

Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Gase in Endlagern im Salz

Workshop der GRS in Zusammenarbeit mit dem PTKA-WTE

Berlin, 17.-18. April 2007



Gesellschaft für Anlagenund Reaktorsicherheit (GRS) mbH

Gase in Endlagern im Salz

Workshop der GRS in Zusammenarbeit mit dem PTKA-WTE

Berlin, 17.-18. April 2007

Zuammengestellt von

André Rübel Jörg Mönig

November 2008

Anmerkung:

Die diesem Bericht zugrundeliegenden Arbeiten wurden mit Mitteln des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi) unter dem Förderkennzeichen 02 E 9954 gefördert.

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

GRS - 242 ISBN 978-3-939355-16-8



Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung des Workshops

1	Vorwort	1
2	Einleitung	4
3	Gasbildung	5
4	Beeinträchtigung der Integrität der Wirtsformation	8
5	Beeinträchtigung der Integrität von Verschlussbauwerken	11
6	Transport von Gasen und Lösungen im Grubengebäude	12
7	Auswirkungen auf das chemisches Milieu im Nahfeld	13
8	Ausbreitung radioaktiver Gase über den Gaspfad	14
9	Literatur	15
Workshop	beiträge	
A	Gase in einem HAW-Endlager im Salz – Die Perspektive der	
^	Langzeitsicherheitsanalyse (André Rübel)	17
В	Druckaufbau und Permeation von Gasen in gering permeablen Gesteinen (Otto Schulze)	25
С	In situ Gaspermabilitäten – ausgewählte Einflussprozesse (Thomas Wilsnack)	45
D	Die Bewertung der Gasproblematik in einem Endlager im Salz auf der Basis von In-situ-Tests (Till Popp)	67

	Gase im Endlager und fluidgefüllte Salzkavernen – zwei
	unterschiedliche Sachverhalte, ein gleichartiger Prozess der
	Barrierenschädigung? (Karl-Heinz Lux)93
F	Das Gasfracanalogon Merkers infolge des Gebirgsschlages 1989 -
	Wiederherstellung der Barriereintegrität (Wolfgang Minkley) 125
G	Vorgehensweise zur Beherrschung von Gasen in einem Endlager
	im Salzgestein (Nina Müller-Hoeppe)149
н	Vorkommen natürlicher Gase in Salz (Michael Schramm) 157
I	Wechselwirkung Gasbildung – geochemisches Milieu im Endlager
	(Volker Metz)167
J	Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition durch den
	Eintrag von C-14 in Böden und Oberflächengewässer
	(Gerhard Pröhl)177

1 Vorwort

Gase werden in einem Endlager durch verschiedene Prozesse gebildet. Dabei sind die Voraussetzungen zum Ablauf der Prozesse sowohl bei der normalen, ungestörten Entwicklung des Endlagersystems als auch bei nicht auszuschließenden, gestörten Systementwicklungen gegeben. Einen Einfluss haben die verschiedenen Systementwicklungen aber auf das Ausmaß und die Rate der Gasbildung und damit in Verbindung mit dem verfolgten Endlagerkonzept auch auf die potentiellen Auswirkungen der Prozesse. Für die Berücksichtigung des Einflusses der Gase auf die Langzeitsicherheit eines Endlagers im Rahmen eines Sicherheitsnachweises ist der Wissenstand fortlaufend den nationalen und internationalen wissenschaftlichen Ergebnissen anzupassen.

Letztmalig wurde auf nationaler Ebene der Kenntnisstand zum Thema "Gasbildung, Gastransport und potentielle Auswirkungen der Gase in einem Endlager im Salz" auf einem Workshop der GRS im Mai 1996 in Braunschweig zusammengetragen, zwischen den Fachinstitutionen diskutiert und dokumentiert /GRS 97/. In den gut zehn Jahren, die seit diesem Workshop vergangen sind, haben zahlreiche nationale und internationale Forschungsvorhaben zu diesem Thema beigetragen, den Kenntnisstand weiter zu entwickeln.

Die Frage der Auswirkungen von Gasen in einem Endlager in Wirtsgesteinen wie Salzoder Tongestein, wurde sowohl im internationalen Kontext, z.B. dem europäischen Netzwerk GASNET /EUR 03/, als auch in nationalen Gremien, wie z.B. der RSK ausgiebig diskutiert /RSK 05/. Dabei wurden offene Fragen zu den Auswirkungen der Gasbildung auf die Langzeitsicherheit festgestellt, die noch der Klärung bedürfen. Auch in den nationalen Endlagerstudien anderer Länder - insbesondere jener Länder, die Tongestein als Wirtsgestein in Betracht ziehen - ist die Problematik der Gasausbreitung verstärkt in den Blickpunkt gerückt.

Zur Dokumentation des aktuellen Kenntnisstandes von Wissenschaft und Technik in Deutschland und zur Ermittlung eines eventuell bestehenden Bedarfs an weiteren Forschungs- und Entwicklungsarbeiten insbesondere im Hinblick auf die Endlagerung von wärmeentwickelnden hochradioaktiven Abfällen im Salz wurde am 17. und 18. April in Berlin ein Workshop mit dem Titel "Gase im Endlager" in Zusammenarbeit der GRS und des Projektträgers Forschungszentrum Karlsruhe, Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE), durchgeführt. Zu diesem Anlass wurde eine Expertenrunde von 22 Personen aus 12 Organisationen eingeladen, um den Forschungsstand zu präsentie-

ren und zu diskutieren. Die Namen der Teilnehmer des Workshops und der durch sie vertretenen Organisationen sind in Tabelle 1.1 und die Themen der zehn Übersichtsvorträge in Tabelle 1.2 aufgelistet.

Der vorliegende Bericht fasst in den nachfolgenden Kapiteln kurz die Ergebnisse des Workshops zusammen. Im Anhang werden die jeweiligen Beiträge der zehn Vortragenden ausgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt der angehängten Fachbeiträge liegt allein bei den einzelnen Autoren und der von ihnen vertretenen Organisationen.

Tab. 1.1 Liste der Teilnehmer und Teilnehmerinnen beim Workshop "Gase im Endlager" in Berlin

Name	Organisation
Alkan, Hakan	ISTec
Böttge, Vera	LAGB
Düsterloh, Uwe	TU-Clausthal
Fischer-Appelt, Klaus	GRS
Heemann, Ulrich	BGR
Lux, Karl-Heinz	TU-Clausthal
Metz, Volker	FZK INE
Minkley, Wolfgang	IfG, Leipzig
Möller, Kai	BfS
Mönig, Jörg	GRS
Müller, Wolfgang	ISTec
Müller-Hoeppe, Nina	DBETec
Navarro, Martin	GRS
Pitterich, Horst	PTKA-WTE
Popp, Till	IfG, Leipzig
Pröhl, Gerhard	GSF
Rothfuchs, Tilmann	GRS
Rübel, André	GRS
Schramm, Michael	BGR
Schulze, Otto	BGR
Steininger, Walter	PTKA-WTE
Wilsnack, Thomas	IBeWa

Tab. 1.2 Themen der gehaltenen Vorträge

Autor	Vortragstitel	
André Rübel	Gase in einem HAW-Endlager im Salz - Die Perspektive der Langzeitsicherheits- analyse	
Otto Schulze	Druckaufbau und Permeation von Gasen in gering permeablen Gesteinen	
Thomas Wilsnack	In situ Gaspermeabilitäten – ausgewählte Einflussprozesse	
Till Popp	Bewertung der Gasproblematik in einem Endlager im Salz auf Basis von in situ- Tests	
Karl-Heinz Lux	Physikalische Modellierung und rechnerische Simulation einer Fluidinfiltration in das primär impermeable Salzgebirge	
Wolfgang Minkley	Das Gasfracanalogon Merkers infolge des Gebirgsschlages 1989 – Wiederher- stellung der Barriereintegrität	
Nina Müller-Hoeppe	Vorgehensweise zur Beherrschung von Gasen in einem Endlager im Salzgestein	
Michael Schramm	Vorkommen natürlicher Gase im Salz ()	
Volker Metz	Wechselwirkung Gasbildung – geochemisches Milieu im Endlager	
Gerhard Pröhl	Abschätzung der potenziellen Strahlen- exposition durch den Eintrag von C-14 in Böden und Oberflächengewässer	

2 Einleitung

In dem durchgeführten Workshop wurden die Prozesse zur Gasbildung und deren Auswirkungen im Endlager diskutiert. Die Ergebnisse der Diskussion werden in den folgenden sechs Kapiteln kurz zusammen gefasst. Dazu wird auf die durchgeführten Vorträge zurückgegriffen, die im Anhang dokumentiert sind.

Die Aspekte der Gasbildung selbst werden in den Beiträgen von V. Metz, A. Rübel und O. Schulze behandelt. Die in einem Endlager für radioaktive Abfälle gebildeten Gase können in mehrerer Hinsicht Auswirkungen auf die Langzeitsicherheit eines Endlagers haben: zum einen können gasförmige Radionuklide je nach gebildeter Gasmenge und betrachtetem Entwicklungszenario aus dem Endlager bis in die Biosphäre gelangen. Dies kann zu einer direkten radiologischen Auswirkung führen. Dieser Ausbreitungsweg wird auch "Gaspfad" genannt. Diese direkte Auswirkung wird in den Beiträgen von G. Pröhl und von A. Rübel betrachtet und im Kapitel 8 zusammengefasst.

Zum anderen können die gebildeten Gase einzelne Sicherheitsfunktionen des Endlagers beeinflussen und damit indirekt radiologische Auswirkungen hervorrufen. Die in den Beiträgen des Workshops behandelten Eigenschaften von Endlagerteilsystemen oder Prozesse, die im Endlager ablaufen und durch die Gasbildung beeinflusst werden, sind

- die Barrierenintegrität der Wirtsformation Salzgestein (K.-H. Lux, W. Minkley, T. Popp, A. Rübel, O. Schulze, T. Wilsnack),
- die Integrität technischer Verschlussbauwerke (N. Müller-Hoeppe, A. Rübel),
- der Transport von Gasen und Lösungen im Grubengebäude (A. Rübel) und
- das chemisches Milieu im Nahfeld (V. Metz).

Die Ergebnisse des Workshops, die diese vier Punkte betreffen, werden in den Kapiteln 4-7 zusammengefasst. Betrachtet werden:

- Kapitel 3: Gasbildung
- Kapitel 4: Beeinträchtigung der Integrität der Wirtsformation
- Kapitel 5 Beeinträchtigung der Integrität von Verschlussbauwerken
- Kapitel 6 Transport von Gasen und Lösungen im Grubengebäude
- Kapitel 7 Auswirkungen auf das chemisches Milieu im Nahfeld

3 Gasbildung

In einem Endlager für radioaktive Abfälle können bei Anwesenheit von Wasser¹ durch unterschiedliche Prozesse Gase entstehen. Bei der Auslegung und beim Bau eines Endlagers in einer Salzformation wird das Ziel verfolgt, einen Zutritt von nennenswerten Wassermengen von außen in das Endlagerbergwerk sicher auszuschließen. Allerdings steht selbst bei einer ungestörten Entwicklung des Endlagersystems immer eine gewisse Menge Wasser im Endlagerbergwerk zur Verfügung, so dass die Prozesse zumindest teilweise ablaufen können, so dass nicht die gesamte zur Verfügung stehende Stoffmenge umgesetzt wird. Die unterschiedlichen Quellen für Wasser im Endlager werden später aufgeführt. Die Gas bildenden Prozesse sind

- die Radiolyse,
- die Korrosion von Metallen und
- die mikrobielle Degradation von organischen Stoffen.

Bei der Radiolyse werden die Wassermoleküle unter dem Einfluss der ionisierenden Strahlung aus dem Abfall zersetzt, wobei zuerst freie Radikale und dann Wasserstoff entstehen. Der Proportionalitätsfaktor zwischen der Strahlendosis und der dadurch produzierten Gasmenge wird G-Faktor genannt. G-Faktoren und auch die gebildeten Gasmengen wurden für eine Vielzahl von Wirtsgesteinen und Lösungsarten bestimmt. Die durch Radiolyse gebildeten Gasmengen sind im Allgemeinen vernachlässigbar gegenüber denen aus anderen Quellen (O. Schulze).

Hinsichtlich der Korrosion von Metallen ist in erster Linie das mit den Endlagerbehältern in das Endlager in großen Mengen eingebrachte metallische Eisen zu betrachten. Diese Mengen reichen von 75 kg pro eingelagerter HAW-Kokille über etwa drei Tonnen bei Brennstoff-Kokillen bis hin zu fast 60 Tonnen bei Pollux-Behältern. Bei der anaeroben Korrosion wird das Eisen unter Wasserverbrauch zuerst in Eisen(II)oxid und anschließend in Magnetit umgewandelt. Der Maximalwert für die spezifische gebildete Gasmenge ergibt sich bei vollständiger Umwandlung des Eisens zu Magnetit und beträgt 0,535 Nm³_{H₂}/kg_{Fe}. Aus Korrosionsversuchen an Behältermaterialien sind für unterschiedliche Salzlösungszusammensetzungen und Stahllegierungen Abtragungsraten

bestimmt worden, die zwischen 0,1 und 10 μ m/a variieren (O. Schulze). Aus der Abtragungsrate lassen sich zwar unter Berücksichtigung der Behälteroberfläche prinzipiell Gasbildungsraten ableiten. Nicht geklärt ist jedoch die Kinetik des Gesamtprozesses der Umwandlung von Eisen zu Magnetit, der über mehrere Reaktionsstufen läuft, bei denen Wasserstoff gebildet wird. Ein sehr langsamer Umwandlungsprozess würde die Gasbildungsrate gegenüber dem theoretisch möglichen Maximalwert verringern. In konservativer Weise kann jedoch angenommen werden, dass die Gesamtmenge von Wasserstoff mit der gleichen Geschwindigkeit gebildet wird wie der erste Reaktionsschritt des Korrosionsangriffs erfolgt.

