betrachtete Eingangsgröße mitbestimmt wird. Dieser Anteil beträgt z. B. für den Parameter Nr. 4 (Einschlussvolumen) zu dem mittleren Zeitpunkt fast 87 %, das bedeutet, dass nur

Tab. 5.6 Testfall Einfache Struktur: FAST-Sensitivitätsindizes erster und totaler Ordnung

Nr.	Erste Ordnung			TSI		
	10 ⁴ Jahre	10 ⁵ Jahre	10 ⁶ Jahre	10 ⁴ Jahre	10 ⁵ Jahre	10 ⁶ Jahre
4	0,310548	0,692332	0,11957	0,571397	0,868437	0,578138
9	0,566823	0,14131	0,347327	0,786188	0,224167	0,868484
7	0,054621	0,025622	0,044473	0,221124	0,108893	0,329363
6	0,020273	0,01471	0,0006	0,097317	0,114784	0,145015
3	0,000756	0,011369	0,000164	0,043249	0,115837	0,147747
8	0,000772	0,010494	0,00016	0,042516	0,1155	0,146651
5	0,000686	0,010457	0,000174	0,04214	0,11581	0,146469
2	0,000734	0,010327	0,000181	0,041648	0,115888	0,146274
1	0,000757	0,000799	0,000453	0,042164	0,017635	0,136422

13 % der Varianz der Dosisrate nichts mit dem Einschlussvolumen zu tun haben. Durch Differenzbildung ist zu folgern, dass 87 % - 69 % = 18 % von gekoppelten Einflüssen des Einschlussvolumens mit anderen Parametern herrühren.

5.4.2 SAM

Der zweite hier behandelte Testfall ist der Fall „Gemeinsame Bohrloch- und Streckenlagerung“ aus der Systemanalyse Mischkonzept (SAM) [7]. Er wurde bereits 1990 probabilistisch ausgewertet, wobei insgesamt 31 Parameter statistisch variiert wurden. Diese sind in Tab. 5.7 aufgelistet. Für den hier durchzuführenden Vergleich wurden zwei neue Stichproben gezogen, eine nach einem Zufallsverfahren mit 3000 Parametersätzen und eine nach der FAST-Methode mit 2759 Parametersätzen. Nach Durchrechnung aller Spiele wurde die Auswertung der errechneten Dosisraten mit den klassischen Methoden bzw. mit der FAST-Methode jeweils für die fünf Zeitpunkte $1 \cdot 10^4$, $2 \cdot 10^4$, $5 \cdot 10^4$, $1 \cdot 10^5$ und $2 \cdot 10^5$ Jahre vorgenommen. Auf die bei SAM darüber hinaus durchgeführte Analyse der berechneten Maximaldosen wurde hier aus technischen Gründen verzichtet.

Tab. 5.7 Variierte Eingangsgrößen im Testfall SAM

Nr.	Bezeichnung	Verteilung	Bereich ^a	Einheit
1	Zutrittszeitpunkt	Log-Normal	45 , 1,24	a
2	Volumen des Lösungseinschlusses	Log-Hist.	11 - 1000	m ³
3	Behälterlebensdauer LWR-BE	Log-Normal	500 , 0,28	a
4	Red. d. Konv. n. Lösungszutritt (HAW)	Log-Gleich	0,001 - 0,1	-
5	Red. d. Konv. n. Lösungszutritt (MAW)	Log-Gleich	0,1 - 1	-
6	Referenzkonvergenzrate	Log-Normal	$1 \cdot 10^{-2}$, 0,92	1/a
7	Aktivierungsenergie (Salz)	Gleich	5800 - 7200	1/K
8	Exponent in Perm.-Por.-Beziehung	Log-Normal	4,5 , 0,13	-
9	Dampermeabilität	Log-Normal	$7 \cdot 10^{-16}$, 0,78	m ²
10	Perm.-erhöhung in Zuflussphase	Log-Gleich	1 - 100	-
11	Faktor Lösungstransport / Gastransport	Log-Gleich	120 - $1,2 \cdot 10^5$	-
12	Faktor Lösungstransp. / Konz.-differenz	Log-Gleich	$2,56 \cdot 10^9$ - $2,56 \cdot 10^{11}$	-
13	Faktor Lösungstransp. / Temp.-differenz	Log-Gleich	$9,59 \cdot 10^8$ - $9,59 \cdot 10^{10}$	-
14	Diffusionskoeffizient	Log-Normal	$6,7 \cdot 10^{-8}$, 1,35	m ² /s
15	Magnesiumkonzentration in Lösung	Gleich	0 - 88	kg/m ³
16	Mob.-rate zementierte Gebinde	Log-Normal	$1 \cdot 10^{-2}$, 0,36	1/a
17	Mobilisierungsrate 1 LWR-BE	Log-Normal	$1 \cdot 10^{-1}$, 0,92	1/a
18	Mobilisierungsrate 2 LWR-BE	Log-Normal	$1,6 \cdot 10^{-3}$, 0,92	1/a
19	Mob.-rate RK aus HTR-BE	Log-Gleich	$4 \cdot 10^{-4}$ - 0,01	1/a
20	Mob.-rate RP aus HTR-BE	Log-Normal	$2 \cdot 10^{-3}$, 0,55	1/a
21	Mobilisierung: Auslaugkoeff. Glas	Log-Normal	$3,6 \cdot 10^{-1}$, 0,85	kg/m ² /a
22	Mobilisierung: Aktivierungsenergie Glas	Log-Normal	75 , 0,50	kJ/mol
23	Löslichkeitsgrenzen sauer (Sr)	Log-Gleich	$1 \cdot 10^{-6}$ - 1	mol/l
24	Löslichkeitsgrenzen neutral (Sr)	Log-Gleich	$1 \cdot 10^{-6}$ - 1	mol/l
25	Löslichkeitsgrenzen basisch (Sr)	Log-Gleich	$1 \cdot 10^{-6}$ - $1 \cdot 10^{-4}$	mol/l
26	Löslichkeitsgrenzen unbekannt (Sr)	Log-Gleich	$1 \cdot 10^{-6}$ - 1	mol/l
27	Kd-Werte Zement (Sr)	Log-Gleich	0,04 - 4	m ³ /kg
28	Kd-Werte Zement (Zr)	Log-Gleich	100 - 10000	m ³ /kg
29	Kd-Werte in der Geosphäre	Log-Gleich	$5 \cdot 10^{-4}$ - $5 \cdot 10^{-2}$	m ³ /kg
30	Variationsfaktor für long. Dispersion	Log-Normal	1 , 0,916	-
31	Verdünnung durch Var. d. Fließrate	Log-Gleich	0,41 - 2,44	-

a. Bei Log-Normalverteilungen ist der Mittelwert sowie die Standardabweichung auf einer natürlich-logarithmischen Skala angegeben

Eine Besonderheit dieses Rechenfalles liegt in der hohen Zahl von Nullspielen, d. h. Rechenläufen, die keine Freisetzung von Schadstoffen ergeben. Solche Nullspiele resultieren bei einem Endlager im Salz häufig aus einem vorzeitigen vollständigen Verschluss des Freisetzungsweges aufgrund der Gebirgskonvergenz. Bei den Nachrechnungen mit beiden Stichproben führte nur etwa jedes sechste Spiel überhaupt zu einer Freisetzung. Anhand dieses Beispiels konnte die Tauglichkeit sowohl der klassischen Verfahren als auch der FAST-Methode für derartige, im Bereich der Sensitivitätsanalysen sonst eher ungewöhnliche Fälle untersucht werden.

Die nach den verschiedenen klassischen Methoden ermittelten Bedeutungsrangfolgen der Eingangsgrößen zu den fünf Zeitpunkten sind in Tab. 5.8 dargestellt. Die nach den rangbasierten Verfahren ermittelten Rangfolgen entsprechen weitgehend, zumindest auf den vorderen Plätzen, den in [7] dokumentierten. Die Unterschiede beruhen auf der Tatsache, dass bei der alten und der neuen Analyse verschiedene Stichproben verwendet wurden.

Alle Verfahren ordnen den Parameter 2 (Einschlussvolumen) auf dem ersten und den Parameter 8 (Exponent in der Permeabilitäts-Porositäts-Beziehung) auf dem zweiten Rang ein. Bezüglich des dritten Rangs besteht noch Einigkeit zwischen den rangbasierten Verfahren, die hier den Parameter 6 (Referenzkonvergenzrate) sehen. Auf den folgenden Plätzen werden in zunehmendem Maß Abweichungen zwischen den Verfahren erkennbar. Insbesondere auffällig sind zum Teil erhebliche Unterschiede zwischen den wertebasierten und den rangbasierten Verfahren. So werden die Parameter 30 (Variationsfaktor für longitudinale Dispersion) und 24 (Löslichkeitsgrenzen im neutralen Milieu) von allen rangbasierten Verfahren durchweg auf den Plätzen vier oder fünf eingeordnet, von den wertebasierten Verfahren jedoch immer auf hinteren Plätzen. Umgekehrt wird der Parameter 26 (Löslichkeitsgrenzen in unbekanntem Milieu) von den wertebasierten Verfahren auf vorderen Plätzen eingestuft, von den rangbasierten dagegen auf hinteren. Die deutlichste Abweichung wird hier zum Zeitpunkt $2 \cdot 10^5$ Jahre sichtbar. Nach dem Wertkorrelationskoeffizienten ist der Parameter zu diesem Zeitpunkt der drittwichtigste, nach dem Rangkorrelationskoeffizienten dagegen mit Platz 31 der unwichtigste.

Tab. 5.8 Testfall SAM: Bedeutungsranke der Parameter nach den klassischen Verfahren^a. Es sind jeweils die Ränge zu den fünf betrachteten Zeitpunkten angegeben. Die Tabelle ist nach den Zeilenquersummen geordnet

Nr	PEAR	SPEA	PCC	PRCC	SRC	SRRC
2	1 1 1 1 1	1 1 1 1 1	1 1 1 1 1	1 1 1 1 1	1 1 1 1 1	1 1 1 1 1
8	2 2 2 2 2	2 2 2 2 2	2 2 2 2 2	2 2 2 2 2	2 2 2 2 2	2 2 2 2 2
6	14 3 4 10 11	3 3 3 3 3	11 3 4 8 10	3 3 3 3 3	11 3 4 8 10	3 3 3 3 3
10	6 4 9 27 10	7 8 6 6 7	6 4 7 25 9	7 7 6 6 7	6 4 7 25 9	7 7 6 6 7
30	17 17 15 13 15	4 4 4 5 5	18 16 14 13 16	4 4 4 5 5	18 16 14 13 16	4 4 4 5 5
7	20 10 6 11 13	10 10 9 9 10	20 10 5 11 12	10 10 9 9 9	20 10 5 11 12	10 10 9 9 9
24	9 13 25 26 27	5 5 5 4 4	12 23 15 20 20	5 5 5 4 4	12 23 15 20 20	5 5 5 4 4
4	13 6 3 7 4	15 16 24 19 17	16 5 3 6 3	15 17 27 19 17	16 5 3 6 3	15 17 27 19 17
27	7 9 27 24 12	6 9 11 13 13	7 8 24 24 13	6 9 11 14 14	7 8 24 24 13	6 9 11 14 14
14	10 29 19 14 5	14 12 10 10 8	9 26 23 17 5	17 13 10 10 10	9 26 23 17 5	17 13 10 10 10
11	19 28 21 9 25	9 6 8 8 9	19 25 18 9 26	9 6 7 8 8	19 25 18 9 26	9 6 7 8 8
17	21 12 14 21 14	8 7 7 7 6	30 21 20 26 17	8 8 8 7 6	30 21 20 26 17	8 8 8 7 6
9	4 5 7 16 22	17 18 17 17 19	4 6 6 14 21	16 19 17 18 19	4 6 6 14 21	16 19 17 18 19
13	24 25 28 6 7	12 17 16 12 12	29 15 22 7 6	12 15 15 11 11	29 15 22 7 6	12 15 15 11 11
26	3 7 5 3 3	23 23 20 30 31	3 9 9 3 4	23 21 20 29 30	3 9 8 3 4	23 21 20 29 30
23	12 16 12 4 6	21 22 22 18 18	13 22 13 4 7	21 22 22 17 18	13 22 13 4 7	21 22 22 17 18
5	31 18 10 17 23	13 14 13 11 11	28 13 10 15 24	13 14 14 12 12	28 13 10 15 24	13 14 14 12 12
28	22 26 20 15 21	11 11 12 15 15	24 17 17 16 22	11 11 12 13 13	24 17 17 16 22	11 11 12 13 13
21	15 14 23 30 30	16 13 14 14 14	15 12 21 30 31	14 12 13 15 15	15 12 21 30 31	14 12 13 15 15
3	16 15 11 8 9	24 24 23 27 26	17 18 12 10 11	22 20 21 25 24	17 18 12 10 11	22 20 21 25 24
16	8 8 16 28 19	20 19 19 21 22	8 7 19 31 23	19 18 18 20 21	8 7 19 31 23	19 18 18 20 21
31	23 11 8 12 28	25 20 18 20 21	22 11 8 12 29	27 23 19 22 23	22 11 9 12 29	27 23 19 22 23
19	26 24 29 25 18	18 15 15 16 16	21 20 31 27 18	18 16 16 16 16	21 20 31 27 18	18 16 16 16 16
20	5 27 17 5 8	28 27 28 29 28	5 27 16 5 8	30 29 29 30 31	5 27 16 5 8	30 29 29 30 31
15	29 22 24 19 24	22 25 25 22 20	23 14 29 21 25	24 25 24 21 20	23 14 29 21 25	24 25 24 21 20
22	11 23 31 29 17	26 26 27 28 29	10 28 28 28 15	25 24 26 27 28	10 28 28 28 15	25 24 26 27 28
12	27 31 13 23 16	27 30 30 24 23	27 31 11 23 14	29 31 30 24 22	27 31 11 23 14	29 31 30 24 22
18	18 19 18 18 26	31 28 21 23 24	14 30 30 22 30	31 28 23 23 25	14 30 30 22 30	31 28 23 23 25
25	25 21 30 22 31	19 21 29 25 25	26 24 26 19 27	20 26 28 28 27	26 24 26 19 27	20 26 28 28 27
1	30 30 22 20 20	29 29 26 26 27	31 29 25 18 19	28 27 25 26 26	31 29 25 18 19	28 27 25 26 26
29	28 20 26 31 29	30 31 31 31 30	25 19 27 29 28	26 30 31 31 29	25 19 27 29 28	26 30 31 31 29

- a. PEAR = Korrelationskoeffizienten nach Pearson
SPEA = Rangkorrelationskoeffizienten nach Spearman
PCC = Partielle Korrelationskoeffizienten
PRCC = Partielle Rangkorrelationskoeffizienten
SRC = Standardisierte Regressionskoeffizienten
SRRC = Standardisierte Rangkorrelationskoeffizienten

In Tab. 5.9 sind die Koeffizienten der Modellbestimmtheit für die fünf betrachteten Zeitpunkte angegeben. Die Werte für die wertebasierte Auswertung liegen mit einer Ausnahme durchweg unter 0,5, was auf eine nur mäßige Aussagekraft der linearen Auswertungsverfahren schließen lässt. Interessanterweise sind in diesem Fall die Koeffizienten für die rangbasierte Auswertung sogar noch niedriger. Das bedeutet, dass die Linearität des Modells durch die Rangtransformation nicht erhöht, sondern verringert wird. Verständlich ist dies insofern als sämtlichen Nullspielen derselbe Rang zugewiesen wird, und allein schon deswegen eine Linearität des rangtransformierten Modells ausgeschlossen ist. Hieraus wäre zu folgern, dass die rangbasierte Auswertung im vorliegenden Fall noch weniger zuverlässig ist als die wertebasierte.

Tab. 5.9 Testfall SAM: Koeffizienten der Modellbestimmtheit

	$1 \cdot 10^4 a$	$2 \cdot 10^4 a$	$5 \cdot 10^4 a$	$1 \cdot 10^5 a$	$2 \cdot 10^5 a$
wertebasierte Auswertung	0,351	0,541	0,442	0,233	0,268
rangbasierte Auswertung	0,170	0,172	0,172	0,170	0,169

In Tab. 5.10 sind die mit der FAST-Methode ermittelten Sensitivitätsindizes erster und totaler Ordnung aufgelistet. Daran wird der dominierende Einfluss des Parameters 2 (Einschlussvolumen) auf die Varianz der Dosisrate deutlich. In der linken Hälfte der Tabelle ist abzulesen, dass dieser Parameter allein zu den verschiedenen Zeitpunkten zwischen 33 % und 46 % der Varianz der Dosisrate verursacht. Der Einfluss jedes anderen Parameters liegt unter, bzw. in einem Fall geringfügig über 10 %. An zweiter Stelle in der Rangfolge liegt zu fast allen Zeitpunkten, sowohl bezüglich der Indizes erster Ordnung als auch bezüglich der TSIs, der Parameter Nr. 10 (Permeabilitätserhöhung in der Zuflussphase), der von den klassischen Methoden typischerweise auf Rängen zwischen 4 und 8 eingestuft wurde. Erst danach folgt der Parameter Nr. 8 (Exponent in Permeabilitäts-Porositäts-Beziehung), den die klassischen Methoden einheitlich auf dem zweiten Rang sehen.

Die Dominanz des Parameters Nr. 2 besteht in dieser Deutlichkeit nur bezüglich der Indizes erster Ordnung. Bei den TSIs liegt dieser Parameter zwar auch zu jedem Zeitpunkt in Führung, übersteigt aber nur geringfügig die Werte für die Parameter Nr. 10 (Permeabilitätserhöhung in der Zuflussphase), 7 (Aktivierungsenergie Salz), 6 (Refe-

Tab. 5.10 Testfall SAM: FAST-Sensitivitätsindizes erster und totaler Ordnung. Die Tabelle ist nach der Quersumme der Indizes erster Ordnung geordnet

Nr.	Erste Ordnung					TSI				
	1·10 ⁴ a	2·10 ⁴ a	5·10 ⁴ a	1·10 ⁵ a	2·10 ⁵ a	1·10 ⁴ a	2·10 ⁴ a	5·10 ⁴ a	1·10 ⁵ a	2·10 ⁵ a
2	0,3266	0,4643	0,4184	0,4295	0,3899	0,9133	0,9305	0,9291	0,9344	0,9314
10	0,0899	0,0899	0,0899	0,0899	0,0899	0,8876	0,8876	0,8876	0,8876	0,8876
8	0,1021	0,0807	0,0687	0,0648	0,0704	0,6347	0,5475	0,5000	0,5847	0,6237
7	0,0893	0,0880	0,0761	0,0688	0,0435	0,8879	0,8855	0,7790	0,6563	0,4265
6	0,0597	0,0793	0,0772	0,0734	0,0698	0,7083	0,8328	0,8249	0,8014	0,7783
15	0,0644	0,0621	0,0625	0,0680	0,0707	0,7006	0,6779	0,6968	0,7440	0,7318
23	0,0743	0,0710	0,0656	0,0588	0,0510	0,8063	0,7975	0,7672	0,7374	0,6883
5	0,0711	0,0673	0,0573	0,0489	0,0447	0,7716	0,7414	0,6574	0,5795	0,5162
9	0,0649	0,0462	0,0258	0,0159	0,0079	0,7172	0,5557	0,3857	0,3181	0,2688
24	0,0684	0,0554	0,0203	0,0066	0,0044	0,6574	0,5193	0,2734	0,1816	0,1433
4	0,0254	0,0064	0,0102	0,0308	0,0721	0,3650	0,1800	0,0943	0,1847	0,5120
12	0,0268	0,0105	0,0061	0,0337	0,0546	0,3969	0,2627	0,1561	0,2827	0,3394
27	0,0535	0,0313	0,0041	0,0210	0,0167	0,5451	0,2702	0,1353	0,3358	0,2072
18	0,0457	0,0349	0,0142	0,0139	0,0093	0,5698	0,4739	0,3067	0,3028	0,2706
30	0,0439	0,0330	0,0145	0,0140	0,0058	0,5326	0,4406	0,3058	0,3028	0,2400
1	0,0049	0,0075	0,0309	0,0342	0,0311	0,1602	0,0993	0,1808	0,2347	0,2443
17	0,0032	0,0123	0,0289	0,0263	0,0161	0,1832	0,1617	0,2096	0,2194	0,2200
11	0,0316	0,0087	0,0104	0,0169	0,0159	0,4261	0,2333	0,1295	0,1383	0,1776
31	0,0406	0,0260	0,0089	0,0022	0,0019	0,5041	0,3864	0,2739	0,2336	0,2126
13	0,0331	0,0189	0,0064	0,0098	0,0113	0,4381	0,2925	0,0846	0,1156	0,1725
3	0,0034	0,0009	0,0126	0,0361	0,0264	0,1842	0,1021	0,1595	0,3897	0,3496
21	0,0063	0,0079	0,0263	0,0210	0,0124	0,1295	0,0690	0,1643	0,1850	0,1787
22	0,0348	0,0131	0,0080	0,0069	0,0041	0,5075	0,3444	0,3151	0,3348	0,2553
26	0,0095	0,0013	0,0053	0,0221	0,0260	0,2508	0,1284	0,0919	0,3618	0,4486
29	0,0038	0,0064	0,0262	0,0157	0,0119	0,1787	0,0858	0,1669	0,1401	0,1243
14	0,0334	0,0152	0,0037	0,0058	0,0047	0,4463	0,3087	0,2290	0,2259	0,1754
16	0,0144	0,0217	0,0021	0,0054	0,0183	0,2630	0,2513	0,4929	0,5315	0,5409
25	0,0318	0,0102	0,0038	0,0076	0,0025	0,2206	0,0844	0,0734	0,1809	0,1040
19	0,0185	0,0051	0,0010	0,0064	0,0097	0,3391	0,1465	0,0715	0,1371	0,1578
28	0,0089	0,0034	0,0093	0,0038	0,0030	0,2180	0,0673	0,0801	0,0537	0,0561
20	0,0094	0,0051	0,0034	0,0019	0,0032	0,2330	0,1424	0,0675	0,0699	0,1245

renzkonvergenzrate) und 23 (Löslichkeitsgrenzen im sauren Milieu). Dies zeigt, dass der Einfluss des Einschlussvolumens durch Wechselwirkungen mit anderen Größen nur relativ wenig erhöht wird, während dies bei anderen Parametern in erheblich größerem Maß der Fall ist.

Die FAST-Analyse wurde hier auf einer Basis von insgesamt 2759 Spielen, d. h. 89 Spielen je Parameter durchgeführt. Das ist relativ wenig, zumal ca. 4/5 aller Spiele Nullspiele sind. Trotzdem liefern die Ergebnisse bereits deutliche Aussagen, deren Belastbarkeit allerdings kaum einschätzbar ist. Für eine zuverlässigere Analyse wäre eine erheblich höhere Zahl von Spielen nötig.

5.5 Schlussfolgerungen

Die klassischen, auf linearen Ansätzen beruhenden Korrelations- und Regressionsmethoden zur Sensitivitätsanalyse liefern bei Rechenfällen mit nur wenigen Nullspielen Aussagen von hinreichender Zuverlässigkeit. Diese sollten aber immer als qualitative Aussagen angesehen und lediglich zur Aufstellung einer Rangfolge herangezogen werden. Das gilt insbesondere dann, wenn wie in den bisher mit dem Programmpaket EMOS durchgeführten Analysen nur die rangbasierten Maße berechnet werden. Sinn der Rangtransformation ist es, nichtlinear-monotone Zusammenhänge in lineare zu überführen. Im Normalfall bewirkt dies tatsächlich eine verbesserte Wiedergabe der Zusammenhänge, was am Koeffizienten der Modellbestimmtheit abzulesen ist. Dann ist auch von einer erhöhten Zuverlässigkeit der Bedeutungsrankliste auszugehen.