Die mikrobielle Degradation von organischen Stoffen erfolgt durch eine Vielzahl von unterschiedlichen Umwandlungsprozessen und hängt neben dem Angebot von Wasser auch von der Verfügbarkeit von Nährstoffen wie Nitrat und Sulfat ab. Bei der mikrobiellen Degradation von organischen Stoffen können neben Wasserstoff auch weitere Gase, wie z.B. CO₂, CH₄ und H₂S gebildet werden (V. Metz). Das gebildete CO₂ kann wiederum unter Umständen durch die Ausfällung als Carbonatfestphasen verbraucht werden. Bei einem Endlager für schwachaktive Abfälle wäre die mikrobielle Degradation in jedem Fall zu betrachten. Bei einem Endlager für hochaktive Abfälle ist dies konzeptabhängig: Bei einer Endlagerung in Pollux-Behältern werden unter Umständen organische Komponenten mit den Absorberstäben eingebracht. In den CSD-C-Kokillen sind hingegen nur verhältnismäßig geringe Mengen organischer Stoffe zu erwarten (A. Rübel). Die dadurch potenziell gebildeten Gasmengen sind gegenüber den Gasmengen durch die Metallkorrosion zu vernachlässigen.

Für die Gasbildungsprozesse ist die Anwesenheit von Wasser notwendige Voraussetzung. Das jeweils betrachtete Szenario der Endlagerentwicklung bestimmt dabei die zu berücksichtigenden Wassermengen. Das Wasser kann aus unterschiedlichen Quellen in das Endlager eingetragen werden, wobei manche Quellen nur bei gestörten Entwicklungen des Endlagersystems relevant sind:

 Natürliche Feuchte auf den Schichtgrenzen der Salzkristalle im Wirtsgestein ("Porenwasser"): Steinsalz weist einen natürlichen Wassergehalt von 0.1 bis 1‰ auf (A. Rübel).

¹ Mit dem Begriff "Wasser" werden nachfolgend alle in einer Fluidphase befindlichen H₂O-Mengen zusammengefasst.

- Mikroskopische Lösungseinschlüsse im Salzgestein: In den einzelnen Salzkristallen des Wirtsgesteins können sich kleinste Lösungseinschlüsse befinden.
- Mit dem Versatz eingebrachte Feuchte: Mit dem Versatz wird je nach Trocknungsgrad eine Wassermenge von 2 (trocken) bis 20 (luftfeucht) Kilogramm Wasser pro Kubikmeter Salzgrusversatz eingebracht.
- Zufluss aus makroskopischen Lösungseinschlüssen im Wirtsgestein: In Salzformationen sind üblicherweise Lösungseinschlüsse vorhanden, deren Volumina bis zu einigen hundert Kubikmetern betragen können. Falls diese Lösungseinschlüsse im Rahmen der Erkundungsarbeiten nicht erkannt werden können diese ihren Lösungsinhalt in das Endlager freisetzen.
- Zufluss aus dem Deckgebirge über den Schacht oder sonstige Wegsamkeiten.

Während durch die drei erstgenannten Wasserquellen auch bei der normalen, ungestörten Entwicklung Wasser in das Endlager eingebracht wird, führen die beiden letztgenannten Quellen nur bei einer gestörten Entwicklung zu nennenswerten Wassermengen im Endlager. Bei einem Endlager, das in einem weitgehend trockenen Wirtsgestein wie Salzgestein errichtet wird, ist zu erwarten, dass die Gasproduktion bei der ungestörten Entwicklung des Endlagersystems durch die Wassermenge begrenzt wird, d.h., dass die vorhandenen Metallmengen nicht vollständig umgesetzt werden.

Nach dem Einbringen von wärmeentwickelnden Abfällen entwickelt sich im Wirtsgestein ein instationäres Temperaturfeld. Wasser kann darin entgegen dem Temperaturgradienten auf die Wärmequellen zuwandern. In mehreren in-situ Experimenten im Untertagelabor Asse und in Modelluntersuchungen wurden Ende der 80'er, Anfang der 90'er Jahre die aus der Wirtsformation zutretenden Wassermengen abgeschätzt.

Die zur Untersuchung der aus dem Wirtsgestein zutretenden Wassermenge durchgeführten Experimente erstrecken sich über einen Zeitraum von wenigen Jahren. Eine Extrapolation der Daten aus den Experimenten auf den Betrachtungszeitraum im Rahmen einer Langzeitsicherheitsanalyse ergibt eine möglicherweise zufließende Wassermenge von 5 bis 14 kg pro Meter Strecken- oder Bohrlochlänge (A. Rübel). Diese Werte sind jedoch mit großer Ungewissheit behaftet, da dabei nicht die transienten Temperaturbedingungen berücksichtigt werden. Eine genauere Abschätzung der zutretenden Wassermengen und der Zutrittsraten für große Zeiträume sind für eine Bestimmung der Gasmengen und Gasproduktionsraten notwendig.

Neben der gesamt zutretenden Wassermenge ist auch die Kenntnis der zeitlichen Entwicklung der Wasserzutrittsraten aus dem Salz wichtig, da ein Vergleich der in den Experimenten bestimmten Zutrittsraten für Wasser mit den gemessenen Abtragungsraten der Endlagerbehälter zeigt, dass die Gasproduktion zu Beginn durch die Korrosionsgeschwindigkeit begrenzt wird. Nach einem Zeitraum von wenigen hundert Jahren wird dann die Gasproduktion durch das Wasserangebot begrenzt. Für diesen Zeitraum ist die Zutrittsrate aber bisher nicht bekannt.

4 Beeinträchtigung der Integrität der Wirtsformation

Unverritztes Salzgestein hat eine sehr geringe Permeabilität für Wasser wie auch für Gase. Bei der Endlagererstellung geschaffene offene Hohlräume bzw. das Porenvolumen im Versatz werden mit der Zeit auf Grund des Konvergenzprozesses verschlossen. Die im Folgenden geschilderte zeitliche Entwicklung des Gasdrucks ist bei der ungestörten Entwicklung in einer Einlagerungsstrecke oder einem Bohrloch zu erwarten: Durch die Gasproduktion und die Volumenverringerung des Hohlraums aufgrund der Konvergenz steigt der Gasdruck in der Strecke kontinuierlich an. Die Konvergenz wird durch den ansteigenden Gasdruck in Verbindung mit der Stützwirkung des Versatzes behindert, so dass sich die Konvergenzrate in der Strecke/Bohrloch sukzessive verringert. Das Verhältnis von Konvergenzrate zu Gasbildungsrate bestimmt den weiteren Verlauf der Druckentwicklung. Eine geringe Konvergenzrate erhält über lange Zeit ausreichend Hohlraum um die produzierten Gase aufzunehmen, ohne dass der Gasdruck über den lokalen Gebirgsdruck steigt. Geomechanische Auswirkungen sind dabei nicht zu erwarten. Bei einer hohen Konvergenzrate verschwinden die Hohlräume dagegen schnell. Die fortschreitende Gasproduktion wird unweigerlich den Gasdruck über den Gebirgsdruck hinaus erhöhen, falls nicht zusätzlicher Hohlraum neu geschaffen, oder Gas abtransportiert wird.

Bisher wurde immer von zwei möglichen Auswirkungen des Gasdrucks auf das Salzgestein ausgegangen, nämlich dass:

das Überschreiten des Gebirgsdrucks durch den Gasdruck zur Bildung eines Risses (Fracs) führen kann, welcher sich dann in Richtung der geringsten Gebirgshauptspannung fortpflanzt, bzw.

 der hohe Gasdruck zu einer Aufweitung des Salzgesteins und zur Bildung einer sogenannten Sekundärporosität führt.

Neue experimentelle Untersuchungen zeigen jedoch einen anderen Mechanismus, der nicht mit den beiden genannten Prozessen verbunden, sondern der jenem ähnlich ist, der in Tonformationen beobachtet wird (T. Popp). Demnach führt das Überschreiten des Gebirgsdrucks durch den Gasdruck zu einer Erhöhung der lokalen Permeabilität des Salzgesteins durch die Aufweitung der Flächen auf den Kristallgrenzen. Dieser Vorgang erfolgt im Gegensatz zur Bildung eines Frac ohne eine Zerstörung der Kristallstruktur. Die Permeabilität erhöht sich so lange, bis sich ein Gleichgewicht zwischen der Gasproduktion und der Gaspermeation einstellt. Sinkt der Gasdruck wieder unter den Gebirgsdruck so wird die ursprüngliche Gaspermeabilität des ungestörten Salzgesteins wieder hergestellt.

Bohrlochexperimente, bei denen der Gasdruck mehrfach über den Gebirgsdruck angehoben und wieder abgesenkt wurde, zeigen, dass zum einen ein Gastransport über eine Distanz von mehreren Metern zwischen den Bohrlöchern beobachtet werden kann und zum anderen, dass dabei die Oberflächen auf den Kristallgrenzen sozusagen "imprägniert" werden, d.h. dass ein Teil des Gases auf den Grenzflächen verbleibt. Diese Experimente konnten auch im Labormaßstab bestätigt werden. Aus den experimentellen Ergebnissen wird eine phänomenologische Beschreibung für den Gasfluss abgeleitet, wonach der Gasfluss proportional zur Gaspermeabilität des Salzgesteins und zum Quadrat des Gasdrucks ist (T. Popp). Dieser Zusammenhang entspricht jener des Darcy-Gesetzes für poröse Medien, wenn auch das Salzgestein kein poröses Medium darstellt und daher nicht von einem Darcy-Verhalten des Salzgesteins gesprochen werden darf.

Die Laborexperimente und die Auswertung des Gebirgsschlags Merkers (W. Minkley) zeigen weiterhin, dass ein Frac mit Zerstörung der Kristallstruktur nur bei einem sehr schnellen Druckanstieg oder bei einer sehr schnellen Verringerung der Gebirgshauptspannung erzeugt werden kann. Beides ist unter Endlagerbedingungen auszuschließen, so dass nicht mit der Ausbildung eines Fracs zu rechnen ist.

Modelltheoretische Untersuchungen zeigen, dass sich der durch die Gase imprägnierte Bereich in Richtung der größten Abnahme der Hauptspannung, also im Allgemeinen in Richtung geringerer Teufe erweitert (K.-H. Lux).

Es gibt allerdings zurzeit noch kein genaues Verständnis über die Funktionsweise des Gastransportprozesses und der Reichweite der Gasausbreitung im Salzgestein. Es ist jedoch zu erwarten, dass die Eindringtiefe der Gase in das Salzgebirge von der räumlichen Permeabilitätsverteilung (Homogenität) und dem Gasspeichervermögen (Porosität, mittlerer Gasdruck) abhängt.

Die Ausbreitung des Gases in das Salzgestein ist vor allem vor dem Hintergrund des Konzeptes des vollständigen Einschlusses der Radionuklide in der Wirtsformation zu betrachten. Dies beinhaltet die Frage, ob der Restporenraum im Wirtsgestein zusammen mit dem Gasspeichervermögen des Wirtsgesteins ausreichen, um alle gebildeten Gase zu speichern und wie ausgedehnt dann der mit Gasen imprägnierte Bereich ist, oder ob Gase aus dem Wirtsgestein in das Deckgebirge freigesetzt werden.

Die neuen Erkenntnisse über den Gastransport im Salzgestein sprechen gegen die Bildung einer Art Sekundärporosität im Salzgestein. Vielmehr ist stattdessen von einer Sekundärpermeabilität zu sprechen.

Zur Vermeidung hoher Gasdrücke in einem Endlager im Salz wurde in der Vergangenheit die Einbringung von nicht-kompaktierbaren Versatz als Gasspeicher in das Endlager diskutiert (A. Rübel). Sollten sich die neuen Ergebnisse zum Gastransport bestätigen, so besteht für die Errichtung von Gasspeicherräumen im Endlager im Hinblick auf die Vermeidung der Schädigung der Integrität der Wirtsformation durch hohe Gasdrücke keine Veranlassung mehr.

Weitere Forschungsarbeiten sind notwendig, um die bisherigen experimentellen Ergebnisse zu bestätigen und ein besseres Verständnis des Gastransportprozesses in Steinsalz zu erlangen. Weiterhin ist anhand von Abschätzungen zu prüfen, ob die im Endlager im Normalfall produzierten Gasmengen vollständig im Wirtsgestein gespeichert werden können, oder ob diese durch das Wirtsgestein hindurch transportiert und frei gesetzt werden. Im letzteren Fall muss weiterhin untersucht werden, welche Auswirkungen der Gastransport durch das Salzgestein auf die Radionuklidfreisetzung insbesondere gasförmiger Radionuklide hat.

5 Beeinträchtigung der Integrität von Verschlussbauwerken

Ebenso wie die natürliche Barriere des Wirtsgesteins können auch die geotechnischen Verschlussbauwerke durch das Auftreten hoher Gasdrücke in ihrer Funktion beeinträchtigt werden. Dies betrifft zum einen die Permeabilität der geotechnischen Verschlussbauwerke selbst, wie auch deren Ankopplung an das Wirtsgestein. Eventuell entstehende Störzonen um die Verschlussbauwerke herum könnten dabei zu Randläufigkeiten bei der Fluidbewegung führen.

Die Auswirkungen des Gasdrucks auf die Verschlussbauwerke müssen vor dem Hintergrund der im vorangegangenen Kapitel beschriebenen neuen Erkenntnisse über den Gastransport im Salzgestein selbst neu bewertet werden. Dabei ist zu untersuchen, ob - je nach dem Material der Verschlussbauwerke - die Gase durch die Verschlussbauwerke hindurch transportiert werden können, die Gase durch das Salzgestein abtransportiert werden, ohne dass ein Einfluss auf das Verschlussbauwerk ausgeübt wird, oder die Anbindung des Verschlussbauwerks an das Gebirge durch den Gastransport im Gebirge geschädigt wird. Letzteres ist vor allem für den Schachtverschluss zu prüfen, da nach der Modellierung des Fortschreitens des durch die Gase imprägnierten Bereichs für eine Kaverne (K.-H. Lux) zu erwarten ist, dass sich dieser Bereich längs eines Schachtverschlusses ausdehnt.

Es sollte geprüft werden, ob Auswirkungen auf die Verschlussbauwerke zu erwarten sind. Dazu sind geeignete Modellrechungen durchzuführen, mit denen die relative Bedeutung der beiden konkurrierenden Transportwege, Abtransport der Gase durch das Salzgestein und Gastransport durch bzw. um die Verschlussbauwerke herum, abgeschätzt werden kann. Dabei ist zu berücksichtigen, dass das Salzgestein zwar eine geringe Permeabilität, aber zum Endlager hin einen großen Transportquerschnitt aufweist, wodurch der hydraulische Widerstand eventuell geringer ist als jener der Abdichtung mit einer geringeren Permeabilität aber auch geringeren Querschnittsfläche.

Falls Auswirkungen auf die Verschlüsse zu erwarten sind, so ist weiterhin zu prüfen, ob die Verschlussbauwerke eventuell durch technische Maßnahmen auf die Anforderungen ausgelegt werden können, bzw. welche Folgen auf die Radionuklidfreisetzung durch die Auswirkungen auf die Verschlussbauwerke selbst oder deren Anbindung auf das Gebirge zu erwarten sind.

6 Transport von Gasen und Lösungen im Grubengebäude

Als Folge der unterschiedlichen Gasproduktion in den verschiedenen Einlagerungsbereichen stellen sich in einem Endlager im Salz Druckgradienten ein, die die treibende Kraft für Transportvorgänge im Grubengebäude darstellen.

Im Falle eines weitgehend trockenen Endlagers kommt es zu einer Einphasenströmung der Gase. Bei dem Vorhandensein von größeren Mengen von Lösung bei einer nicht auszuschließenden gestörten Entwicklung, kann je nach Lage der Kammern und Strecken entweder die Lösung durch das Gas verdrängt, oder die Lösung und das Gas gemeinsam transportiert werden. Ersterer Fall tritt auf, wenn die Gase in einem höher liegenden, abgeschlossenen Teil eines Grubenbaus eine freie Gasphase bilden, in der sich mit der Zeit zusätzliche Gasmengen ansammeln. Die sich dadurch vergrößernde Gasblase verdrängt die unter ihr liegende Lösung ähnlich dem Prinzip der kommunizierenden Röhren. In den meisten Fällen wird sich jedoch ein Gemisch aus Gas und Lösung im Endlager bilden, die gemeinsam transportiert werden. Die gleichzeitige Strönicht mischbarer Fluide in einem Porenraum wird Zweiphasenströmung bzw. Zweiphasenfluss bezeichnet.

Für die Berechnung der Zweiphasenströmung existieren mathematische Beschreibungen, die für poröse Medien auch erfolgreich angewendet wurden. In wie weit diese Beschreibungen allerdings für sehr gering poröse Medien, wie den kompaktierten Salzgrus in einem Endlager im Salz gelten, ist nicht geklärt. Insbesondere müssen für die Modellierung der Zweiphasenströmung Beziehungen für die Zusammenhänge zwischen der relativen Permeabilität und der Sättigung sowie des Kapillardrucks und der Sättigung bestimmt werden.

Grundlage dafür ist auch eine Kenntnis der Beziehung zwischen der Porosität und der Permeabilität kompaktierten Salzgruses und des Kompaktionsverhaltens. Für diese Beziehungen liegen experimentelle Werte für kompaktierten Salzgrus nur bis zu einer Porosität von minimal etwa 5% vor. Geringere Porositätsbereiche wurden in Experimenten bisher praktisch nicht untersucht. Für Modellrechnungen werden daher die Parameterwerte für die Salzgruspermeabilität aus der Extrapolation der gemessenen Daten bei höheren Porositäten abgeleitet. Die Gültigkeit dieser Extrapolation ist zu überprüfen. Es ist weiterhin zu klären, ob bei der Kompaktion des Salzgruses unter den bei der Endlagerung herrschenden Konvergenzraten und Gebirgsdrücken eine Restporosität verbleibt, die nicht unterschritten werden kann. Eine verbleibende Restporosität

würde über die großen Zeiträume, die bei einer Langzeitsicherheitsanalyse betrachtet werden müssen, zu einem signifikanten Unterschied bei der Berechnung des Gas- und Lösungstransports führen.

7 Auswirkungen auf das chemisches Milieu im Nahfeld

Die in einem Endlager gebildeten Gase können einen Einfluss auf das geochemische Milieu und somit auf Prozesse und Eigenschaften im Endlager haben, die vom geochemischen Milieu abhängig sind. Dies betrifft vor allem die Löslichkeit der Radionuklide und deren Sorptionsverhalten im Grubengebäude sowie die Korrosionsrate der Brennstoff- bzw. Glasmatrix und somit die Freisetzungsraten der Radionuklide aus der Abfallmatrix (V. Metz).

Die das geochemische Milieu beeinflussenden Gase, welche im Endlager gebildet werden können, sind vor allem der Wasserstoff aus der Korrosion des Eisens und das Kohlendioxid aus der eventuellen Degradation organischer Komponenten. Mit zunehmendem Wasserstoffpartialdruck wird das geochemische Milieu zunehmend reduzierend und beeinflusst somit die Zustände Redox-sensitiver Radionuklide, wie z.B. Uran, Plutonium, Neptunium, Selen und Technetium.

Neben dem Wasserstoffpartialdruck bestimmen eine Reihe weiterer Faktoren das geochemische Milieu in einem Endlager, wie z.B. der pH-Wert. Unter Umständen können in das Endlager zusätzliche Stoffe eingebracht werden, um das geochemische Milieu fest zu legen. Die Abhängigkeit der langzeitsicherheitsrelevanten Transport- und Rückhalteparameter der Radionuklide von dem geochemischen Milieu muss für jedes Radionuklid in den Bandbreiten des im Endlager vorkommenden Bereichs des geochemischen Milieus entweder experimentell bestimmt, oder konservativ abgeschätzt werden. Dies betrifft vor allem die Verteilungskoeffizienten für die Berücksichtigung der Sorption. Die Werte für die Transportparameter sind bisher nicht für alle Radionuklide bekannt oder sind unter Umständen auch in Abhängigkeit des Endlagerkonzepts und des Endlagerstandorts im Rahmen eines Sicherheitsnachweises zum Abbau von Konservativitäten erneut zu bestimmten.

In der Langzeitsicherheitsanalyse werden im Allgemeinen keine zeitlich variablen Parameter betrachtet, die einer eventuellen Entwicklung des geochemischen Milieus

Rechnung tragen, sondern es wird der konservativste Wert in der Bandbreite der zu erwartenden Werte verwendet, z.B. der niedrigste zu erwartende Verteilungskoeffizient. In wie weit hier in Zukunft realitätsnähere Betrachtungen möglich sind, ist zu prüfen.

8 Ausbreitung radioaktiver Gase über den Gaspfad

Neben den großen Mengen nicht-radioaktiver Gase werden im Endlager auch geringe Mengen radioaktiver Gase gebildet. Die radioaktiven Gase befinden sich entweder im Gasraum der Abfallmatrix und werden zu der sogenannten "instant release fraction" gezählt oder sie werden bei dem Kontakt mit Lösung erst gebildet. Ersteres gilt z.B. für lod. Letzteres gilt vor allen Dingen für CO₂ und CH₄, die C-14 enthalten. C-14-haltige Gase können sich in einem Endlager für hochaktive Abfälle beim Kontakt von Brennelementen mit Lösung bilden: Das C-14 entsteht im Brennelement aus N-14 durch Neutroneneinfang und liegt vor allem in Form von Carbiden vor. Beim Kontakt mit Lösung können diese in kurzkettige organische Verbindungen und daraufhin durch mikrobielle Prozesse in C-14-haltige Gase umgewandelt werden. Die Mengen der C-14-haltigen organischen Verbindungen und Gase, die in einem Endlager für abgebrannte Brennelemente entstehen können sind - insbesondere unter den Bedingungen eines Endlagers im Salz - bisher noch nicht vollständig erforscht.

Die geringe Menge radioaktiven Gases wird in der großen Menge nicht-radioaktiver Gase verteilt. Die nicht-radioaktiven Gase können somit als Transportmedium für die radioaktiven Gase dienen. Bei der ungestörten Entwicklung hängt es von der Eindringtiefe der Gase in das Salzgestein ab, ob Gase bis in die Geosphäre freigesetzt werden können (siehe Kapitel 4). Bei nicht auszuschließenden gestörten Entwicklungen mit Bildung von Wegsamkeiten, wie z.B. dem Versagen des Schachtverschlusses können die Gase direkt in das Deckgebirge gelangen. In diesen Fällen können auch die geringen Mengen radioaktiver Gase aus dem Endlager freigesetzt und durch die Geosphäre bis in die Biosphäre transportiert werden, wo sie dann zu einer potenziellen Strahlenexposition führen.

Der Transportweg in der Geosphäre ist bisher unzureichend untersucht: Das C-14-haltige Gas kann zum einen vollständig durch die Geosphäre bis in die Atmosphäre transportiert werden. Dort wird es in der Atmosphärenluft verdünnt, nimmt am Kohlen-

stoffkreislauf teil und kann über die Nahrungskette dann bis zum Menschen gelangen (G. Pröhl). Zum anderen kann sich ein Teil des Gases im Wasser des Aquifers lösen. Dieses Wasser kann dann zur Erzeugung von Nahrungsmitteln verwendet werden und führt zu einer potenziellen Strahlenexposition entsprechend dem Expositionspfad für andere gelöste Radionuklide (A. Rübel). Da der Grundwasserstrom im Allgemeinen groß ist, kann je nach freigesetzter Gasmenge unter Umständen das gesamte freigesetzte Gas im Aquifer gelöst und das Methan von Mikroben in Kohlendioxid umgewandelt werden.

Der beschriebene Ausbreitungspfad wurde z.B. bei der Betrachtung der Langzeitsicherheit für das Endlager Morsleben unterstellt. Auf Grund der Unsicherheiten über den tatsächlichen Transportpfad, wird der Expositionspfad zur Ausbreitung radioaktiver Gase in der Langzeitsicherheitsanalyse jedoch bisher insgesamt stark vereinfacht und konservativ behandelt, was unter Umständen zu einer deutlichen Überbewertung des Gaspfades gegenüber den Expositionspfad gelöster Radionuklide führt.

Detailliertere Betrachtungen zu dem Gastransport im Deckgebirge eines Endlagers und zu der Frage welcher Anteil der aus dem Endlager frei gesetzten Gase eventuell wieder im Wasser des Aquifers gelöst werden, könnten daher bestehende Konservativitäten in der Berechnung abbauen.

9 Literatur

/GRS 97/ Erzeugung und Verbleib von Gasen in einem Endlager für radioaktive Abfälle. – GRS-Bericht GRS-129, Januar 1997.

/RSK 05/ Gase im Endlager. – Stellungnahme der Reaktorsicherheitskommission, Januar 2005.

/EUR 03/ GASNET: A thematic network on gas issues in safety assessment of deep repositories for radioactive waste; EUR 20620 EN; 2003.

A Gase in einem HAW-Endlager im Salz – Die Perspektive der Langzeitsicherheitsanalyse (André Rübel)

1 Einleitung

In einem Endlager für radioaktive Abfälle werden durch unterschiedliche Prozesse Gase gebildet. Die gebildeten Gase haben Auswirkungen auf mehrere sicherheitsrelevante Prozesse und Eigenschaften des Endlagers:

- die Integrität der Barriere des Salzgesteins,
- den Transport von Lösungen und
- die Freisetzung gasförmiger Radionuklide.

Die Gasbildung erfolgt zum einen durch die Radiolyse von Wasser und zum anderen durch die chemische Umsetzung bestimmter in das Endlager eingebrachter Stoffe d.h. organischer Verbindungen und Metallen. In einem Endlager für hochradioaktive Abfälle sind nur geringe Mengen organischer Verbindungen vorhanden, so dass die Gasbildung fast ausschließlich durch die anaerobe Korrosion der Abfallbehälter aus Eisen stattfindet. Die durch Radiolyse gebildeten Gasmengen sind gegenüber den Gasmengen aus der Korrosion im Allgemeinen zu vernachlässigen /RSK 05/ und /RUE 04/.

Bei der anaeroben Korrosion von Eisen wird Wasser verbraucht. Im Falle eines Endlagers im Salz ist bei der erwarteten Entwicklung ohne einen Wasserzutritt das Wasserangebot beschränkt. Abschätzungen zeigen, dass das Wasserangebot in diesem Fall normalerweise nicht zur vollständigen Korrosion der vorhandenen Metallmengen ausreicht /RUE 04/. Daher ist die gebildete Gasmenge direkt von dem zur Verfügung stehenden Wasserangebot abhängig. Bei einer gestörten Entwicklung des Endlagers und einem Zutritt von Lösungen aus dem Deckgebirge oder Lösungseinschlüssen im Salzstock ist zu unterscheiden, ob die Gasproduktion durch das Angebot an Wasser oder dem der korrodierenden Stoffe begrenzt wird.