Bei Rechenfällen, bei denen sehr viele Nullspiele auftreten, versagt die Rangtransformation offenbar. Der Koeffizient der Modellbestimmtheit wird dann niedriger als bei der direkten wertebezogenen Auswertung. In derartigen Fällen sollte daher die wertebasierte Auswertung vorgezogen werden. Sie wird vom bisher verwendeten Postprozessor EMOSStatist nicht unterstützt, kann aber mit dem Programm SimLab durchgeführt werden.

Bei unkorrelierten Eingangsdatensätzen liefern die Verfahren PCC und SRC bzw. PRCC und SRRC jeweils identische Ergebnisse. Geringfügige Unterschiede können sich höchstens durch zufällige Scheinkorrelationen ergeben. Aus diesem Grund braucht nur

eins dieser Verfahren angewandt zu werden. Bei korrelierten Eingangsdatensätzen könnte jedoch gerade ein Vergleich dieser Sensitivitätsmaße interessant werden. Dies wurde im Rahmen der vorliegenden Studie nicht untersucht.

Der Smirnov-Test ist relativ ungenau und wenig robust. Er liefert z. T. deutlich abweichende Resultate, verglichen mit den übrigen Methoden. Auf seine Auswertung kann in Zukunft verzichtet werden.

Bei unkorrelierten Eingangsdatensätzen kann die FAST-Methode verwendet werden. Die damit erhaltenen Ergebnisse sind quantitativ interpretierbar, d. h. das Ausmaß der Einflüsse verschiedener Parameter auf die Varianz der Ausgangsgröße kann gegenübergestellt werden. Ein weiterer Vorteil dieser Methode ist, dass sie kein lineares oder monotonen Modell voraussetzt. Ein Nachteil liegt darin, dass diese Methode im Prinzip eine höhere Zahl von Spielen erfordert, weil für die Analyse jedes Parameters eine eigene Teilstichprobe gezogen wird. Trotzdem konnten mit relativ wenig Spielen bereits deutliche Aussagen abgeleitet werden.

Es existieren keine theoretischen Betrachtungen über die Zuverlässigkeit der FAST-Methode bei hoher Nullspielwahrscheinlichkeit. Insofern muss vorerst offen bleiben, ob die FAST-Methode in solchen Fällen der klassischen Sensitivitätsanalyse vorzuziehen ist. Die durchgeführten Analysen haben deutliche Unterschiede in den mit FAST bzw. den klassischen Verfahren ermittelten Bedeutungsrangfolgen ergeben, und zwar bereits auf den vorderen Plätzen.

Mit dem Sobol-Verfahren werden theoretisch dieselben Sensitivitätsindizes berechnet wie mit der FAST-Methode. Wie von Saltelli gezeigt wurde [36] ist die FAST-Methode dem Sobol-Verfahren im Normalfall überlegen. Bei Vorliegen einer hohen Nullspielwahrscheinlichkeit könnte dies jedoch anders sein. Es wäre sicherlich sinnvoll, beide Verfahren in dieser Hinsicht vergleichend zu testen. Ein Softwareprodukt, welches das Sobol-Verfahren beherrscht, steht derzeit jedoch noch nicht zur Verfügung.

Für die Vorbereitung und Auswertung probabilistischer Rechnungen mit dem Programmpaket EMOS kann das extern entwickelte und gepflegte Softwareprodukt SimLab [40] verwendet werden. Es stellt alle hier beschriebenen Verfahren bereit und wird in der

angekündigten Version 2 auch das Sobol-Verfahren beherrschen, allerdings auch nur für unkorrelierte Eingangsdatensätze. Die Anbindung von SimLab an EMOS erfolgt über hierfür entwickelte Dateikonverter.

In Tab. 5.11 ist dargestellt, welche Verfahren für welche Gegebenheiten geeignet sind. Dabei wurde die Möglichkeit der Sobol-Analyse für unkorrelierte Daten vorausgesetzt.

Tab. 5.11 Anwendungsempfehlung für verschiedene Methoden der Sensitivitätsanalyse bei unterschiedlichen Ausgangssituationen.

		Eingangsdaten	
		unkorreliert	korreliert
Nullspielwahrscheinlichkeit	gering	SPEA, SRRC	SPEA, PRCC, SRRC
		FAST	(SOBOL) ^a
	hoch	PEAR, SRC	PEAR, PCC, SRC
		SOBOL, FAST ^b	(SOBOL) ^a

a. Keine Software für korrelierte Daten verfügbar

b. Vergleichstest nicht durchgeführt

6 Grafische Darstellung von Schadstoffinventaren und Grubengebäudestrukturen

Die grafische Darstellung von Eingangsdaten und Rechenergebnissen dient der anschaulichen Präsentation der Ergebnisse von Langzeitsicherheitsanalysen. Im folgenden werden zwei neue grafische Darstellungsmöglichkeiten des Programmpakets EMOS [6] vorgestellt.

6.1 Verteilung der Schadstoffmassen in Teilbereichen des Endlagers

Ein Endlager für Schadstoffe besteht im allgemeinen aus den Teilbereichen Nahfeld, Geosphäre und Biosphäre. Das Nahfeld beschreibt die direkte Umgebung der eingelagerten Schadstoffe, beispielsweise ein Grubengebäude in einem Salzstock. Die Geosphäre beschreibt die Transportvorgänge durch die Grundwasser führenden Schichten zwischen dem Nahfeld und der Biosphäre. Die Biosphäre schließlich enthält alle Transportpfade für Schadstoffe von einem Entnahmepunkt des Trinkwassers bis zum Menschen.

Nach der Mobilisierung der Schadstoffe im Nahfeld breiten sich die Schadstoffe in allen Teilbereichen aus. Radioaktive Schadstoffe unterliegen dabei zusätzlich dem Zerfall. Zur Beurteilung der Isolationseigenschaften des Endlagers ist es von Interesse, wie sich die Schadstoffe zu jedem Zeitpunkt über die Teilbereiche verteilen. Aus dieser Verteilung können unter anderem Rückschlüsse über die Wirksamkeit von Barrieren in den Teilbereichen gezogen werden.

6.1.1 Leistungsumfang des entwickelten Postprozessors

Der Postprozessor wurde als X-Windows-Anwendung für SUN-Rechenanlagen entwickelt. Es können die zeitlichen Entwicklungen der Schadstoffverteilungen als Kurven oder Balkendiagramme dargestellt werden. Die Inventare werden in allen Fällen als Mengen in Mol angezeigt und gegebenenfalls automatisch von Aktivitäten in Mengen umgerechnet. Die Schadstoffverteilungen können am Bildschirm angezeigt und auf Drucker oder in Dateien ausgegeben werden.

Das Nahfeld, die Geosphäre und die Biosphäre können jeweils in weitere Kompartments unterteilt werden. Eine Zusammenstellung der aktuellen Auswahlmöglichkeiten enthält Tabelle 6.1.

Tab. 6.1 Kompartments zur Darstellung der Schadstoffinventare

EMOS-Modul	Kompartiment
(alle)	Gesamtinventar des Endlagers
(alle)	Anteil des Gesamtinventars des Endlagers, der bereits zerfallen ist
Nahfeldmodule:	
REPOS, LOPOS, GRAPOS	Gesamtinventar des Nahfelds
REPOS, LOPOS, GRAPOS	nicht mobilisiertes Inventar in allen Abfallgebinden
REPOS, LOPOS	mobilisiertes Inventar außerhalb der Abfallgebinde
REPOS, LOPOS	mobilisiertes + nicht mobilisiertes Inventar in allen Einlagerungsorten
GRAPOS	Inventar in der Nahfeldbarriere (Bentonit)
REPOS, LOPOS, GRAPOS	ausgefälltes Inventar
Geosphärenmodule:	
CHETMAD, CHETLIN	Gesamtinventar in der Geosphäre
CHETMAD, CHETLIN	Inventar, das aus der Geosphäre in die Biosphäre gelangt ist

Neben den Kompartments können bei allen Diagrammen die Schadstoffe und bei Balkendiagrammen die Zeitpunkte ausgewählt werden. Für Standardausgaben im Falle radioaktiver Abfälle ist eine Summierung über ausgewählte Radionuklide vorgesehen, siehe Tabelle 6.2.

6.1.2 Beispiele

Durch geeignete Auswahl der Kompartments werden Abbildungen erzeugt, mit denen Aussagen zum Verbleib des jeweiligen Gesamtinventars möglich sind. Beispielsweise kann man das Gesamtinventar im Nahfeld, das Gesamtinventar in der Geosphäre, das in die Biosphäre freigesetzte Inventar und den Anteil des bereits zerfallenen Gesamtin-

Tab. 6.2 Summenbildung über Radionuklide für Inventarberechnungen

Name	Summe über
Su-tot	alle im Abfall vorhandenen Radionuklide
Su-Spa	alle Spaltprodukte
Su-Act	alle Aktiniden (Su-Th, Su-Np, Su-UR und Su-Am)
Su-Th	Thorium-Zerfallsreihe
Su-Np	Neptunium-Zerfallsreihe
Su-UR	Uran-Zerfallsreihe
Su-Am	Americium-Zerfallsreihe

inventars gemeinsam darstellen. Auf diese Weise addieren sich die Inventare der ausgewählten Kompartments stets zu 100 %, siehe Abbildungen 6.1 bis 6.3. In dem Beispiel befindet sich der überwiegende Anteil der Inventare von Tc-99, bzw. der Summe über alle Radionuklide, im Nahfeld oder ist bereits zerfallen. Nur ein Bruchteil des Anfangsinventars gelangt in die Geosphäre oder die Biosphäre. Bei der Summe über alle Radionuklide steigt das Inventar im Kompartiment „Zerfallen“ anfangs wegen der kurzlebigen Radionuklide schnell an.

Eine andere Darstellungsform zeigt, wie das aktuelle Inventar auf die Kompartments im Nahfeld aufgeteilt ist. In diesem Fall können sich die Inventare wegen der Überschneidung einzelner Kompartments zu mehr als 100 % addieren. In Abbildung 6.4 und 6.5 sind Beispiele für hypothetische Endlager im Salinar und Granit dargestellt.

Abbildung 6.4 zeigt den zeitlichen Verlauf des noch nicht mobilisierten Inventars in allen Abfallgebinden, der Summe des mobilisierten und nicht mobilisierten Inventars in allen Einlagerungsorten und des Gesamtinventars im Nahfeld. Das durch Überschreiten von Löslichkeitsgrenzen ausgefällte Inventar ist im Bodenkörper. Es ist deutlich zu erkennen, dass fast das gesamte Inventar des Nahfelds in den Abfallgebinden verbleibt. Dies verdeutlicht die spezielle Eigenschaft eines Nahfelds im Salinar, die Abfälle komplett einzuschließen, wodurch nur wenige Abfallgebinde zur Radionuklidfreisetzung beitragen.