Neben der anaeroben Korrosion kann Eisen auch durch aerobe Korrosion umgewandelt werden ohne dass dabei Gase produziert werden. Der Anteil des maximal durch aerobe Korrosion verbrauchten Eisens ist durch die vorhandene Sauerstoffmenge begrenzt und kann im Normalfall vernachlässigt werden /BEC 05/

Die Gasbildung im Endlager führt zu einem Druckanstieg, wobei der Gasdruck den Gebirgsdruck in der Endlagertiefe im Allgemeinen überschreiten wird. Die gebildeten Gase können entweder im Endlager zurückgehalten oder freigesetzt werden. Damit die Gase im Endlager zurückgehalten werden können, müssen entsprechende Hohlräume vorhanden sein. Hohlräume existieren im Endlager zum Beispiel in Form von Porenräumen in den eingebrachten Versatzmaterialen, oder können durch den Gasdruck entstehen. Zusätzlich können durch technische Maßnahmen Hohlräume im Endlager geschaffenen werden.

Wird das Gas nicht vor Ort gespeichert, so wird es auf Grund der Druckdifferenzen durch das Grubengebäude oder die Formation eventuell auch bis in die Geosphäre transportiert. In der Geosphäre können sich die Gase bis zur Biosphäre ausbreiten. Die großen Mengen produzierter Gase können dabei als Trägergas für radioaktive Gase fungieren, die damit ebenfalls bis in die Biosphäre gelangen und zu einer potenziellen Strahlenexposition der Bevölkerung führen können.

Im Folgenden sollen die beschriebenen Bereiche

- Gasproduktion,
- Gasspeicherung und Auswirkungen des Gasdrucks,
- Gastransport im Nahfeld, sowie
- Gastransport im Deckgebirge und potenzielle Strahlenexposition

kurz aus Sicht der Langzeitsicherheitsanalyse betrachtet und offene F+E Themen identifiziert werden.

2 Gasproduktion

Neben den vergleichsweise großen Mengen nicht-radioaktiver Gase wird in einem Endlager auch eine geringe Menge radioaktiver Gase produziert. Diese beiden Gruppen von Gasen sind in unterschiedlicher Weise für die Sicherheit eines Endlagers von Interesse: Die nicht-radioaktiven Gase auf Grund ihrer Auswirkungen auf die geotechnischen und geologischen Barrieren und die radioaktiven Gase auf Grund ihrer radio-

logischen Auswirkungen. Daher werden diese beiden Gruppen von Gasen im Folgenden unabhängig betrachtet.

Produktion nicht-radioaktiver Gase

Die Gasproduktion erfolgt in erster Linie durch die Korrosion der Abfallbehälter und anderer metallischer Abfallbestandteile. In geringen Mengen sind in einem Endlager für hochaktive Abfälle auch organische Verbindungen zu erwarten, die jedoch keine Rolle spielen².

Die Korrosionsmechanismen und die Umsetzungsraten bei der anaeroben Korrosion von Eisen durch Salzlösungen sind ausreichend bekannt. Bei der Korrosion von Eisen oder der Radiolyse beträgt die gebildete Gasmenge 1,25 m³_{STP} Wasserstoff pro Kilogramm umgesetztes Wasser. Bei der erwarteten Entwicklung eines Endlagers im Salz wird der Korrosionsfortschritt, wie auch die gebildeten Gasmengen normalerweise von der Rate und Menge des zutretenden Wassers begrenzt. Bei der gestörten Entwicklung ist je nach zutretender Wassermenge abzuschätzen, ob das Wasserangebot oder das Angebot an korrodierbaren Stoffen überwiegt.

Als Wasserquelle ist zum einen die Feuchtigkeit im Versatz zu nennen, die gut bekannt ist, als auch in der Wirtsformation vorhandene Wässer. Bei letzteren handelt es sich um Laugentaschen, die ein Volumen von einigen hundert Kubikmetern haben können, wie auch um geringe Mengen aus dem Anteil von 1-2‰ Wasser im festen Salzgestein. Diese Wasservorkommen im Wirtsgestein können im Temperaturfeld des Endlagers auf die Behälter zu migrieren.

Im Rahmen des Brine Migration Tests und des HAW-Projektes wurden die aus dem Salz in ein Bohrloch zutretende Wassermenge experimentell bestimmt /ROT 88/ und /ROT 91/. In zusätzlich durchgeführten Simulationen wurde ein Modellzeitraum von 500 Jahren betrachtet. Die Extrapolation der zutretenden Wassermengen für sicherheitsrelevante Zeiträume ist mit einer großen Unsicherheit verbunden. Aus diesem

19

Die organischen Verbindungen werden mit den CSD-C Kokillen eingebracht, die hochkompaktierte Abfälle aus der Wiederaufarbeitung, wie Strukturteile und Hülsen enthalten. Diese Kokillen können auch einen Anteil von max. 10 g organischer Bestandteile pro Kokille aufweisen. Bei einer Anzahl von 5000 Kokillen werden somit maximal 50 kg organische Verbindungen in das Endlager mit eingebracht.

Grund ist eine bessere Vorhersage der zeitlichen Entwicklung der Zutrittsrate, wie auch der Menge des Wasserzutritts zu den Behältern für große Zeiträume erforderlich. Ein entsprechender Forschungsbedarf wurde bereits auf dem Workshop 1996 in Braunschweig über die Erzeugung und den Verbleib von Gasen in einem Endlager für radioaktive Abfälle festgehalten: "Der Transportprozeß, nach dem die Feuchte in langen Zeiträumen (ca. 10⁵ Jahre) in Kontakt mit den Metallen kommt, muß noch weiter aufgeklärt werden und muß quantitativ beschrieben werden können." /MUE 97/. Diese Beschreibung steht bisher noch nicht zur Verfügung.

Produktion radioaktiver Gase

In geringem Maße werden im Endlager auch radioaktive Gase erzeugt oder freigesetzt. Diese tragen nur unerheblich zur gesamten Gasmenge bei, können aber bei einer Freisetzung in die Biosphäre zu einer potenziellen Strahlenexposition führen und müssen daher betrachtet werden. Die radioaktiven Gase befinden sich entweder im Gasraum der Abfallmatrix und werden zu der so genannten "instant release fraction" gezählt oder werden bei Kontakt mit Lösung erst gebildet.

Zusätzlich können sich beim Kontakt der Brennelemente (speziell von Zircalloy und aktivierten Metallteilen) mit Lösung C-14-haltige Gase bilden: Das C-14 entsteht im Brennelement zu einem großen Teil durch Neutroneneinfang aus N-14 und liegt nach neueren Forschungsergebnissen bei Kontakt mit Lösung zumindest teilweise in Form kurzkettiger organischer Verbindungen vor /JOH 04/. Diese organischen Verbindungen können durch mikrobielle Prozesse in C-14-haltige Gase umgewandelt werden. Untersuchungen unter Endlagerbedingungen für ein Endlager im Salzgestein liegen bisher nicht vor.

Aus den beschriebenen Sachverhalten ergeben sich folgende F+E Themen im Bereich Gasproduktion:

- Quantitative Beschreibung der in ein Endlager für hochradioaktive Abfälle zutretenden Wassermengen und Zutrittsraten.
- Untersuchung zur Menge an durch Korrosion gebildeten organischem Kohlenstoff in abgebrannten Brennelementen unter den Bedingungen in einem Endlager im Salz.

3 Gasspeicherung und Auswirkungen des Gasdrucks

Auf Grund der Konvergenz verschwinden in einem Endlager im Salzgestein die offenen Hohlräume um die Behälter und der Porenraum im kompaktierbaren Salzgrusversatz mit der Zeit. Die hohen Temperaturen, die im Endlager für hochaktive Abfälle auftreten, beschleunigen diesen Prozess zusätzlich. Abschätzungen zeigen dass die Hohlräume in einem Zeitraum von wenigen Jahren bis Jahrzehnten verschwinden /RUE 04/. Der Prozess der Gasbildung erfolgt demgegenüber in einem vergleichsweise großen Zeitraum von mehreren Jahrhunderten. Nachdem die Konvergenz zum erliegen kommt, ist praktisch kein Speichervolumen für die Gase mehr vorhanden, die nach diesem Zeitpunkt gebildet werden. Die fortschreitende Gasproduktion führt somit zu einem dementsprechend steigenden Gasdruck. In dem präsentierten Vortrag wurden drei mögliche Entwicklungen festgehalten:

- Die Gase werden dem Druckgradienten folgend in einer eventuell noch bestehenden Auflockerungszone oder Restdurchlässigkeit im Versatz und den Dammbauwerken entlang den Strecken abtransportiert.
- Der hohe Gasdruck führt nach dem Überschreiten eines kritischen Drucks zu einer Bildung von zusätzlichen Hohlräumen durch Porenweitung oder Rissbildung in der Wirtsformation (Sekundär-Porosität).
- Das Auftreten der hohen Gasdrücke wird durch baulich-technische Maßnahmen verhindert (Gasspeichervolumen).

In dem Vortrag davon ausgegangen, dass ein Abtransport der Gase nicht möglich ist und auch auf Grund der Aussage einer Stellungnahme der RSK (27.01.2005) /RSK 05/: "Bei Gasdrücken oberhalb des Gebirgsdrucks könnte die Barrierenintegrität des Wirtsgesteins beeinträchtigt werden. Ein Nachweis für ein mögliches Entweichen der Gase aus der Wirtsformation bei Erhalt der Barrierenintegrität liegt derzeit nicht vor und ist Bestandteil von Forschungsarbeiten." und weiterhin: "Bei einem Anstieg der Gasdrücke über den Gebirgsdruck ist die Funktionsfähigkeit der geotechnischen Barrieren eines Endlagers zu belegen." ein Forschungsbedarf in diesem Bereich festgestellt.

Der Vortrag von T. Popp zu diesem Thema (siehe diesen Bericht) legt aber nahe, dass ein Entweichen der Gase aus dem Endlagerbereich ohne eine Schädigung der Barrierenintegrität der Salzformation möglich ist. Wenn dieser Sachverhalt bestätigt wird, ist

aus langzeitsicherheitsanalytischer Sicht zu prüfen, welche Gasmengen auf diese Weise gespeichert werden können und wie weit die Gase auf diesem Wege in die Wirtsformation eindringen, vor allem in Hinblick auf das Konzept des vollständigen Einschlusses bzw. der neuen diskutierten Bewertungskriterien für die Radionuklidfreisetzung aus einem einschlusswirksamen Gebirgsbereich.

4 Gastransport im Nahfeld

Das Gas wird im Grubengebäude so weit überhaupt möglich auf Grund der Druckgradienten transportiert. Auf Prozessebene liegen Modellvorstellungen für die Transportmechanismen vor. Die Transportmechanismen sind Diffusion und die gasdruckinduzierte Advektion. Im Fall des trockenen Endlagers ist dies eine Einphasenströmung und im Störfall eine Zweiphasenströmung. Zur Beschreibung der Strömung kann durch ein Zweiphasenflussmodell sind jedoch die notwendigen Parameter zur Berechnung des Zweiphasenflusses für geringe Durchlässigkeiten unbekannt /MUE 97/.

Die Modellierung des Gastransports im Nahfeld ist wichtig zur Beurteilung der Auswirkung der Gasproduktion auf die Barrierenintegrität. Auf der integrierten Ebene für die Langzeitsicherheitsanalyse existieren bei der GRS bisher keine Module zur Modellierung des Gastransports im Grubengebäude. Insbesondere wird dieser im Programm LOPOS bisher nicht explizit berücksichtigt, sondern lediglich ein widerstandsloser Austausch von Gasen zwischen vorher bestimmten Segmenten betrachtet. Eine Berücksichtigung des Gastransports in den Programmen für die Langzeitsicherheitsanalyse ist zur besseren Abschätzung der Auswirkungen der Gase notwendig.

F+E Themen im Bereich Gastransport im Nahfeld:

- Klärung, ob die relevanten Transportprozesse im gegebenen Permeabilitätsbereich durch das Zweiphasenflussmodell zutreffend modelliert werden können.
- Integration der Modellierung des Gastransports in LOPOS.

5 Gastransport im Deckgebirge

Der Gastransport im Deckgebirge über einem Endlager im Salz spielt normalerweise keine Rolle im Hinblick auf die Barrierenintegrität³, sondern ist im Hinblick auf die potenzielle Strahlenexposition der Bevölkerung durch den Anteil gasförmiger Radionuklide von Bedeutung. Der Großteil der im Endlager gebildeten Gase wirkt hierbei als Trägergas für den Transport eines geringen Anteils gasförmiger Radionuklide, vor allem C-14. Mögliche Ausbreitungswege der Gase im Deckgebirge sind zum einen der Transport in der gasförmigen Phase bis in die Atmosphäre oder die Lösung eines Teils oder der gesamten Gase in das Grundwasser.

Der Gastransport durch das Deckgebirge bis in die Biosphäre wird bisher gar nicht modelliert, sondern durch stark vereinfachende Annahmen abgeschätzt. Vor der Entwicklung von Rechenprogrammen für die Modellierung des Transports im Deckgebirge müssen zuerst konzeptionelle Modelle entwickelt werden. Hierfür ist ein erheblicher Entwicklungsaufwand notwendig. Die für die Rechenmodelle benötigten Parameter zur Modellierung des Zweiphasenflusses sind im Permeabilitätsbereich des Deckgebirges entweder bekannt oder können zumindest abgeleitet werden.