In Abbildung 6.5 ist der zeitliche Verlauf der Inventare für ein Endlager im Granit dargestellt. Die Ergebnisse stammen aus dem Projekt SPIN [2]. In diesem Fall sind alle Behälter 1000 Jahre lang intakt, danach wird angenommen, dass sie alle instantan ausfal-

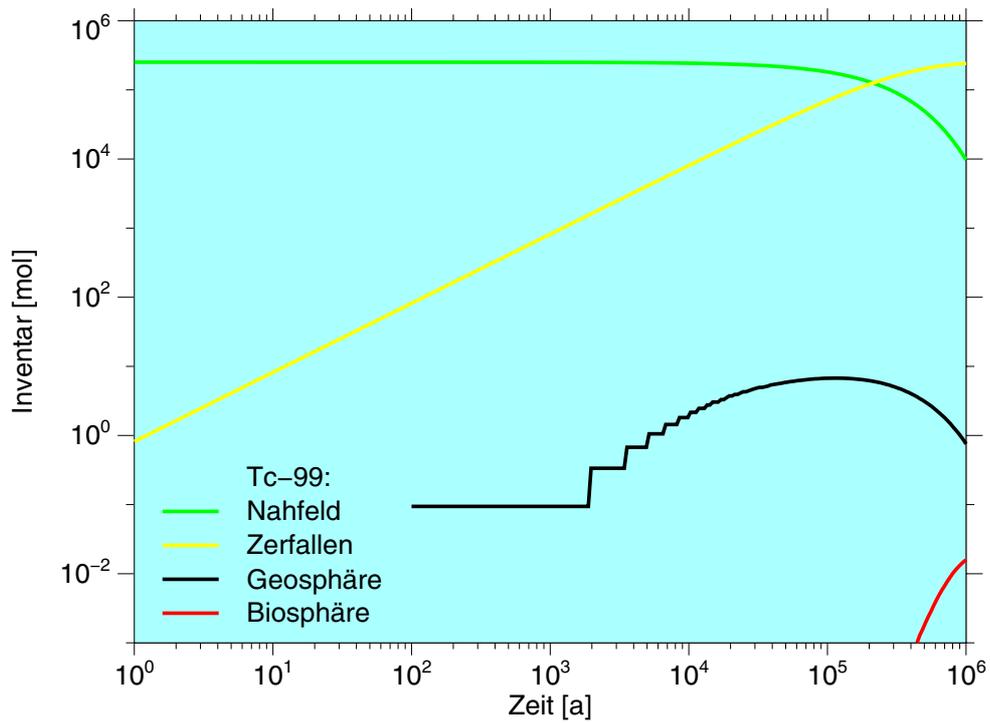


Abb. 6.1 Inventar von Tc-99 in Teilbereichen eines Endlagersystems im Salinar

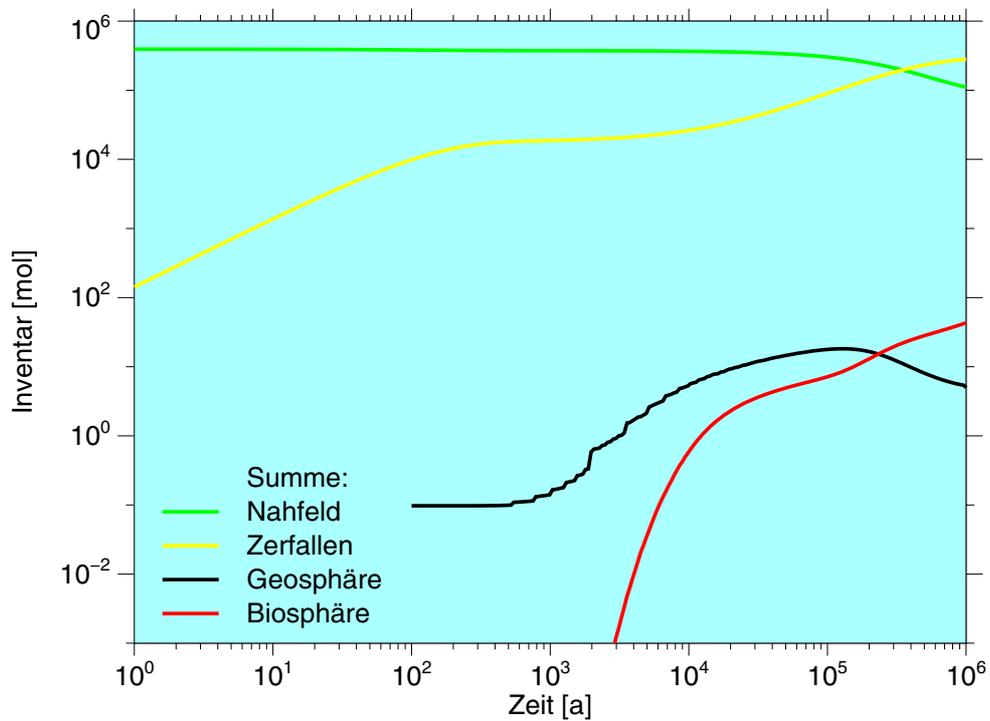


Abb. 6.2 Inventar in Teilbereichen eines Endlagersystems im Salinar für die Summe über alle Radionuklide

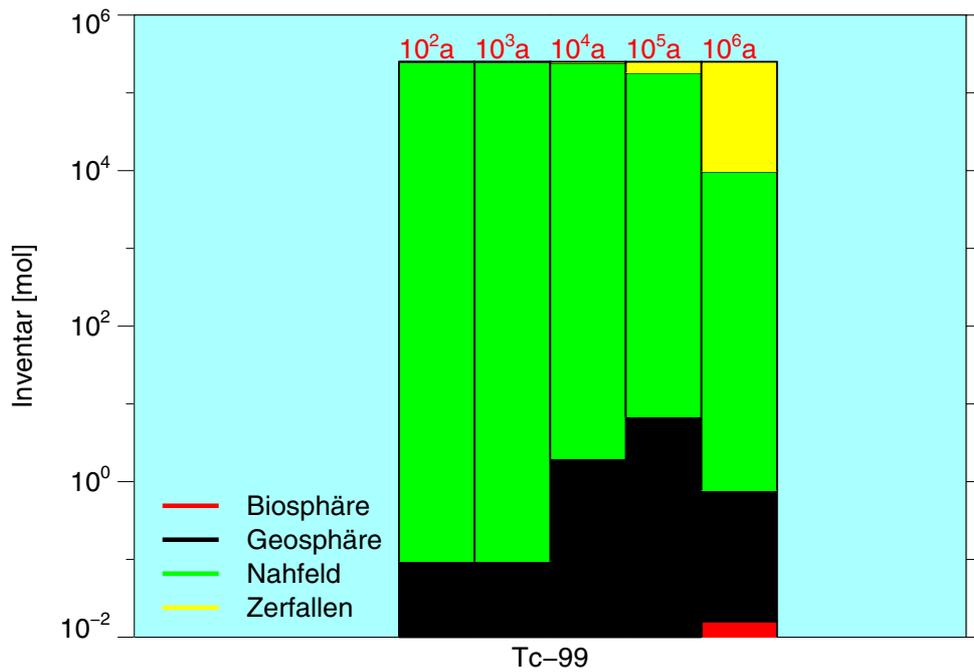


Abb. 6.3 Inventar von Tc-99 in Teilbereichen eines Endlagersystems im Salinar

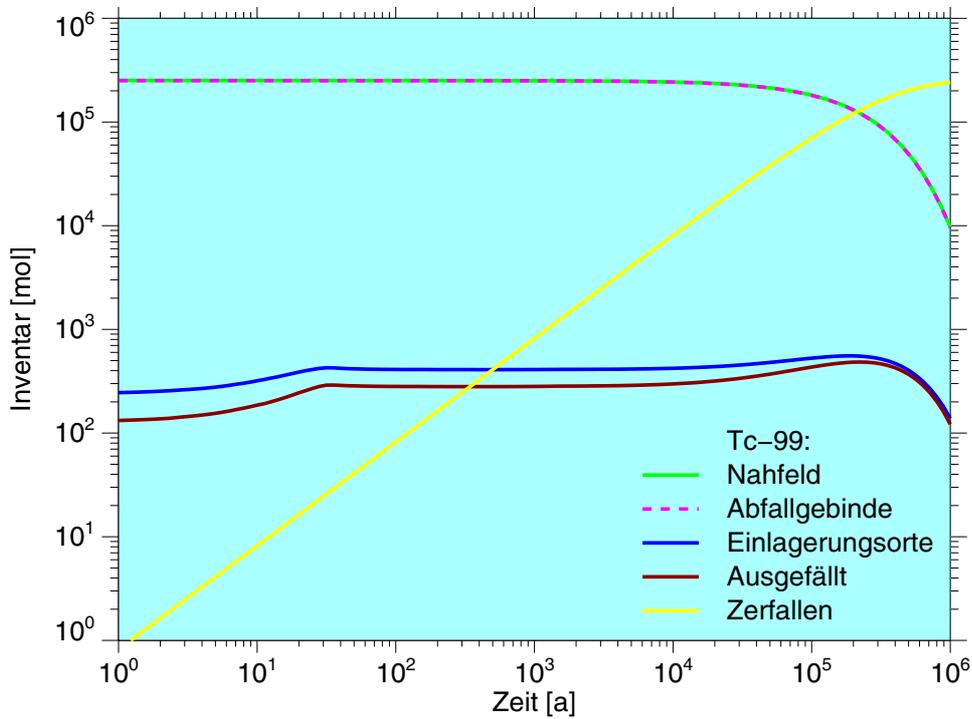


Abb. 6.4 Inventare in Teilbereichen des Nahfelds im Salinar

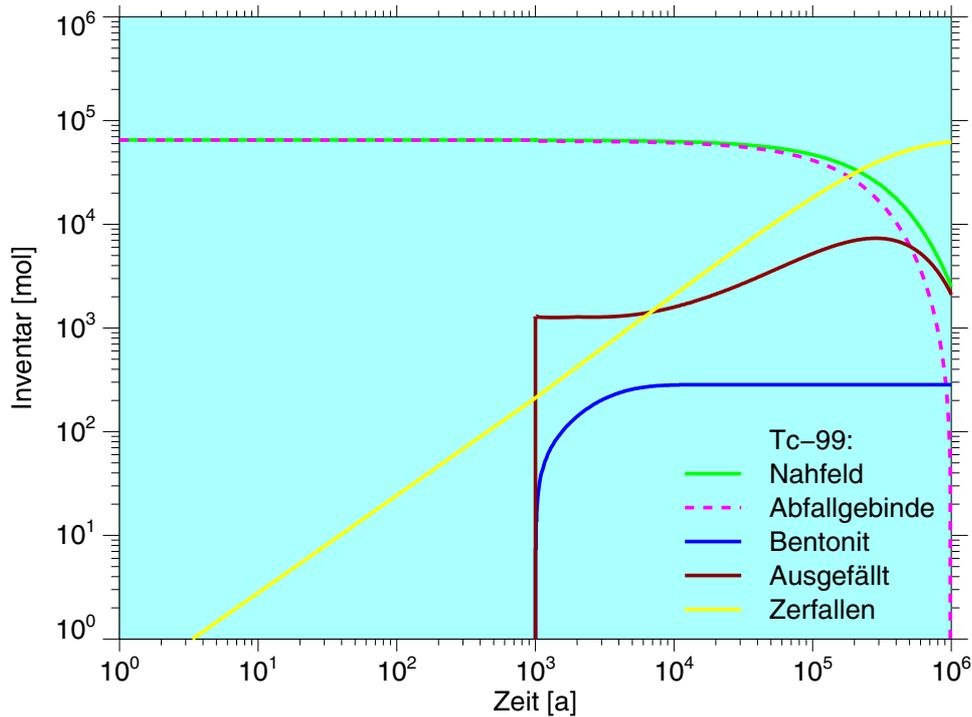


Abb. 6.5 Inventare in Teilbereichen des Nahfelds im Granit

len. Das Inventar des Nahfelds ist über lange Zeit in den Abfallgebinden, zu späten Zeiten wird das Inventar komplett freigesetzt. Es befindet sich dann überwiegend ausgefällt im Bodenkörper innerhalb der Bentonit-Barriere.

6.1.3 Schlussfolgerungen

Die zeitlichen Verläufe und die Balkendiagramme der Inventare in Kompartments zeigen anschaulich den aktuellen Aufenthaltsort ausgewählter Schadstoffe im Endlagersystem. Es können sowohl die Inventare radioaktiver als auch nicht radioaktiver Schadstoffe dargestellt werden. Mit Hilfe der Balkendarstellungen lässt sich außerdem die Qualität einer Rechnung überprüfen, da sich die Inventare in ausgewählten Kompartments zu 100 % addieren müssen.

6.2 Visualisierungsmethoden für netzartige Grubengebäudestrukturen

Zur Bewertung der Langzeitsicherheit eines Grubengebäudes im Salinar wird u.a. das Rechenprogramm LOPOS verwendet [18]. Mit diesem Programm wird die Freisetzung von Schadstoffen aus netzartig verknüpften Strukturen des Grubengebäudes berechnet. Mit dem hier vorgestellten Werkzeug können die für eine LOPOS-Rechnung benötigten Eingabedaten zur Struktur des Grubengebäudes eingegeben sowie die Grubengebäude dreidimensional dargestellt und ausgewählte Rechenergebnisse farblich in dieser Struktur abgebildet werden. Hierzu wird die kommerzielle Software AutoCAD[®] benötigt.

6.2.1 Leistungsumfang des entwickelten Prä- und Postprozessors

Der Postprozessor wurde als X-Window-Anwendung mit grafischen Bedienungsoberflächen für SUN-Rechenanlagen entwickelt. Er besteht aus mehreren Teilen, siehe Abbildung 6.6:

- Eingabe der Geometrie- und Strukturdaten (Knoten und Segmente),
- Erzeugung von AutoCAD[®]-Dateien,
- Erzeugung von LOPOS-Eingabedateien,
- Postprozessor zur Verarbeitung von LOPOS-Ausgabedateien.

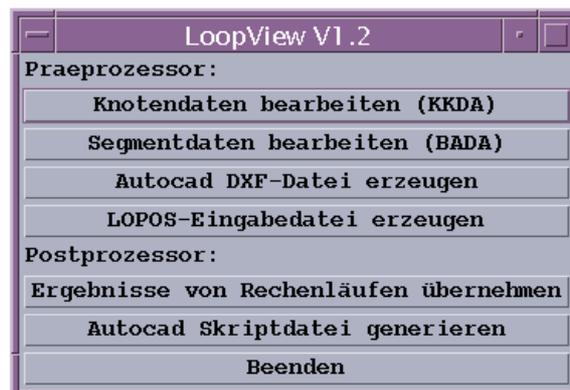


Abb. 6.6 Hauptmenü des Prä- und Postprozessors LoopView, Version 1.2

Mit Hilfe des Postprozessors können ausgewählte Ergebnisse von LOPOS-Rechenläufen auf die mit AutoCAD dargestellte Struktur farblich übertragen werden. In der derzeitigen Version sind dies die Konzentration eines ausgewählten Schadstoffs und Flüssigkeits-

mengen. Unterschiedliche Konzentrationen werden farblich unterschieden, unterschiedliche Füllhöhen von Flüssigkeit werden durch anteilige Blaufärbung dargestellt. Die zusätzlich erstellte AutoCAD-Skriptdatei ermöglicht die Eingabe von Informationen für die perspektivische Ansicht des Grubengebäudes, so dass bei einer Filmerstellung alle Momentaufnahmen unter dem gleichen Betrachtungswinkel dargestellt werden.

6.2.2 Beispiele

6.2.2.1 Erzeugung von Geometrie- und Strukturdaten

Die Eingabe einer Grubengebäudestruktur erfolgt durch Angaben der x-/y-/z-Koordinaten in der „Datei mit den Knotendaten“ und durch Angabe der Verknüpfungen in der „Datei mit den Segmentdaten“. In Abbildung 6.7 ist zur Erläuterung eine einfache Grubengebäudestruktur dargestellt. Sie besteht aus sechs Verbindungsstrecken (magenta), einer Kammer mit Verschlüssen (grün) und einem Bohrloch (blau). Die Nummern bezeichnen die Knoten. Jedes Segment benötigt zur vollständigen geometrischen Beschreibung drei Knotenangaben, die beiden Endpunkte und den Mittelpunkt. Die Knoten liegen dabei jeweils in der Mitte der Querschnittsfläche eines Segments.

Die Segmentquerschnitte können entweder rund oder rechteckig sein. Beide Formen können mit oder ohne einen Verschluss modelliert werden. Ist ein Verschluss vorhanden, so muss dieser aus LOPOS-spezifischen Gründen (siehe [18]) am Anfang und am Ende des Segments berücksichtigt werden.

Die Datei mit den Knotendaten enthält nur die Koordinaten jedes Knotens in den drei Raumkoordinaten. In der Datei mit den Segmentdaten wird durch Angabe von jeweils Anfangs-, Mittelpunkts- und Endknoten ein Segment definiert. Aus der Entfernung des Anfangs- vom Endknoten wird automatisch die Länge berechnet. In den Abbildungen 6.8 und 6.9 sind Ausschnitte aus beiden Dateiararten gezeigt, um diesen Sachverhalt zu erläutern.

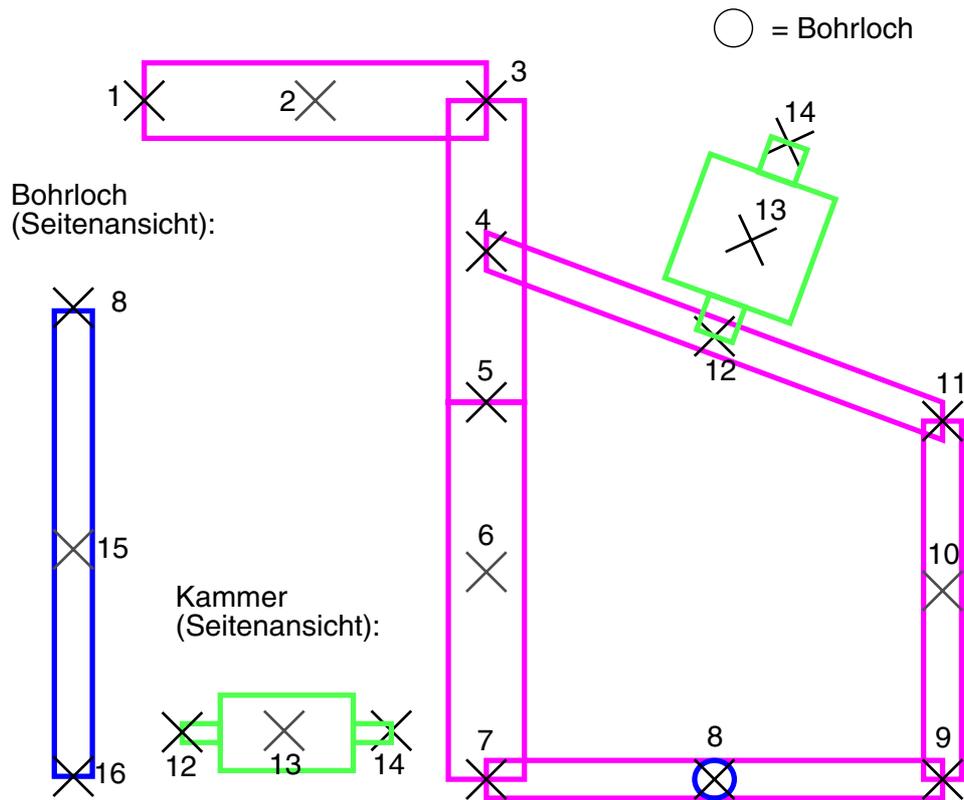


Abb. 6.7: Beispiel einer Segmentstruktur (Draufsicht und Seiten-Teilansicht)

Knotendatei (demokkda.dat) für Demonstrationszwecke

167				← Gesamtzahl Knoten
1	0.0	0.0	-42.0	
2	0.0	0.0	-133.5	
3	0.0	0.0	-225.0	
4	0.0	0.0	-33.0	
11	-100.0	-30.0	-42.0	
12	-100.0	-30.0	-133.5	
13	-100.0	-30.0	-225.0	
21	100.0	30.0	-42.0	
....				

↑ Knotennummer ↙ x, y, z - Koordinate ↑ ↘

Abb. 6.8 Ausschnitt aus einer Datei mit Knotendaten

Segmentdaten für Demonstrationszwecke
/home/benutzer/demokkda.dat

	Name der Knotendatei	Name des Segmentmodells
SEGMENT1	VVSQKB	0
	0.0	0.0
	11 12 13	0
	25 1 3 26 25	0 0 0 0 0 0 1
	0 0 2 0 0	0 0 0 0 0 0 0
	0 0 0 0 0	0 0 0 0 0 0 0
	5.89	70.0 183.00 0.0 0.0
	0.0	9.99E+5 1.10E+08 0.0
	0.0	0.0 0.0 -133.5
	0.84	0.0 0.33 0.0 0.0
	1.48	0.50 1.0 0.0 0.0
SEGMENT2	VVSQNB	0 0
	0.0	0.0
	14 15 16	0

Knotennummern des Anfangs-, Mittelpunkts- und Endknotens

Abb. 6.9 Ausschnitt aus einer Datei mit Segmentdaten

6.2.2.2 Erzeugung von AutoCAD-Dateien

Es wird aus einer vorgegebenen „Datei mit den Segmentdaten“ eine AutoCAD[®]-Datei mit der Erweiterung „.dxf“ erzeugt. In dieser Datei wird die Struktur in Draufsicht gespeichert, so dass andere Ansichten oder Skalierungen mit Hilfe von AutoCAD[®] oder einer ähnlichen Software erzeugt werden müssen.

Abbildung 6.10 zeigt ein Beispiel einer auf diese Weise erzeugten Grubengebäudestruktur. Die Einfärbung der Segmente erfolgte im Beispiel manuell, um bestimmte Bereiche hervorzuheben. Es ist jedoch auch möglich, die Farbgebung an die Segmentmodell-Namen zu koppeln, so dass alle gleichartigen Segmente farblich gleich dargestellt werden.

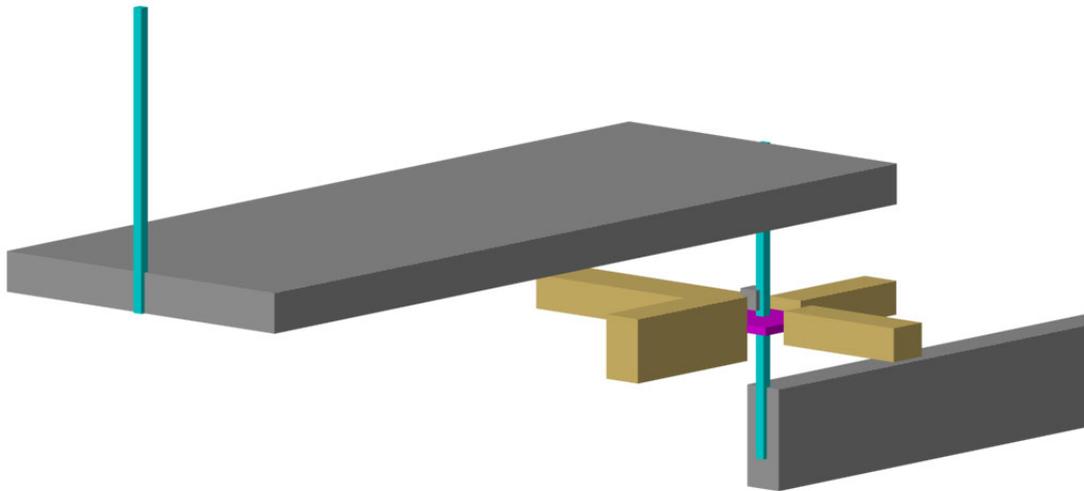


Abb. 6.10 Beispiel einer Grubengebäudestruktur, erzeugt über eine AutoCAD-Datei

6.2.2.3 Erzeugung von LOPOS-Eingabedateien

Über diesen Menüpunkt wird eine LOPOS-spezifische Strukturdatei erzeugt. Dabei wird über gemeinsame Knoten der Segmente eine Verknüpfungsmatrix der Segmente erstellt. Auf diese Datei wird hier nicht näher eingegangen, sondern auf die Beschreibung der SUDA-Datei in [18] verwiesen.

6.2.2.4 Postprozessor

Die Ergebnisse von Langzeitsicherheitsanalysen mit dem Rechenprogramm LOPOS werden in ASCII-Dateien gespeichert. Die berechneten Schadstoffkonzentrationen und die Flüssigkeitsvolumina können mit dem Postprozessor auf Grubengebäudestrukturen abgebildet werden, wie sie in Kapitel 6.2.2.2 beschrieben sind. Die Daten sind in den ASCII-Dateien mit den Erweiterungen rnd und rzv gespeichert.