Für die Biosphärenmodellierung des Gaspfads existieren bisher keine ausreichenden Modelle für die Ausbreitung. Weiterhin gibt es Unsicherheiten bezüglich des Wertes für den Dosiskonversionsfaktor. So besteht z.B. das gebildete C-14-haltige Gas in der Regel hauptsächlich aus Methan. Die bestehenden Dosiskonversionsfaktoren berücksichtigen den Pfad über den Stoffwechsel der Pflanzen und deren anschließenden Verzehr durch die Bevölkerung. Ein Einbau des C-14 in die Pflanzen über den Stoffwechsel setzt jedoch voraus, dass das C-14 in anorganischer Form vorliegt. Somit kann der bestehende Dosiskonversionsfaktor nicht für den gasförmigen Radionuklidstrom verwendet werden.

Aus den beschriebenen Sachverhalten ergeben sich folgende F+E Themen im Bereich Gastransport im Deckgebirge:

Entwicklung konzeptioneller Modelle für den Gastransport im Deckgebirge

³ Eine Ausnahme stellt hier unter Umständen die Integrität einer Tonabdeckung über dem Salzstock dar, die durch den Gastransport beeinträchtigt werden könnte.

- Entwicklung von Rechenprogrammen zur Modellierung des Gastransports im Deckgebirge
- Entwicklung von Modellen für den Biosphärenpfad

6 Literatur

- /BEC 05/ Becker, D.-A.: Mass balances and flows for the SF/salt/steel and the SF/clay/steel concepts. European Commission Community Research, NF-PRO Project Deliverable Nr. 5.1.2, 2005.
- /JOH 04/ Johnson, L.H.; Schwyn, B. (eds): Proceedings of a workshop on the release and transport of C-14 in repository environments. NAGRA Interner Bericht, Wettingen, 2004.
- /MUE 97/ Müller-Lyda, I. (ed.): Erzeugung und Verbleib von Gasen in einem Endlager für radioaktive Abfälle. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-129, Braunschweig 1997.
- /ROT 88/ Rothfuchs, T., Wieczorek, K., Feddersen, H.K., Staupendahl, G., Coyle, A.J., Kalia, H., Eckert, J.: Brine Migration Test. Final Report, GSF-Bericht, 6/88, 1988.
- /ROT 91/ Rothfuchs, T., Duijves, K.A.: The HAW-Project: Demonstration facility for the disposal of high-level waste in salt, Synthesis Report, Kommission der Europäischen Gemeinschaften, Kernforschung und -technologie, Bericht EUR 13263, Luxemburg, 1991.
- /RSK 05/ RSK: Gase im Endlager. RSG-Stellungnahme vom 27.01.2005 (379. Sitzung), Reaktor-Sicherheitskommission, Bonn.
- /RUE 04/ Rübel, A.; Noseck, U; Müller-Lyda, I.; Kröhn, K.-P.; Storck, R. (2004): Konzeptioneller Umgang mit Gasen im Endlager. GRS-205, Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Braunschweig

B Druckaufbau und Permeation von Gasen in gering permeablen Gesteinen (Otto Schulze)

1 Einführung zum Thema

Die Auswirkung einer in einem Endlager für radio-toxischen Abfall möglicherweise stattfindenden Gasentwicklung auf die Integrität gering durchlässiger Wirts- und Barrieregesteine ist von der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) im Zusammenhang mit den Arbeiten für den Arbeitskreis "Auswahlverfahren Endlagerstandorte (AkEnd)" des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) untersucht worden. Die Ergebnisse dieser Arbeit sind im Fachbericht vom November 2002 zusammengefasst (siehe Abb. B.1).

Der Schutz der Biosphäre vor radio-toxischem Abfall fordert dessen sichere Verwahrung. Dafür ist die Endlagerung im tiefen Untergrund vorgesehen.

Mit einem Multibarrieresystem, das aus einer technischen, einer geo-technischen und einer geologischen Barriere besteht, kann der vollständige und dauerhaft dichte Einschluss im tiefen Untergrund erzielt werden.

Dafür werden bei der technischen Barriere die wesentlichen Komponenten aus geeignet konditioniertem Abfall in einem über möglichst lange Zeit stabilen Gebinde bestehen und bei der geo-technischen aus dem Versatz des Rest-Hohlraums, der gegebenenfalls mit Zuschlagstoffen zur Optimierung des geo-chemischen Milieus versehen wird. Für die geologische Barriere muss ein Wirtsgestein gesucht werden, das geeignet ist, als Haupt-Komponente für den einschlusswirksamen Bereich zu dienen.

Obwohl die funktionstüchtige Realisierbarkeit eines solchen Multibarrieresystems letztlich nicht in Frage gestellt werden kann, werden bei der Diskussion der Langzeitsicherheit im komplexen System "Endlager" Zustände, Ereignisse und Prozesse (ZEP) unterstellt, welche in ihrem Zusammenwirken zu Szenarien mit einer möglichen Gefährdung der Integrität führen können. Unter einer langzeitlich sichergestellten Integrität wird hier verstanden, dass die Belastungen und Wirkungen aus den in einem End-

lager möglichen Prozessen zu keiner Zeit Wegsamkeiten schaffen, welche das Multibarrierensystem in Gänze undicht und für Schadstoffe durchlässig werden lassen.

Diese Szenarien gilt es zu bewerten, um bei einer möglichen Gefährdung des Multibarrieresystems erforderlichenfalls mit weitergehenden Maßnahmen die Langzeitsicherheit zu gewährleisten. Beiträge zu dieser Diskussion liefert u. a. die zusammenfassende Dokumentation zum BfS-Workshop "Konzeptionelle und sicherheitstechnische Fragen der Endlagerung radioaktiver Abfälle" vom November 2005 im Kapitel 2.7.

Aus bestimmten Szenarien wird beispielsweise abgeleitet, dass die eingelagerten Abfälle einschließlich der Abfällgebinde chemisch auf Dauer nicht stabil bleiben werden, wobei für mögliche Umwandlungsreaktionen allerdings von entscheidender Bedeutung ist, ob am Ort eingelagerten Abfälls auch das dafür erforderliche Wasser zur Verfügung steht. Bei solchen Reaktionen kann Gas freigesetzt werden.

2 Gasbildung - Druckaufbau - Permeation (Schadstoffausbreitung)

Um nun zu einer möglicherweise im Einlagerbereich stattfindenden Gasentwicklung Beurteilungskriterien zur Bewertung von deren Relevanz für die Auswirkung auf die Barriereintegrität zu erhalten, sind drei Fragenkomplexe zu betrachten.

Gasbildung: welche Quellen (Mechanismen bzw. Prozesse), die zu einer Gasbildung führen, sind prinzipiell vorhanden; unter welchen Voraussetzungen findet Gasbildung statt; welche Ereignisse würden die Voraussetzungen für die Gasbildung begünstigen

Druckaufbau: kann die Gasbildung im Einlagerbereich unter der Annahme des angestrebten Dichten Einschlusses zu einem das Barrieresystem gefährdenden Druckaufbau führen - beispielsweise durch Rissbildung .

Permeation: auf welche Weise könnten durch Gasdruckaufbau weitreichende Wegsamkeiten (also bis zur Biosphäre) für das Ausströmen von kontaminiertem Gas und kontaminierter Lösung aus dem Einlagerbereich entstehen



Abb. B.1 Fachbericht der BGR zum Thema "Auswirkung der Gasentwicklung auf die Integrität geringdurchlässiger Barrieregesteine

An dieser Stelle wird das Auspressen von Gas aus dem Einlagerbereich nicht erörtert - also nicht für den Fall, dass für eine Umwandlungsreaktion das Wasser auf vorhandenen Wegsamkeiten bereits hat zutreten können und dass das Gas samt Lösung auf diesen Wegsamkeiten den Einschlussbereich auch wieder verlässt. Zum Stofftransport auf vorhandenen Wegsamkeiten (Zwei-Phasen-Fluss) wurden, z.B. von den in Abb. B.1 genannten Institutionen und Arbeitsgruppen, entsprechende Arbeiten bereits zahlreich vorgelegt.

3 Quellen der Gasbildung - Gasbildungsraten & Gasmengen

In Spalte 1 von Abb. B.2 sind die als wesentlich erachteten Quellen für den Stoffumsatz und die zu Grunde liegenden Prozesse für die Gasbildung genannt. Spalte 2 ent-

hält die Ergebnisse zu den berechneten Gasbildungsraten und zu den bei vollständigem Stoffumsatz im dichten Einschluss kumulierenden Gasmengen.

Bei den Gasbildungsraten und bei den für Gasbildung verfügbaren Stoffmengen ist nach den verschiedenen Gebindeformen zu unterscheiden.

Quelle und Prozeß	Befunde (pro 1 m-BLL, Bohrlochlänge oder 1 m-SLL, Strecken-lagerlänge)	Literatur
Radiolyse im Abfallgebinde und Zerfall der a-Strahler	GABI-Modellrechnungen mit G-Werten Befund: vernachlässigbar gegenüber anderen Quellen	Morlock et al. (1995) Rodwell et al. (1999) p. 51
Radiolyse im Steinsalz: - dünnwandige HAW-Kokille - $\Delta D_{max}/\Delta t$: $5\cdot 10^2$ bis 10^3 Gy/h D_{max} : $5\cdot 10^8$ bis 10^9 Gy - ca. 1 000 kg Salz / 1 m-BLL	$\label{eq:produktion von Wasserstoff: Na-Kolloid + H2O? NaOH + 0,5 H2 G-Wert: x,x NI / (1kg-Stoff \cdot MGy); Normalvolumen (0°C, 1013 hPa) \\ H_2\text{-Rate:} &= 10 \text{ NI H}_2\text{-Gas / (a \cdot 1 m-BLL)}; G-Wert_{H2-NaCI}: 0,002 \\ H_2 \text{ kumuliert: } 0,65 \text{ Nm}^3 \text{ H}_2\text{-Gas / (1 m-BLL)} \text{ für } f_{\text{Na-Kolloid}} = 5 \\ \text{Mol}\%$	Müller et al. (1992) Rodwell et al. (1999) Kelm & Bohnert (1997)
Radiolyse in wässeriger Lösung: - dünnwandige HAW-Kokille - △D _{max} /△t: 5·10² bis 10³ Gy/h D _{max} : 5·10³ bis 10³ Gy in gering mineralisierter Lösung	$\begin{array}{lll} \mbox{Produktion von Wasserstoff:} & f_{\mbox{H}_2\mbox{-Nate:}} = 1 \mbox{ Gew. } \% \\ \mbox{H}_2\mbox{-Rate:} & = 20 \mbox{ NI H}_2\mbox{-Gas / (a \cdot 1 \mbox{ m-BLL})} \; ; \; \mbox{G-Wert}_{\mbox{H}_2\mbox{-H}_2\mbox{O}} \colon \\ \mbox{1} & \mbox{H}_2\mbox{-Gas / (1 \mbox{m-BLL})} \; ; \\ \mbox{200 Nm}^3 \mbox{ H}_2\mbox{-Gas / (1 \mbox{m-BLL})} \; \; \mbox{offenes System} \\ \mbox{Sättigung:} & \mbox{p}_{\mbox{sat}}(\mbox{H}_2) = 3,36 \mbox{ MPa} \; \; \mbox{T} = 35 \mbox{ °C} \; , \; \mbox{geschlossenes} \\ \mbox{System} \\ \mbox{kein Druckanstieg wg. spontaner Rückreaktion der} \\ \mbox{Radiolyseprodukte} \end{array}$	Voinis et al. (1992) Kelm & Bohnert (1997) Jenks et al. (1975) Rodwell et al. (1999) p. 47
Korrosion von Stählen: HAW-Kokille (Cr-Ni-Stahl)	Korrosionsrate - Oberflächenabtrag: $x=1~\mu m/a$ bei 1,5 m² / 1 m BLL H ₂ -Rate: 6 NI H ₂ -Gas / (a · 1 m-BLL) Dauer: 10 000 a H ₂ kumuliert: 50 Nm³ H ₂ -Gas / (1 m-BLL) Wanddicke: 0,01 m; M _{Kokille} : 100 kg Stahl / 1 m-BLL	$x = 1 \mu m / a$ (Obergrenze) $x = 0.1 \mu m / a$ (repräsentativ) Literaturwerte (u.a.): Smailos et al
Korrosion von Stählen: Pollux-Behälter (unlegierter Feinkornstahl)	Korrosionsrate - Oberflächenabtrag: $x = 10 \mu m / a$ bei 5,6 m² / 1 m-SLL H ₂ -Rate: 200 NI H ₂ -Gas / (a · 1 m-SLL) Dauer: 35 000 a H ₂ kumuliert: 6 000 Nm³ H ₂ -Gas / (1 m-SLL) Wanddicke: 0,35 m; M_{Pollux} : 12 000 kg Stahl / 1 m-SLL	Literaturwerte (u.a.): Smailos et al
Korrosion von Stählen: MAW-/LAW-Behälter (unlegierter Feinkornstahl)	Korrosionsrate - Oberflächenabtrag: $x = 10 \ \mu m \ / \ a$ bei 120 m² / 1 m-SLL H ₂ -Rate: 4 800 NI H ₂ -Gas / (a · 1 m-SLL) Dauer: 100 a H ₂ kumuliert: 480 Nm³ H ₂ -Gas / (1 m-SLL) Wanddicke: 0,001 m; M _{Behälter} : 900 kg Stahl / 1 m-SLL	sehr vom pH-Wert abhängig z.B.: Einlagerung im Ton, zementierte Abfälle
mikrobieller Stoffumsatz organischer Abfallbestandteile (Bio-Degradation im LAW)	Potential: 400 Nm³ Gas / (1 000 kg Abfall); 10 % "Zellulosen" im Abfall Gas-Rate: 2 Nm³ Gas / (1 000 kg Abfall · a) Gas-Rate: 2 400 Nl Gas / (a · 1 m-SLL) Dauer: 200 a Gas kumuliert: 480 Nm³ Gas / (1 m-SLL)	Müller et al.(1992) Brush et al. (1992)

Abb. B.2 Gasbildungsraten und Gasmengen nach (unterstelltem) vollständigem Stoffumsatz im dichten Einschluss

R

Spalte 3 von Abb. B.2 verweist auf die für die Berechnungen und Abschätzungen zu Grunde gelegte Literatur. Diese wird in dem eingangs genannten BGR-Fachbericht ausführlich diskutiert.