Abbildung 6.11 zeigt als Beispiel die zeitliche Entwicklung der Schadstoffkonzentration in einem hypothetischen Grubengebäude. In den blau gefärbten Bereichen ist Anfangs kein Schadstoff vorhanden, in den rot eingefärbten Bereichen tritt die Maximalkonzentra-

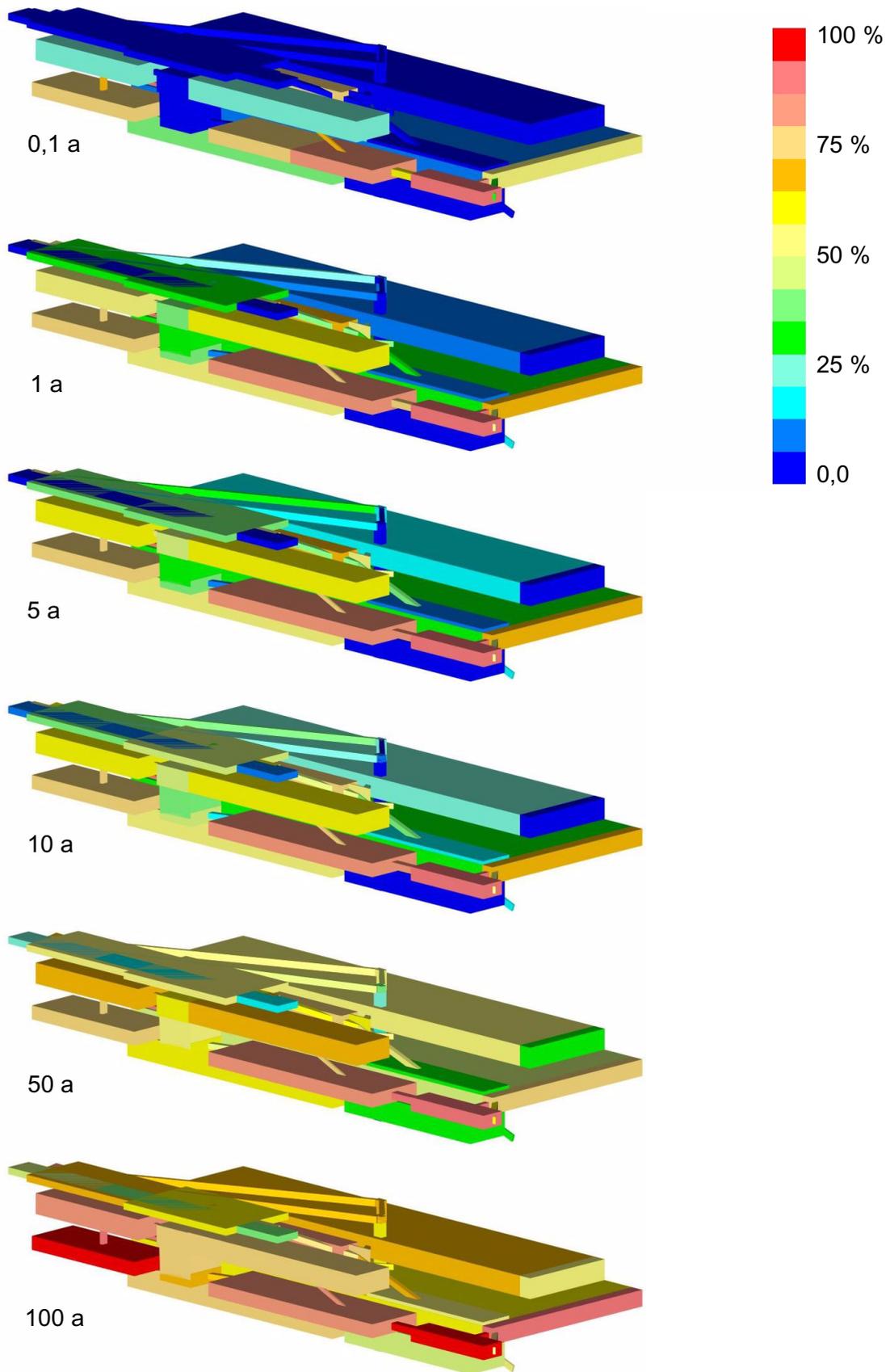


Abb. 6.11 Entwicklung der Schadstoffkonzentration in einem Grubengebäude

tion auf. Die langsame Ausbreitung des Schadstoffs von den anfangs hellrot gefärbten Bereichen in die angrenzenden Segmente ist deutlich zu erkennen. Außerdem ist die Zunahme der Konzentration in allen Segmenten erkennbar.

Abbildung 6.12 zeigt die zeitliche Entwicklung der Flüssigkeitsmengen in einem hypothetischen Grubengebäude. Der Anteil des gefüllten Bereichs in jedem Segment ist durch blaue Farbe kenntlich gemacht, ungefüllte Bereiche sind grau.

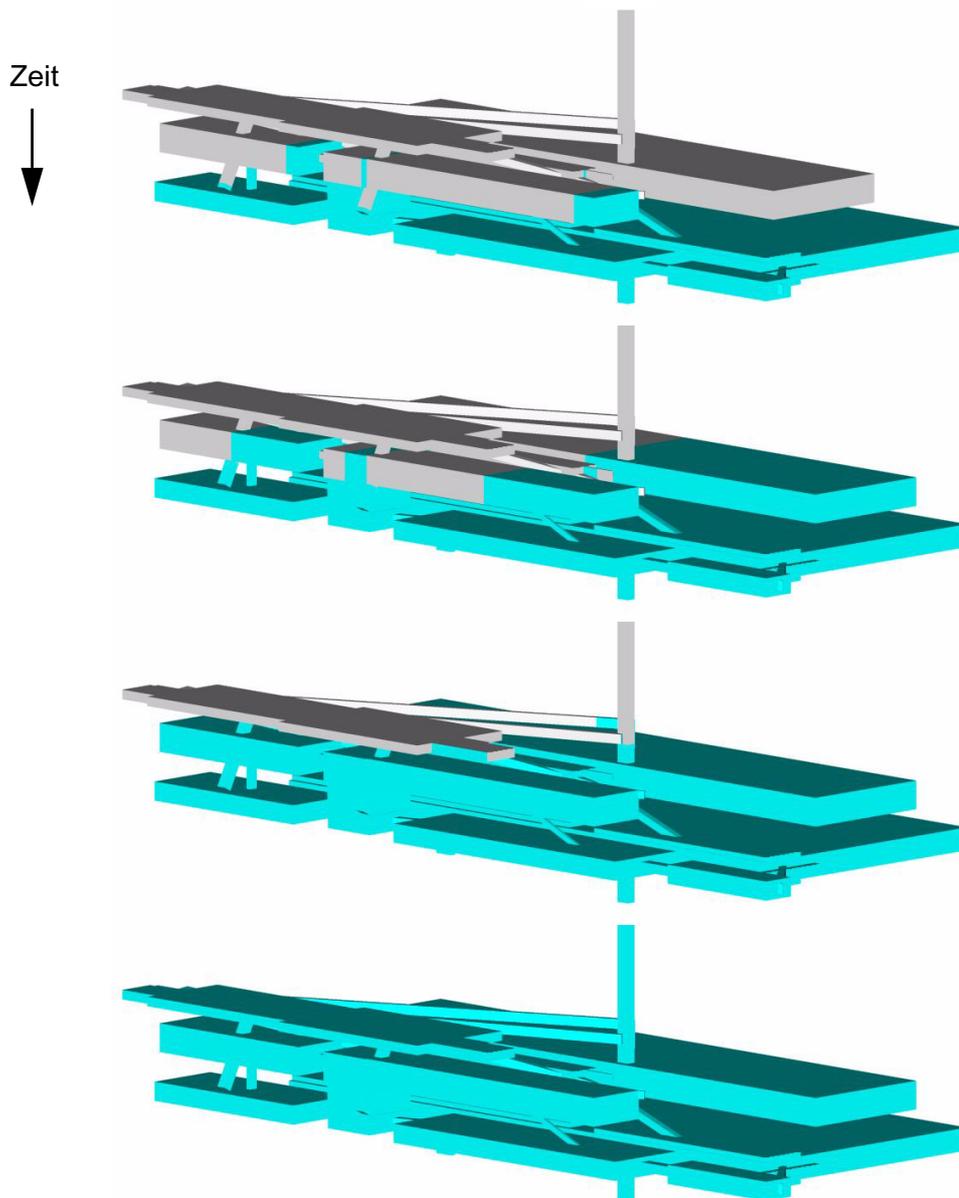


Abb. 6.12 Entwicklung der Flüssigkeitsmenge in einem Grubengebäude

Außer der Darstellung der Schadstoffkonzentrationen und der Flüssigkeitsmengen in Einzelbildern ist eine Darstellung in Filmsequenzen vorgesehen. Hierzu werden eine beliebige Anzahl von Einzelbildern generiert und mit Hilfe von zusätzlicher Software als Filme im avi- oder mpeg-Format gespeichert. Zu diesem Zweck werden Hilfsdateien vom Postprozessor erzeugt, in denen die perspektivische Ansicht der Grubengebäudestruktur festgelegt wird und in denen für jedes generierte Bild der zugehörige Simulationszeitpunkt gespeichert wird.

6.2.3 Zusammenfassung

Der Präprozessor von LoopView ermöglicht über eine grafische Bedienungsfläche die Eingabe der Geometrie- und Strukturdaten von Grubengebäuden im Salinar. Aus den eingegebenen Daten kann automatisch eine Strukturdatei erzeugt werden (SUDA-Datei), die für LOPOS-Rechnungen benötigt wird. Die eingegebene Struktur kann als AutoCAD-Datei ausgegeben und damit für Berichte weiterverarbeitet werden.

Der Postprozessor von LoopView ermöglicht unter Verwendung der Grubengebäudesstruktur die grafische Ausgabe einiger Rechenergebnisse des Programms LOPOS. Es können die Schadstoffkonzentrationen und die Flüssigkeitsmengen in den einzelnen Segmenten dargestellt werden. Darüberhinaus ist die Ausgabe von mehreren Abbildungen in einer zeitlichen Sequenz möglich, woraus Filme erzeugt werden können, um die zeitliche Entwicklung der Konzentrationen und Flüssigkeitsmengen zu präsentieren.

7 Zusammenfassung

Mit dem Programmpaket EMOS stehen Rechenprogramme für die numerische Modellierung von Teilbereichen eines Endlagers für radioaktive Abfälle im Hinblick auf die Analyse der Langzeitsicherheit zur Verfügung. Um dem Aspekt fortschreitender wissenschaftlicher Erkenntnisse Rechnung zu tragen, wurden diese Programme auf einen aktuellen Stand gebracht. Die Anpassung der Programme umfasste die folgenden, voneinander unabhängigen Einzelthemen:

- Untersuchung des Einflusses von Kolloiden in einer Granit- oder Tonformation auf den Schadstofftransport durch die Geosphäre,
- Untersuchung des Einflusses der Aufsättigung einer Bentonitbarriere auf die Freisetzung aus dem Nahfeld eines Endlagers im Granit,
- Verifizierung der Modelle zur Überlagerung von advektivem und konvektivem Fluss im Nahfeld durch Vergleich mit einem mehrdimensionalen Rechencode,
- Überprüfung der eingesetzten Methoden zur probabilistischen Langzeitsicherheitsanalyse unter dem Aspekt neuerer Entwicklungen und Bereitstellung eines aktualisierten Instrumentariums,
- Bereitstellung erweiterter Möglichkeiten der Ergebnisdarstellung und Dateneingabe.

Es wurde ein Modell zur Berechnung des kolloidgetragenen Schadstofftransports in einer Kluft entwickelt. Dieses berücksichtigt lineare Sorption, da für Modelle mit nichtlinearer Sorption keine Daten zur Verfügung standen. Das Modell wurde in das Fernfeldmodul CHETMAD integriert. Mit einer Prinzipstudie wurde gezeigt, dass Kolloide den Schadstofftransport im allgemeinen beschleunigen. Bei Sorption der Kolloide an der Kluftwand kann der Schadstofftransport verlangsamt werden. Am Beispiel des BENIPA-Referenzfalls wurden die Auswirkungen des kolloidgetragenen Schadstofftransports im Rahmen einer Langzeitsicherheitsanalyse untersucht. Mit den zugrunde gelegten Parameterwerten erhöhte sich das Maximum der Summe der Strahlenexpositionen um einen Faktor 1,6. Für zukünftige Sicherheitsanalysen steht damit das Instrumentarium zur Berücksich-

tigung des kolloidgetragenen Schadstofftransports zur Verfügung. Unter der Voraussetzung, dass die Mengen und Verteilungskoeffizienten der Kolloide bekannt sind, lassen sich damit zusätzliche Aussagen zur Langzeitsicherheit eines Endlagers ableiten.

Zur Berechnung der Aufsättigung einer Bentonitbarriere wurden Modelle und Computer-codes verwendet, die an anderer Stelle entwickelt wurden. Bei Anwendung auf den BENIPA-Referenzfall ergeben sich unter Atmosphärendruck Aufsättigungsdauern von einigen 10 Jahren. Diese Werte verringern sich deutlich, wenn Drücke und Temperaturen zugrunde gelegt werden, die in einem Grubengebäude herrschen. Bei einer Korrosionsdauer der eingelagerten Behälter von ca. 1000 Jahren ist es dann gerechtfertigt, die berechneten Aufsättigungsdauern zu vernachlässigen, bzw. die Aufsättigungsdauer in der Korrosionsdauer zu integrieren. Da die Modelle zur Aufsättigung des Bentonits bezüglich der Temperatur und des Drucks noch nicht abgesichert sind, besteht weiterer Bedarf zur Untersuchung dieses Effektes.

In den Nahfeldmodulen REPOS und LOPOS wird der Schadstofftransport zwischen Segmenten durch ein eindimensionales Modell beschrieben. An der Schnittstelle zwischen Segmenten mit unterschiedlichem Querschnitt sind dabei Vereinfachungen erforderlich. Durch zweidimensionale Vergleichsrechnungen mit dem Strömungsprogramm d^3f wurde untersucht, wie stark sich diese Vereinfachungen auf den Schadstofftransport zwischen den Segmenten auswirken. Die Übereinstimmung war in allen untersuchten Fällen ausreichend, so dass die Transportmodellierung in REPOS und LOPOS bezüglich Advektion und Diffusion abgesichert ist.

Mit dem kommerziellen Softwareprodukt SimLab steht ein Werkzeug mit modernen statistischen Verfahren für probabilistische Sicherheitsanalysen zur Verfügung. Es kann als Prä- und Postprozessor für das Programmpaket EMOS eingesetzt werden. Anhand von Beispielen wurde der Leistungsumfang von SimLab getestet und mit dem Leistungsumfang des alten Statistik-Postprozessors EMOSStatist verglichen. Deutliche Unterschiede sind in den Testfällen mit vielen Nullspielen festzustellen, d.h. in denen in vielen Rechenläufen keine Strahlenexposition berechnet wurde. Die neuen Verfahren von SimLab sind grundsätzlich aussagekräftiger. Bei zukünftigen Langzeitsicherheitsanalysen können beide Werkzeuge eingesetzt werden. Das in einer neuen Version von SimLab verfügbare

Sobol-Verfahren wurde noch nicht getestet, da die erforderliche Software nicht zur Verfügung stand. Es ist zu erwarten, dass diese Methode zu ähnlichen Resultaten führen wird, wie die hier untersuchte FAST-Methode.

Der neu entwickelte Postprozessor EmosSchad ermöglicht die Darstellung der Schadstoffverteilung im Endlagersystem. Auf diese Weise können die Abnahme der Schadstoffmengen in den eingelagerten Abfällen und die Zu- und Abnahme der Mengen im Grubengebäude und in der Geosphäre verdeutlicht werden. Insbesondere bei kurzlebigen Radionukliden, deren Gesamtinventar im Lauf der Zeit abnimmt, lässt sich damit anschaulich erläutern, wo sich das aktuelle Inventar zu einem bestimmten Zeitpunkt befindet.

Grubengebäude im Salinar sind im allgemeinen als Netzwerke strukturiert. Für die Umsetzung solcher netzartigen Strukturen in Eingabedaten des Nahfeldmoduls LOPOS wurde ein Präprozessor entwickelt. Mit dem dazugehörigen Postprozessor können die Eingabedaten als dreidimensionale Struktur wiedergegeben werden. Hierzu wird die kommerzielle Software AutoCAD benötigt. Prä- und Postprozessor wurden als ein Computercode mit dem Namen LoopView entwickelt. Als weitere Option bietet LoopView die Möglichkeit, ausgewählte Rechenergebnisse auf die dreidimensionale Struktur abzubilden. Auf diese Weise kann zum Beispiel die Konzentration von Schadstoffen in der Grube farblich dargestellt werden. Werden mehrere Momentaufnahmen dieser Schadstoffkonzentrationen angefertigt, können daraus auch Filme im mpeg-Format generiert werden, welche dann die zeitliche Entwicklung der Konzentrationen wiedergeben.

Der vorliegende Bericht beschreibt einige Entwicklungen des Programmpakets EMOS, die vorgenommen wurden, um EMOS auf den aktuellen Stand von Wissenschaft und Technik zu bringen. Andere Arbeiten wurden vorgenommen, um die Qualität der Modellierung in EMOS zu überprüfen und um die Präsentation der Rechenergebnisse zu verbessern. Das Programmpaket EMOS ist als Folge dieser Arbeiten in zukünftigen Langzeitsicherheitsanalysen mit einem verbesserten Leistungsumfang einsetzbar.

Literatur

- [1] Alonso, J.; Becker, D.-A.; Storck, R.; Johnson, L.; Hart, J.; Marivoet, J.; Sillen, X.; Vieno, T.; Nordman, H.; Petkovsek, B.: Bentonite Barriers in Intergrated Performance Assessment (BENIPA). European Commission, 2003. To be published.
- [2] Becker, D.-A.; Buhmann, D.; Storck, R.; Alonso, J.; Cormenzana, J.-L.; Hugi, M.; van Gemert, F.; O'Sullivan, P.; Laciok, A.; Marivoet, J.; Sillen, X.; Nordman, H.; Vieno, T.; Niemeyer, M.: Testing of Safety and Performance Indicators (SPIN), EUR 19965 EN, European Commission, Brussels 2003.
- [3] Börgesson, L.: Water Flow and Swelling Pressure in Non-Saturated Bentonite-Based Clay Barriers. Clay Barriers for Isolation of Toxic Chemical Wastes, International Symposium, May 28-30, Stockholm 1984.
- [4] Bucher, F., Müller-Vonmoos, M.: Bentonite als technische Barriere bei der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle. Mitteilungen des IGB der ETH Zürich, Heft 133, S 51-64, 1987.
- [5] Buck, E.C.; Bates J.K.: Microanalysis of colloids and suspended particles from nuclear waste glass alteration. Appl- Geochem. 14, 635-653, 1999.
- [6] Buhmann, D.: Das Programmpaket EMOS. Ein Instrumentarium zur Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagern. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-159, Braunschweig 1999.
- [7] Buhmann, D.; Nies, A.; Storck, R.: Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagerkonzepten für wärmeerzeugende radioaktive Abfälle. GSF-Bericht 27/91. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig 1991.
- [8] Carslaw, H.S.; Jaeger, J.C.: Conduction of Heat in Solids. 2. Auflage, Oxford University Press, 1959.
- [9] Conover, W. J.: Practical Nonparametric Statistics, 2nd ed., Wiley 1980.

- [10] Degueudre, C.: Colloid Properties in Groundwaters from Crystalline Formations. Technical Report 92-05. Nagra, Wettingen 1994.
- [11] Fein, E. (Ed.): r³t - A Software Package to Model Transport and Retention in Porous Media. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-192, Braunschweig 2004.
- [12] Fein, E.; Schneider, A.: d³f - Ein Programm zur Modellierung von Dichteströmungen. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-139, Braunschweig 1999.
- [13] Feng, X.; Buck, E.C.; Mertz, C.; Bates, J.K.; Cunnane, J.C.; Chaiko, D.J.: Characteristics of colloids generated during corrosion of nuclear waste glasses in groundwater. Radiochim. Acta 66/67, 197-205, 1994.
- [14] Finn, P.A.; Buck, E.C.; Gong, M.; Hoh, J.C.; Emery, J.W.; Hafenrichter, L.D.; Bates, J.K.: Colloidal Products and Actinide Species in Leachate from Spent Nuclear Fuel. Radiochim. Acta 66/67, 189-195, 1994.
- [15] Gardiner, M.P.; Grindrod, P.; Moulin, V.: The role of colloids in transport of radionuclides from a radioactive waste repository: implications on safety assessment. EUR 19781 EN, European Commission, Brussels 2001.
- [16] Geckeis, H.; Missana, T.: The CRR Final Project Report Series: 2 - Results of the Supporting Laboratory Programme; NTB 03-02; Nagra; Wettingen 2003.
- [17] Hairer, E.; Norsett, S. P.; Wanner, G.: Solving Ordinary Differential Equations I, 2. Auflage, Springer-Verlag 1993
- [18] Hirsekorn, R.-P.; Boese, B.; Buhmann, D.: LOPOS: Programm zur Berechnung der Schadstofffreisetzung aus netzwerkartigen Grubengebäuden. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-157, Braunschweig 1999.
- [19] Jakob, A.; Hadermann, J.; Rösel, F.: Radionuclide chain transport with matrix diffusion and non-linear sorption. Technical Report 90-13, Nagra, Baden 1990

- [20] JNC - Japan Nuclear Cycle Development Institute: H12 Project to Establish Technical Basis for HLW Disposal in Japan, Supporting Report 2, Repository Design and Engineering Technology. JNC-Bericht JNC TN1 400 99-012, Draft, May 1999.

- [21] Kahr, G.; Kraehenbuehl, F.; Müller-Vonmoos, M.; Stoeckli, H.F.: Wasseraufnahme und Wasserbewegung in hochverdichtetem Bentonit. NAGRA, Technischer Bericht 86-14, 1986.

- [22] Kröhn, K.-P.: New conceptual models for the resaturation of bentonite. Proceedings des Workshops „Clay Microstructure and its Importance to Soil Behaviour“ in Lund, 2002, Applied Clay Science, Vol. 23, 2003.

- [23] Kröhn, K.-P.: Results and interpretation of bentonite resaturation experiments with liquid water and water vapour. (to be published). International conference on unsaturated soils, Weimar 2003.

- [24] Kröhn, K.-P.: Modelling the re-saturation of bentonite in final repositories in crystalline rock. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-199, Braunschweig 2004.

- [25] Laaksoharju, M.: Äspö Hard Rock Laboratory, Project description of the Äspö project Colloid with the aim to investigate the stability and mobility of colloids, SKB IPR-01-08, Stockholm 2000.

- [26] Lührmann, L.; Noseck, U.; Storck, R.: Spent Fuel Performance Assessment (SPA) for a hypothetical repository in crystalline formations in Germany. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-154, Braunschweig 2000.

- [27] Missana, T.; Alonso, U.; Turrero, M.J.: Generation and stability of bentonite colloids at bentonite/granite interface of a deep geological radioactive waste repository. Journal of Contaminant Hydrogeology 61, 17-31, 2003.