Zur Berücksichtigung der Einlagergeometrie wird bei der Bohrlochlagerung das Volumen auf 1 m_BLL (Bohrlochlagerlänge) und bei der Streckenlagerung auf 1 m-SLL (Streckenlagerlänge) normiert. Dieser Ansatz zur Herstellung von Vergleichbarkeit ist in Abb. B.3 skizziert.

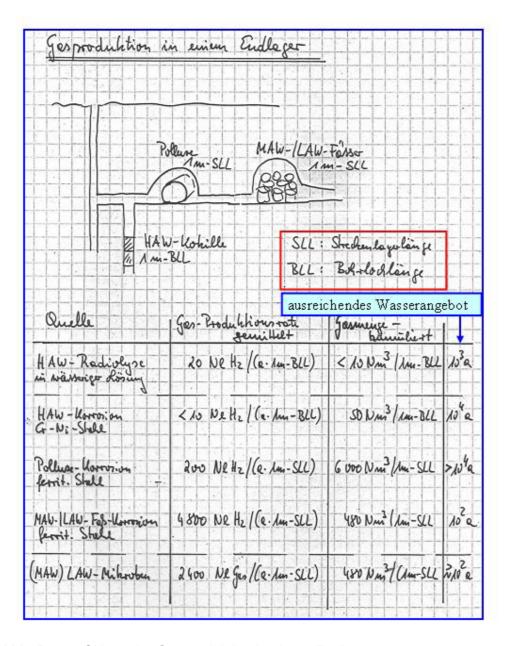


Abb. B.3 Skizze der Gasproduktion in einem Endlager

4 Gasproduktion in einem Endlager - Quellen im Vergleich

Die Zusammenstellungen in den Abb. B.3 und sollen zeigen, dass sowohl für die Endlagerung von HAW-Abfall als auch von MAW-/LAW-Abfall die Korrosion der Abfallgebinde den größten Beitrag zur Gasbildungsrate und zur kumulierenden Gasmenge liefern würde, sofern das für den Stoffumsatz erforderlich Wasser verfügbar ist.

Quallon der Gashildung im Vergleich (Übersicht)						
Quellen der Gasbildung im Vergleich (Übersicht)						
Mengen-Angaben	mittlere Gasbildungsrate	kumulierte Gasmenge bei vollst. Stoffumsatz				
HAW-Kokille, Typ Cogema BLL: Bohrlochlagerlänge	NI / (a · 1m-BLL) NI: Normalliter	Nm³ / (1m-BLL) Nm³: Normalkubikmeter				
Radiolyse von Steinsalz	10	2 ereich: 0.65 bis 2.0				
Radiolyse von Wasser	20	200 ereich: 10 bis 200 offenes System				
geschlossenes System: p _{sat} (H	₂) < 4 MPa (bei Radio	olyse: Kelm & Bohnert 1997)				
Korrosion HAW-Kokille	6	50				
Pollux-Behälter SLL: Streckenlagerlänge	NI / (a · 1m-SLL)	Nm ³ / (1m-SLL)				
	NI / (a · 1m-SLL)	Nm ³ / (1m-SLL)				
SLL: Streckenlagerlänge Behälter-Korrosion MAW-/LAW-Fass SLL: Streckenlagerlänge	200 NI / (a · 1m-SLL)	6000 Nm ³ / (1m-SLL)				
SLL: Streckenlagerlänge Behälter-Korrosion MAW-/LAW-Fass	200	6000				

Abb. B.4 Vergleich von Quellen für Gasbildung

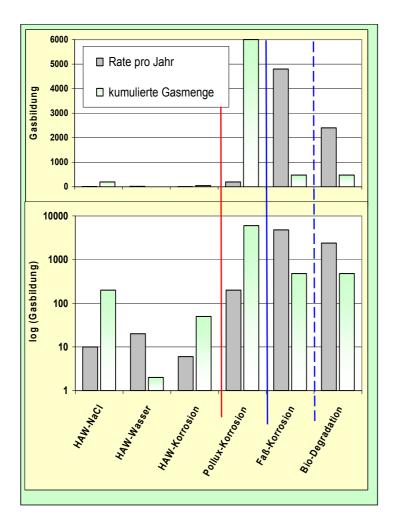


Abb. B.5 Vergleich von Quellen der Gasbildung

5 Druckaufbau im Dichten Einschluss

Auf Grundlage der im Falle des vollständigen Stoffumsatzes im Dichten Einschluss kumulierenden Gasmengen wird in Abb. B.6 abgeschätzt, welche Ausdehnung die Auflockerungszone (ALZ) um den Einlagerbereich haben müsste, um das Gas am Entstehungsort zu speichern ohne den Gasdruck bis auf den Gebirgsdruck ansteigen zu lassen (Porenraum in der ALZ sei 10%; Teufendruck im Einlagerbereich 20 MPa). Die für die Speicherung der Gasmengen, die für die verschiedenen Quellen berechnet werden, jeweils erforderliche Ausdehnung der ALZ wird in einer realen Untertagesituation in keinem Fall vorliegen.

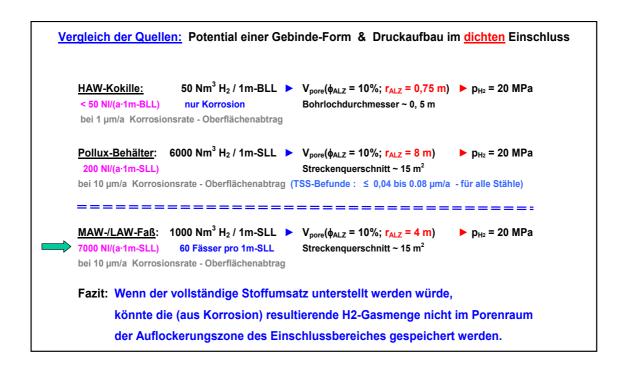


Abb. B.6 Potential einer Gebinde-Form und Druckaufbau im dichten Einschluss

6 Bereitstellung von Zusatz-Hohlräumen zur Gasspeicherung

In Abb. B.7 und Abb. B.8 sind Modellberechnungen zur Wirkung eines Zusatz-Hohlraums auf die Gasdruckentwicklung im Dichten Einschluss wiedergegeben. Wegen der Details wird auf die Original-Arbeit von DeVries et al., 1998 verwiesen, deren Aussagen im eingangs genannten BGR-Fachbericht näher beschrieben sind.

Wesentliches Ergebnis ist, dass durch den Aufbau eines Gasdrucks die Konvergenz behindert wird, wobei Konvergenz Hohlraumverlust für Gasspeicherung bedeutet. Je höher die Gasbildungsrate ist, desto früher stellt sich ein die Konvergenz behindernder Gasdruck ein.

Unter den spezifischen Randbedingungen (Stoffmenge, Hohlraum-Volumen etc.) wird in diesen Modellberechnungen im Falle sehr hoher Gasbildungsraten das für Gasbildung zur Verfügung stehende Stoffinventar verbraucht, bevor die Konvergenz zu einem Hohlraumverlust geführt hat, der den Gasdruck noch bis zum Gebirgsdruck ansteigen lässt.

R

Durch das Angebot von Zusatz-Hohlraum für die Gasspeicherung wird der die Konvergenz behindernde Gasdruckaufbau dagegen verzögert. Unter den spezifischen Randbedingungen dieser Modellberechnung würde die Bereitstellung eines Zusatz-Hohlraums in Summe keinen ausreichenden Beitrag zur Reduzierung der Gasdruckentwicklung liefern (siehe gepunktete Linie, die mit der "2:1 Baseline" nahezu übereinstimmt).

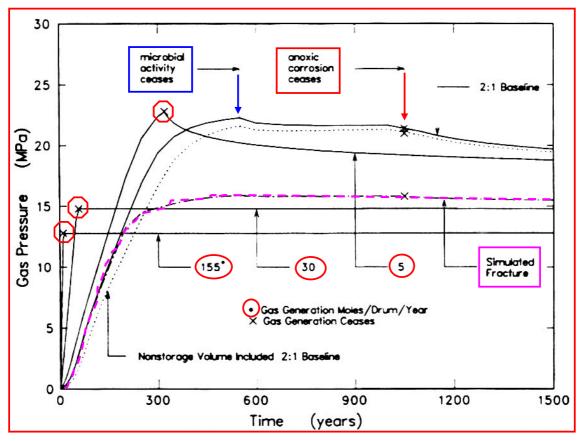


Abb. B.7 Modellberechnung zur Wirkung eines Zusatz-Hohlraum zur Gas-Speicherung

Gas-Druck im dichten Einschluss

Gasbildung: 155 - 30 - 5 [mol/(drum*a)] "WIPP-Site" (DeVries et al. 1998);

 $p_{litho} = 14.8 \text{ MPa}.$

"2:1 Baseline"

Gasbildungsrate ist (1+1) = 2 Mol/(Abfallbehälter • Jahr) = const.;

"1" - Ende der mikrobiellen Aktivität nach 550 Jahren,

"1" - Ende der Gasbildung aus Korrosion nach 1050 Jahren (x).

"Northern Parts"

Zusatz-Hohlraum: verzögerter Gasdruckaufbau erlaubt Konvergenz

→ Reduktion von Speicherraum bleibt die Folge.

"Simulated Fracture"

Gasdruck weitet Risse in der ALZ auf

→ Zusatz-Speicherraum.

Abb. B.8 Gas-Druck im dichten Einschluss

Dieser Befund sollte Anlass sein, entsprechende Konzepte, die unter anderem auf dem BfS-Workshop diskutiert worden sind, diesbezüglich kritischer zu betrachten, als es dem Autor dieses Beitrags bisher bekannt ist.

7 Gasdruckaufbau und hydraulisches Aufreißen

Wenn für den Dichten Einschluss folgende sehr konservative Annahmen getroffen werden,

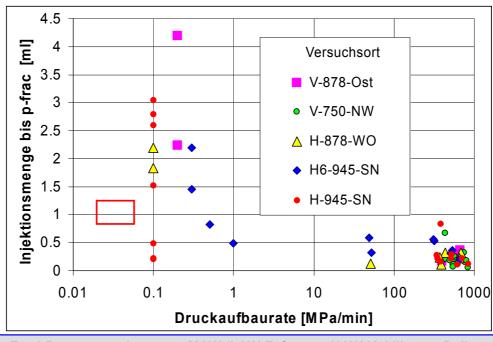
- Im Einlagerbereich steht genügend Wasser zur Verfügung, um den Stoffumsatz vollständig ablaufen zu lassen.
- Trotz des unterstellten Wasserzutritts in den Dichten Einschluss muss der Einschlussbereich das Gas bis zum vollständigen Stoffumsatz insgesamt aufnehmen.

dann bleibt nach Verfüllen und Verschluss der Gasdruckanstieg im Einschlussbereich bis zum Erreichen des Gebirgsdrucks unvermeidbar.

R

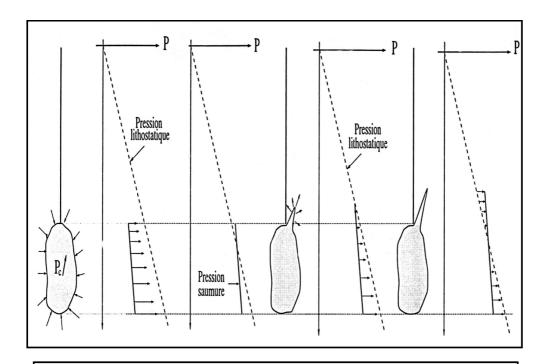
Die daraus resultierende Konsequenz wird insbesondere im Zusammenhang mit der Sicherheit von Gasspeicherkavernen gegen den Frac-Druck seit längerer Zeit diskutiert. In Abb. B.9 werden diesen Szenarien (Brouard, 1998) Ergebnisse zum Auftreten des Gas-Frac-Ereignisses aus Pumpversuchen mit Gas als Injektionsmedium entgegengestellt. Offenbar steigt die für das Erreichen des Frac-Ereignisses erforderliche Injektionsmenge umgekehrt proportional zur Druckaufbaurate progressiv an.

Mit Extrapolation auf die sehr geringen Gasbildungsraten beim Stoffumsatz in Abfallgebinden und den daraus resultierenden Gasdruckaufbauraten im Einschlussbereich muss geschlossen werden, dass sich der Druckaufbau als Folge eines "natürlichen Schwundes" von Gas aus dem Injektionsraum vor Erreichen des Frac-Ereignisses erschöpfen wird.



Etzel-Pumpversuch	MAW-/LAW-Faß	HAW-Kokille	Pollux
0.1 Δp/Δt ≈ 10 ⁻⁴ MPa/min	1·10-6	6·10 ⁻⁷	3·10 ⁻⁸
Etzel-Permeabilität = f ($\Delta p = p_i - p_{litho}$): $10^{-21} \text{ m}^2 \dots 10^{-17} \text{ m}^2$			

Abb. B.9 Gasdruckaufbau und hydraulisches Aufreißen



Konvergenz & Druckaufbau

Abb. B.10 Konvergenz und Druckaufbau

8 Druckaufbau und Ausströmen von Gas aus einem Hohlraum

In den in den Abb. B.11 bis Abb. B.14 wiedergegebenen einfachen Modellrechnungen wird wegen der in Abb. B.9 zusammengestellten Befunde zugelassen, dass im Einlagerbereich entstehendes Gas auch im Falle von Steinsalz (Dichter Einschluss) aus dem Einschlussbereich ausströmen kann. In Abhängigkeit von den Ansätzen für den Quellterm (d.h. Gasbildungsrate), für die Porosität im Einschlussbereich (d.h. Speichervolumen in der ALZ), für die Ausdehnung der ALZ und für die Durchlässigkeit des außerhalb der ALZ anstehenden Gesteins, wird der Verlauf des Druckanstiegs im Einschlussbereich berechnet. Die Ergebnisse spiegeln das gut bekannte Ergebnis wider, wonach die Variation des Quellterms und der Durchlässigkeit am empfindlichsten eingehen.

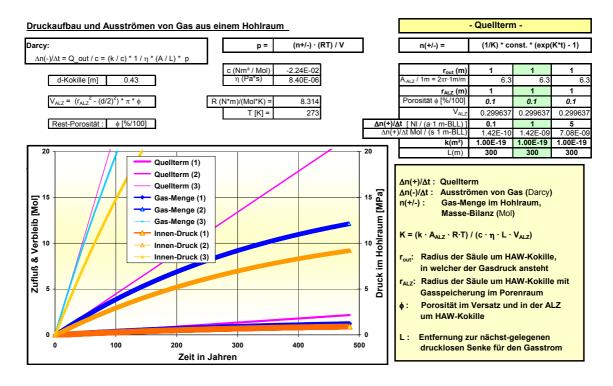


Abb. B.11 Druckaufbau und Ausströmen von Gas aus einem Hohlraum – Einfluss des Quellterms

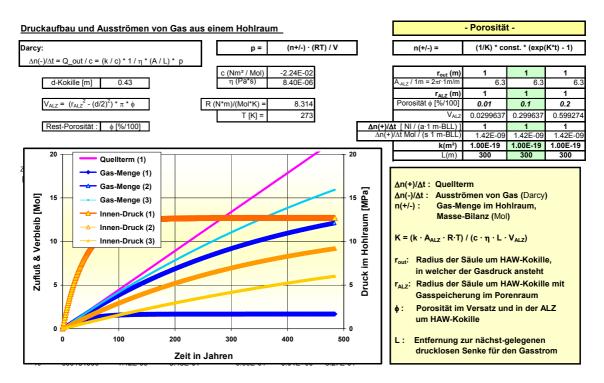


Abb. B.12 Druckaufbau und Ausströmen von Gas aus einem Hohlraum – Einfluss der Porosität

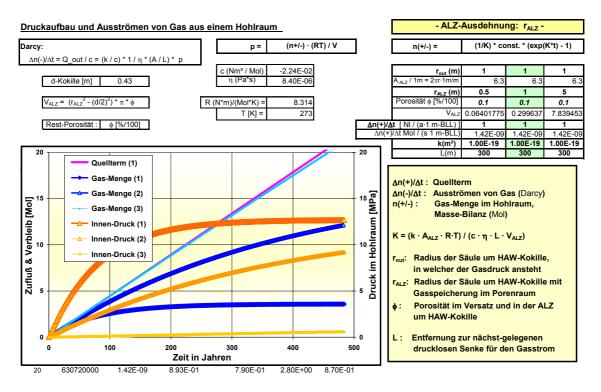


Abb. B.13 Druckaufbau und Ausströmen von Gas aus einem Hohlraum – Einfluss der ALZ-Ausdehnung

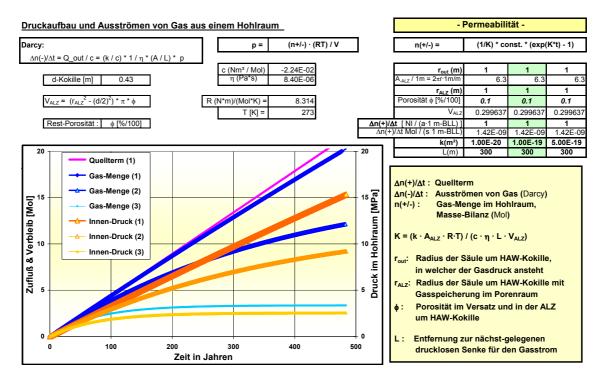
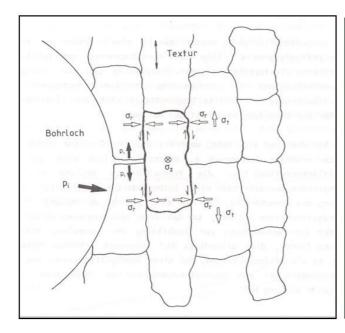


Abb. B.14 Druckaufbau und Ausströmen von Gas aus einem Hohlraum – Einfluss der Permeabilität

9 ALZ-Entwicklung bei Gasdruck-Aufbau

Gegenstand der Forschung und der Diskussion unter Anwendern ist die Frage, wie ein Gasdruck in der ALZ eines Hohlraums wirkt.

Aus den Erfahrungen des Kavernenbaus und des Betriebs von Gasspeicher-Kavernen folgt unbestritten, dass der Gasdruck die Normalspannung an der Hohlraumwand erhöht, dadurch die Deviator-Spannung (bzw. Differenz-Spannung, Effektiv-Spannung) an dieser Stelle reduziert wird und zur Stabilisierung des Hohlraums führt.



Druckaufbau im <u>dichten</u> Hohlraum erhöht Normalspannung auf Hohlraumwand: σ_{\circ} steigt an und τ_{\circ} sinkt ab -

Konvergenz klingt ab.

Normaldruck verdichtet ALZ, bei Gasdruck steigt Frac-Gefahr.

Aber:

Infiltration und Porendruck-Aufbau reduzieren σ_o . Die ALZ dehnt sich aus - und wird **Druckspeicher** ??

Abb. B.15 ALZ-Entwicklung bei Gasdruckaufbau

Je mehr der Gasdruck sich an die Gebirgsspannung annähert, desto mehr wird Infiltration in das anstehende Gebirge stattfinden. Im infiltrierten Bereich wird als Folge dessen ein Porendruck aufgebaut, der über die Reduktion der einzelnen Spannungskomponenten (allerdings ohne gleichzeitige Reduktion der Spannungsdifferenz) zu einem der Fortschreiten der ALZ in das Gebirge führen wird.

Mit diesem Prozess ist keineswegs eine Vergrößerung des für Gasspeicherung verfügbaren Hohlraums verbunden. Die Auflockerungsfront schreitet nur so voran, wie Material in den Einlagerhohlraum wandern kann.

Allerdings vergrößert sich mit Fortschreiten der ALZ die Oberfläche, über die das unter Druck stehende Gas in das Gebirge abströmen kann, welches grundsätzlich eine von Null verschiedene Durchströmbarkeit hat.

Zum Stand von Wissenschaft und Technik zu dieser Thematik sei an dieser Stelle auch auf den Beitrag von Herrn Prof. Dr. K.-H. Lux auf diesem Workshop verwiesen.

10 Frac - Abströmen von Gas - Selbstverschluss

Wird trotz der Argumentation in Abb. B.9 bis Abb. B.15 dennoch unterstellt, dass ein Frac-Ereignis eintritt, durch das Gas abströmen könnte, besteht die Frage, wie sich das Gestein danach verhält.

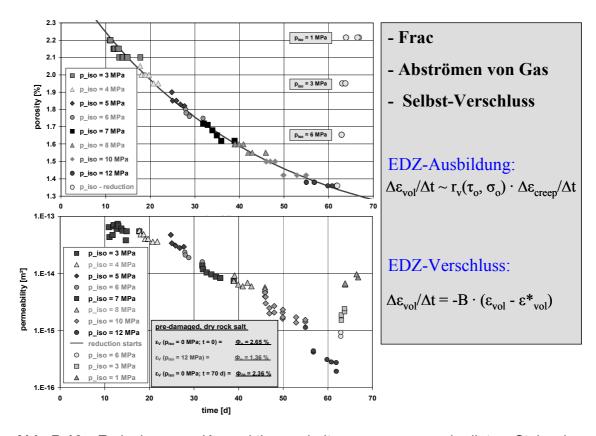
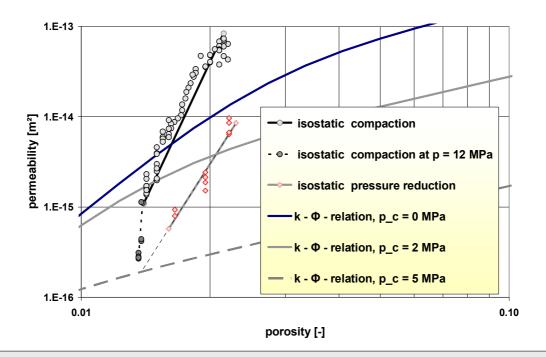


Abb. B.16 Ereignisse zum Kompaktionsverhalten von zuvor geschädigtem Steinsalz

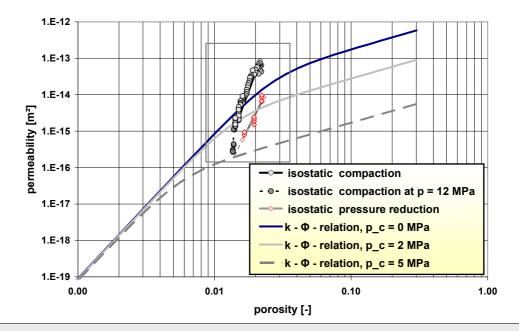
R

In den Abbildungen werden Ergebnisse zum Kompaktionsverhalten von zuvor geschädigtem Steinsalz gezeigt. Danach würde selbst in einem sehr trocken bleibenden Gesteinsbereich der Gebirgsdruck zur Kompaktion der Auflockerung in der ALZ und zur Reduktion der durch ein Frac-Ereignis geschaffenen Durchströmbarkeit führen. Das heißt: Selbst wenn die sehr konservativen Szenarien zur Gasbildung und Gasdruckentwicklung Gegenstand der Diskussion bleiben, würde im Einschlussbereich die Selbstversiegelung des Steinsalzes innerhalb kurzer Zeit wieder wirksam werden.



poro-elastische Kompaktion - Kompaktionskriechen - Umlösung & Rekristallisation (Lux & Eberth 2007)

Abb. B.17 Ereignisse zum Kompaktionsverhalten von zuvor geschädigtem Steinsalz



poro-elastische Kompaktion - Kompaktionskriechen - Umlösung & Rekristallisation (Lux & Eberth 2007)

Abb. B.18 Ereignisse zum Kompaktionsverhalten von zuvor geschädigtem Steinsalz

11 Literatur

- Brouard, B. (1998): Sur le comportement des cavités salines.- Thèse, L'École Polytechnique, 253 pp., Palaiseau, France
- Davies, P.B., L.H. Brush., M.A. Molecke, F.T. Mendenhall & S.W. Webb (1991):

 Waste-generated gas at the Waste Isolation Pilot Plant: Papers presented at the Nuclear Energy Agency workshop on gas generation and release from radioactive waste repositories Sandia Report, SAND91-2378
- Lorenz, S & W. Müller (2000): Zwei-Phasen-Strömungen in einem salinaren Endlager.

 Numerische Modellierung und Auslegungsrechnungen Bericht ISTec-A441; Institut für Sicherheitstechnologie, Köln
- Rodwell, W.R., A.W. Harris, S.T. Horsemann, P. Lalieux, W. Müller, L. Ortiz Amaya & K. Pruess (1999): Gas migration and two-phase flow through engineered and geological barriers for a deep repository for radioacive waste A joint EC/NEA status report. Nuclear science and technology series, EUR 19122 EN, pp. 429, European Commission Nuclear Energy Agency Luxembourg
- Smailos, E., W. Schwarzkopf & R. Köster (1988a): Corrosion behavior of selected highlevel waste packaging materials under gamma irradiation and in-situ disposal conditions in rock salt – KfK-report 4426, Kernforschungszentrum Karlsruhe

C In situ Gaspermabilitäten – ausgewählte Einflussprozesse (Thomas Wilsnack)

1 Abstract

Die in situ-Ermittlung der Permeabilität von Salinarformationen unterliegt vielfältigen Einflussprozessen. Ausgehend von einer groben Untergliederung in Einflüsse der Standortbedingungen und der Bestimmungsmethodik (Messung/Auswertung) werden ausgewählte Einflussprozesse vorgestellt, in ihren Auswirkungen erläutert und Schlussfolgerungen formuliert.

Ausgehend von dem Erfahrungsstand zu Gas- und Lösungspermeabilitäten im Salinargebirge werden Schlussfolgerungen für den weiteren Entwicklungsbedarf zur Messmethodik abgeleitet.

2 Messmethodik

In situ Permeabilitätsmessungen werden in Bohrlochtests mit einer Packerausrüstung (2fach-, 4fach- oder Vollabschlusspacker) in einem im Trockenbohrverfahren gestoßenen Bohrloch als Impulstest (IT) und als Test mit konstantem Druck durchgeführt. Abb. C.19 gibt eine schematische Übersicht der Versuchsanordnung für einen Test mit 4fach-Packer.

Die Testmethoden unterscheiden sich im zeitlichen Verlauf der Druckbeaufschlagung. Beim Impulstest wird ein definiertes Volumen im Testintervall (Prüfraum) durch hydraulische Packersegmente von der Umgebung abgeschlossen und dann mit einem zeitlich sehr kurzen Druckimpuls beaufschlagt. Für den Versuch mit konstantem Druck wird der Prüfraum permanent mit einem konstanten Druck beaufschlagt und der in das Gebirge abströmende Volumenstrom kontinuierlich gemessen.