- [28] Möri, A.; Alexander, W.R.; Geckeis, H.; Hauser, W.; Schäfer, T.; Eikenberg, J.; Fierz, Th.; Degueudre C.; Missana, T.: The colloid and radionuclide retardation experiment at the Grimsel Test Site: influence of bentonite colloids on radionuclide migration in a fractured rock; *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* 217, 33-47, 2003.
- [29] Möri, A (Ed): The CRR Final Project Report Series: 1 - Description of the Field Phase - Methodologies and Raw Data; NTB 03-01, Nagra, Wettingen 2003.
- [30] Mooney, R. W.; Keenan, A.G.; Wood, L.A.: Adsorption of Water Vapour by Montmorillonite; I: Heat of Desorption and Application of BET Theory. *Journal of the American Chemical Society*, Vol. 74, No. 6, 1952.
- [31] NAGRA: Kristallin-I, Safety Assessment Report, Technical Report 93-22, Wettingen 1994.
- [32] Plaschke, M.; Schäfer, T., Bundschuh, T.; Ngo Manh, T.; Knopp, R.; Geckeis, H.; Kim, J.I.: Size Characterization of Bentonite Colloids by Different Methods. *Anal. Chem.*, 4338-4347, 2001.
- [33] Pusch, R.: Water uptake, migration and swelling characteristics of unsaturated and saturated, highly compacted bentonite. KBS Report 80-11, SKB, Stockholm 1980.
- [34] Pusch R.: Clay colloid formation and release from MX-80 buffer, TR-99-31. SKB, Stockholm 1999.
- [35] Saltelli, A.; Chan, K.; Scott, E.M. (ed): *Sensitivity Analysis*, Wiley, 2000.
- [36] Saltelli, A.; Tarantola, S.; Chan, K.P.-S.: *Sensitivity Analysis of Model Output: an Improvement of the FAST Method*, EUR 17338 EN, European Commission, Brussels 1997.
- [37] Saltelli, A.; Bolado, R.: An alterative way to compute Fourier amplitude sensitivity test (FAST). *Computational Statistics & Data Analysis* 26, 445 - 460, 1998.

- [38] Schäfer, T.; Bauer, A.; Bundschuh, T.; Rabung, T.; Geckeis, H.; Kim, J.I.: Colloidal Stability of Inorganic Colloids in Natural and Synthetic Groundwater. Proceedings of the ICAM 2000, In: Applied Mineralogy, Rammlmair et al. (eds.), 675-678, Balkema, Rotterdam 2000.
- [39] Schneider, J. and Zuidema, P.: Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). Technical Report 02-05, Nagra, Wettingen 2002.
- [40] SimLab 1.1 Reference Manual, POLIS-JRC ISIS 2001.
- [41] Smith, P.A.: A model for Colloid Facilitated Radionuclide Transport Through Fractured Media, PSI 93-04. Paul Scherrer Institut, Villingen 1993.
- [42] SKI: SKI Site-94. Deep Repository Performance Assessment Project, Vol. I & II, Technical Report TR 96:36 Vol. I & Vol. II, Stockholm 1996.
- [43] Storck, R.; Aschenbach, J.; Hirsekorn, R.-P.; Nies, A.; Stelte, N.: Performance Assessment of Geological Isolation Systems for Radioactive Waste (PAGIS): Disposal in Salt Formations. EUR 11 778 EN, GSF-Bericht 23/88. Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH München, European Commission, Brussels 1988.
- [44] Storck, R.; Buhmann, D.; Hirsekorn, R.-P.; Kühle, T.; Lührmann, L.: Das Programmpaket EMOS zur Analyse der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle. Version 5. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-122, Braunschweig 1996.
- [45] Turrero, M.J.; Gómez, P.; Rivas, P.; Melón, A.M.; Adell, A.: Colloid Properties, Application to a Site: El Berrocal (Spain); The Role of Colloids in the Transport of Radionuclides in Geological Media. EUR 16880 EN, European Commission, Brussels 1996.
- [46] Vieno, T.; Nordman, H.: Safety Assessment of Spent Fuel Disposal in Hästholmen, Kivetty, Olkiluoto and Romuvaara. TILA-99, Helsinki, March 1999.

- [47] Vilks, P.; Frost, L.H.; Bachinski, D.B.: Field-scale colloid migration experiments in a granite fracture. *Journal of Contaminant Hydrology* 26, 103-214, 1997.
- [48] Vilks, P.; Baik, M.H.: Laboratory migration experiments with radionuclides and natural colloids in a granite fracture. *Journal of Contaminant Hydrology* 47, 197-210, 2001.

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Schematische Darstellung des kolloidgetragenen Schadstoff- transports	8
Abb. 2.2	Zeitliche Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld für ein langlebiges Radionuklid bei einem zeitlich konstanten Strom aus dem Nahfeld.	28
Abb. 2.3	Zeitliche Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld bei einem auf 100 Jahre zeitlich begrenzten Strom eines langlebigen Nuklids aus dem Nahfeld.....	29
Abb. 2.4	Zeitliche Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld für einen über 100 Jahre zeitlich begrenzten Strom aus dem Nahfeld für zwei Radionuklide mit unterschiedlichen Halbwertszeiten (HWZ).....	31
Abb. 2.5	Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld von der Kolloidgeschwindigkeit.....	32
Abb. 2.6	Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld von der Sorption der Kolloide an der Kluftwand bei starker Matrixsorption	33
Abb. 2.7	Abhängigkeit des Nuklidstroms aus dem Fernfeld von der Sorption der Kolloide an der Kluftwand bei schwacher Matrixsorption	34
Abb. 2.8	Nuklidstrom aus dem Nahfeld im BENIPA-Referenzfall.....	36
Abb. 2.9	Einfluss der Kolloidkonzentration auf die Strahlenexposition	38
Abb. 2.10	Relative Strahlenexposition in Abhängigkeit von der Kolloid- konzentration	39
Abb. 2.11	Strahlenexposition durch Sn-126 in Abhängigkeit von der Kolloid- konzentration	40
Abb. 2.12	Strahlenexposition durch Pu-240 in Abhängigkeit von der Kolloid- konzentration	41
Abb. 3.1	Geometrische Vereinfachung des Modellgebietes für einen Bentonitbuffer	47
Abb. 3.2	Aufsättigung des Bentonits mit flüssigem Wasser im Advektionsmodell	50
Abb. 3.3	Aufsättigung des Bentonits mit Wasserdampf im Dampf- diffusionsmodell	51

Abb. 3.4	Einlagerung eines Abfallbehälters mit Bentonitbuffer	53
Abb. 3.5	Ergebnisse des Advektionsmodells und des empirischen Diffusionsmodells zum Referenzfall.....	55
Abb. 3.6	Ergebnisse des Advektionsmodells zum Referenzfall und zur Variante	56
Abb. 3.7	Ergebnisse des Dampfdiffusionsmodells zum Referenzfall und zur Variante für eine Referenzhydratationsrate von $1 \cdot 10^{-8}$ 1/s	57
Abb. 3.8	Variation der Referenzhydratationsrate im Referenzfall	59
Abb. 3.9	Variation der Referenzhydratationsrate in der Variante	59
Abb. 4.1	Modellgebiet aus zwei Segmenten mit Vergleichspunkten M und A	63
Abb. 4.2	Randbedingungen des Strömungsmodells in d^3f und LOPOS.....	66
Abb. 4.3	Homogenes Feld der Darcy-Geschwindigkeit in d^3f für die Testfälle mit konstantem Segmentquerschnitt (Referenzfall, Fall P1, Fall P2)....	67
Abb. 4.4	Darcy-Geschwindigkeitsfeld in d^3f bei Querschnittserweiterung im Fall Q1	67
Abb. 4.5	Darcy-Geschwindigkeitsfeld in d^3f bei Querschnittsverengung im Fall Q2	67
Abb. 4.6	Randbedingungen des Transportmodells.....	70
Abb. 4.7	LOPOS-Teilsegmente etwa eines Fünftels des Segmentes 1	71
Abb. 4.8	d^3f -Diskretisierungsgitter etwa eines Fünftels des Segmentes 1	71
Abb. 4.9	Konzentrationsverläufe des Referenzfalles.....	73
Abb. 4.10	Konzentrationsverläufe des Falles P1	74
Abb. 4.11	Konzentrationsverläufe des Falles P2	74
Abb. 4.12	Differenz der Konzentrationen $c_{d3f} - c_{LOPOS}$ im Punkt M.....	75
Abb. 4.13	Relativer Fehler in der Konzentration im Punkt M	75
Abb. 4.14	Differenz der Konzentrationen $c_{d3f} - c_{LOPOS}$ im Punkt A	76
Abb. 4.15	Relativer Fehler in der Konzentration im Punkt A	76
Abb. 4.16	Konzentrationsverläufe des Falles Q1	77
Abb. 4.17	Konzentrationsverteilung gemäß d^3f im Fall Q1 nach 300 Jahren	77
Abb. 4.18	Konzentrationsverläufe des Falles Q2	78
Abb. 5.1	Struktur eines einfachen Grubengebäudes.....	99

Abb. 6.1	Inventar von Tc-99 in Teilbereichen eines Endlagersystems im Salinar	114
Abb. 6.2	Inventar in Teilbereichen eines Endlagersystems im Salinar für die Summe über alle Radionuklide.....	114
Abb. 6.3	Inventar von Tc-99 in Teilbereichen eines Endlagersystems im Salinar	115
Abb. 6.4	Inventare in Teilbereichen des Nahfelds im Salinar	115
Abb. 6.5	Inventare in Teilbereichen des Nahfelds im Granit	116
Abb. 6.6	Hauptmenü des Prä- und Postprozessors LoopView, Version 1.2	117
Abb. 6.7	Beispiel einer Segmentstruktur (Draufsicht und Seiten-Teilansicht)...	119
Abb. 6.8	Ausschnitt aus einer Datei mit Knotendaten.....	119
Abb. 6.9	Ausschnitt aus einer Datei mit Segmentdaten.....	120
Abb. 6.10	Beispiel einer Grubengebäudestruktur, erzeugt über eine AutoCAD-Datei	121
Abb. 6.11	Entwicklung der Schadstoffkonzentration in einem Grubengebäude.....	122
Abb. 6.12	Entwicklung der Flüssigkeitsmenge in einem Grubengebäude.....	123

Tabellenverzeichnis

Tab. 2.1	Fernfelddaten in der Prinzipstudie (basierend auf SPA).....	26
Tab. 2.2	Geometriedaten des Fernfelds	36
Tab. 2.3	Verteilungskoeffizienten der Nuklide im Fernfeld	37
Tab. 3.1	Wasseraufnahmeraten für den Referenzfall und für die Variante in [kg/(a lfd. m Behälter)]	56
Tab. 3.2	Simulierte Aufsättigungsdauer der verschiedenen Modelle in [a].....	58
Tab. 4.1	Modellparameter des Referenzfalles und der Varianten.....	64
Tab. 4.2	Höhe H_i und Porosität der fünf Testfälle in den Segmenten 1 und 2...	72
Tab. 5.1	Quantile der Standardnormalverteilung.....	84
Tab. 5.2	Quantile der Kolmogorov-Verteilung.....	87
Tab. 5.3	Variierte Eingangsgrößen im Testfall ‚Einfaches Grubengebäude‘	99
Tab. 5.4	Bedeutungsränge der Parameter nach den klassischen Verfahren....	100
Tab. 5.5	Testfall Einfache Struktur: Koeffizienten der Modellbestimmtheit.....	101
Tab. 5.6	Testfall Einfache Struktur: FAST-Sensitivitätsindizes erster und totaler Ordnung.....	102
Tab. 5.7	Variierte Eingangsgrößen im Testfall SAM	103
Tab. 5.8	Testfall SAM: Bedeutungsränge der Parameter nach den klassischen Verfahren.....	105
Tab. 5.9	Testfall SAM: Koeffizienten der Modellbestimmtheit.....	106
Tab. 5.10	Testfall SAM: FAST-Sensitivitätsindizes erster und totaler Ordnung..	107
Tab. 5.11	Anwendungsempfehlung für verschiedene Methoden der Sensitivitätsanalyse bei unterschiedlichen Ausgangssituationen.	110
Tab. 6.1	Kompartments zur Darstellung der Schadstoffinventare	112
Tab. 6.2	Summenbildung über Radionuklide für Inventarberechnungen.....	113

**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