Die Versuchsdaten werden mit Drucksensoren kontinuierlich über den gesamten Versuchsverlauf für das Testintervall (Prüfraum - PR) und, je nach Packerausrüstung, auch in zwei weiteren durch Packer abgeschlossenen Volumina (Kontrollräume - KR) in der Bohrung (s. Abb. C.20) erfasst.

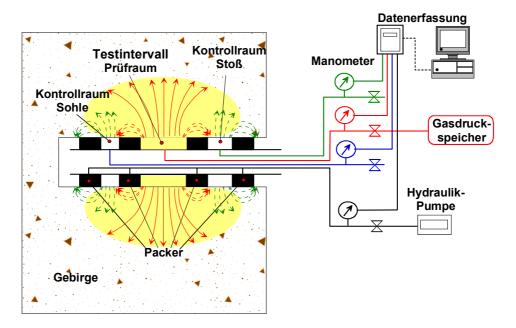


Abb. C.19 Schematische Darstellung der Versuchsanordnung und des Strömungsfeldes für einen Versuch mit 4fach-Packer

Die Anordnung der Prüf- und Kontrollintervalle führen zu einer zylinder- bis kugelförmigen Strömung im Gebirge, wie sie schematisch in Abb. C.19 und Abb. C.20 dargestellt ist. Ausnahmen von dieser räumlichen Ausbreitung des Strömungsfluides können durch die geologische Situation im getesteten Gebirgsbereich, z.B. durch wechselnde Schichten unterschiedlicher Permeabilität und/oder die Ausbildung einer sekundären Auflockerungszone um die Untersuchungsbohrung (Abb. C.20), verursacht werden. In Abhängigkeit von der Ausbildung des Strömungsfeldes um den Prüfraum kommt es zu Druckreaktionen in den Kontrollräumen (Interferenz, Abb. C.20). Abb. C.21 zeigt ein Beispiel für das Messergebnis eines Impulstests mit einem 4fach-Packer.



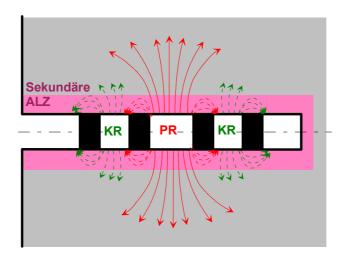


Abb. C.20 Schematische Darstellung des Strömungsfeldes für einen Test mit 4fach-Packer in einer Bohrung mit sekundärer Auflockerungszone (KR = Kontrollraum; PR = Prüfraum)

Die in situ-Durchlässigkeitsuntersuchungen können für unterschiedliche Gase und Flüssigkeiten durchgeführt werden.

Für die Ermittlung der Permeabilität wird für jeden Versuch ein zweidimensionalradialsymmetrisches Modell aufgebaut, welches die Kenntnisse zum geometrischen
Aufbau des Strömungsraumes sowie die Eigenschaften des Strömungsfluids berücksichtigt. Der Modellraum um die Bohrung wird standortabhängig mit einer r-zGeometrie diskretisiert (Abb. C.22). Mit dem Programmsystem "PaTe" wird durch die
Lösung der partiellen Differentialgleichung für die isotherme, radialsymmetrische Strömung für Gas bzw. für ein Fluid der Strömungsvorgang simuliert. Das Programm beinhaltet unterschiedliche numerische Suchalgorithmen zur Parameteridentifikation (u.a.
Gradientenverfahren, Gauß-Newton-Verfahren, Powell-Verfahren, LevenbergMarquardt-Verfahren) (Wagner & Voigt, 1999; Belohlavek & Behr, 1999; Behr et al.,
2002; Voigt et al., 2003).

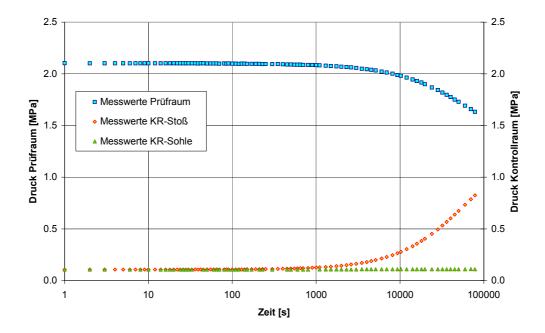


Abb. C.21 Beispiel für die erfassten Messparameter eines Impulstestes mit einem 4fach-Packer

Durch die automatische oder anwendergesteuerte Variation der Permeabilität erfolgt eine Anpassung der simulierten an die gemessene Druckreaktion. Abb. C.23 zeigt für das Testbeispiel in Abb. C.21 das Ergebnis der Anpassung.

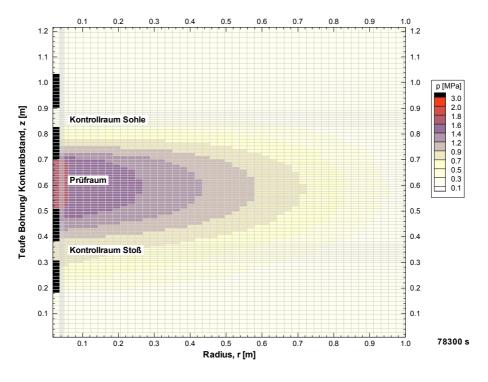


Abb. C.22 Testauswertung – Modelldiskretisierung und räumliche Druckverteilung

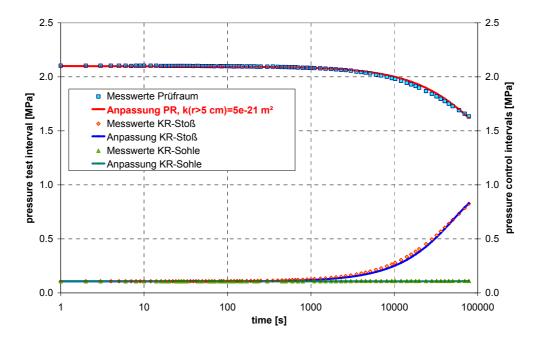


Abb. C.23 Beispiel für die erfassten Messparameter und die Versuchsauswertung eines Impulstestes mit einem 4fach-Packer

Das Messverfahren wurde/wird bisher im Zusammenhang mit vielfältigen in situ Untersuchungen zur Gas- und Lösungspermeabilität von Gesteinsformationen – u.a. Schachtanlage Asse, Grube Bad Salzdetfurth, Grube Philippsthal, Grube Teutschenthal, ERA-Morsleben, Grube "Glückauf" Sondershausen – angewendet. Das oben beschriebene Verfahren ist geeignet, in situ-Permeabilitäten im Bereich $10^{-24} < k < 10^{-12}$ m² zu ermitteln (Voigt et al., 2002). Für die Untersuchung von stoßnah, geringmächtigen Gebirgsbereichen (Auflockerungszone) und die Ermittlung integraler Permeabilitäten größerer Gebirgsbereiche stehen Packerausrüstungen für Durchmesser von 42 mm und 70 mm mit Prüfraumlängen von 0,04 m bis 1,0 m und Vollabschlusspacker zur Verfügung.

3 Ausgewählt Einflussprozesse

Auf der Grundlage vielfältiger Erfahrungen aus der Ermittlung von Gas- und Lösungspermeabilitäten in unterschiedlichen Salinarformationen können eine Vielzahl von Einflussprozessen auf die Höhe der ermittelten Permeabilität abgeleitet werden. In Abhängigkeit von den Ursachen für die Variation der ermittelten Permeabilität ist eine Unterteilung in standortabhängige Einflüsse und Einflüsse, die sich aus der Messmethodik ergeben, zweckmäßig.

3.1 Standortbedingungen

Die Permeabilität ist ein Gesteinsparameter, der maßgeblich durch die geologische Situation, den mineralogisch/lithologischen Aufbau sowie die Beeinflussung des natürlichen Spannungszustandes durch die bergmännische Auffahrung bestimmt wird. Eine große, sicher nicht vollständige Übersicht von Einflussprozessen wird in der nachfolgenden Aufzählung gegeben. Dabei ist zu berücksichtigen, dass sich viele Einflussgrößen und –prozesse wechselseitig überlagern. Zu den Einflussgrößen 'Geologie', 'Feuchtigkeit im Gebirge', 'zeitabhängige Auflockerung des konturnahen Gebirges' und der 'effektiven Porosität' wird nachfolgend eine kurze Erläuterung gegeben.

- Geologie (Lagerungsbedingungen, Schichtung …)
- Teufe des untersuchten Standortes
- Durchbauungsgrad
- Lage des Hohlraumes (vertikal, horizontal)
- Art und Weise der bergmännischen Auffahrung
- Standzeit nach der Auffahrung
- Lage der Untersuchungsbohrung zum Hohlraum (Firste, Stoß ...)
- Inhomogenitäten (Risse, Geologiewechsel ...)
- Ausbausituation
- Feuchtigkeit im Gebirge
- zeitabhängige Auflockerung des konturnahen Gebirges im Ergebnis der Änderung des Spannungszustandes
- Teufe der Untersuchungsbohrung
- effektive Porosität

3.1.1 Geologie

Die unterschiedliche mineralogische und lithologische Zusammensetzung der Salzgesteine und die aus der unterschiedlichen Genese resultierende Stratifizierung führen zu unterschiedlichen Gebirgspermeabilitäten. Generell kann für Carnallitit und Steinsalz

C

von einer abnehmenden Permeabilität mit zunehmendem Konturabstand ausgegangen werden. Abb. C.24 zeigt am Beispiel von Untersuchungen in Bohrungen im Carnallitit und Steinsalz die Verringerung der Permeabilität mit zunehmendem Konturabstand. Davon abweichende Ergebnisse sind in der Regel auf Besonderheiten in der Geologie oder das Vorhandensein von bergmännisch aufgefahrenen Hohlräumen und Wegsamkeiten zurückzuführen. Dies macht deutlich, dass für vergleichende Betrachtungen eine sehr differenzierte Gegenüberstellung erforderlich ist.

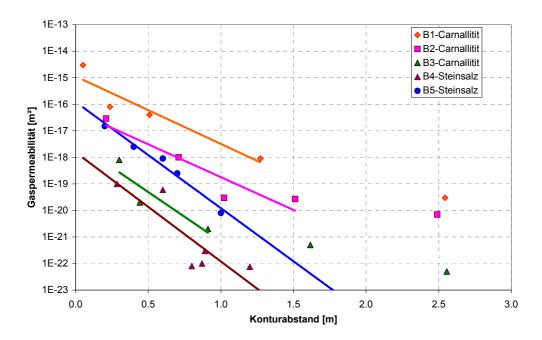


Abb. C.24 Permeabilität in Abhängigkeit vom Konturabstand für Bohrungen im Carnallitit und Steinsalz – Extrapolation auf den Konturstoß über Exponentialfunktionen

Die Streuung von Messdaten der Autoren für in situ Gaspermeabilitätsmessungen für Carnallitit und Steinsalz ist in Abb. C.25 in Abhängigkeit vom Konturabstand dargestellt. Die Grafik weist einen relativ großen Datenbestand und eine große Streubreite für die zwei Gesteine nach. Diese resultiert aus den vielfältigen zusätzlichen, oben genannten Einflussprozessen, wobei die Lage der Untersuchungsbohrung zum Hohlraum (Firste, Sohle, Stoß), die Auffahrungsmethode, der Durchbauungsgrad und die Standzeit nach der bergmännischen Auffahrung/Nachschnitt als bestimmend angesehen werden. Insbesondere die zum Teil deutlich erhöhten Permeabilitäten auch bei größeren Konturabständen sind auf außergewöhnliche Standortgegebenheiten zurückzuführen und sind nicht repräsentativ für das Permeabilitätsverhalten des Salinargebirges. Als wesentliche Schlussfolgerung ergibt sich daraus die Notwendigkeit der standortbe-

zogenen Ermittlung der in situ Permeabilität für die Beurteilung der zu erwartenden Strömungsprozesse im Gebirge.

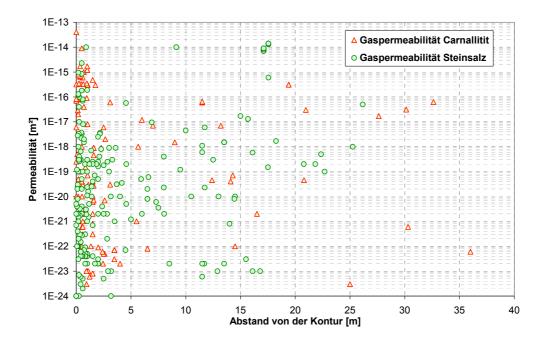


Abb. C.25 Gaspermeabilität Carnallitit und Steinsalz in Abhängigkeit vom Konturabstand

3.1.2 Feuchtigkeit im Gebirge

Bedingt durch im Hangenden zufließende Lösung (in Schächten) und/oder die Beschaffenheit der Wetter kommt es zum Eintrag von Feuchtigkeit in die konturnahe Auflockerungszone um einen Schacht oder eine Strecke. In Abhängigkeit von Oberflächenspannung der Lösung werden diese durch Kapillarkräfte in den Wegsamkeiten fixiert. Ein Strömungsprozess mit Gas ist unter diesen Bedingungen erst beim Überschreiten des kapillaren Sperrdruckes (verdrängen der benetzenden Flüssigkeitsphase) möglich. In Abb. C.26 ist am Beispiel von zwei Versuchen der Einfluss eines flüssigkeitsgefüllten Porenraumes dargestellt. In der Anfangsphase der Versuche wird der Kapillardruck durch den Prüfdruck überschritten und es kommt zu einer Gasströmung in Abhängigkeit von der sich sättigungsabhängig einstellenden effektiven Gaspermeabilität. Nach dem Absinken des Prüfdruckes auf den kapillaren Sperrdruck kommt es zu einer Blockierung der Fließwege durch die benetzende Flüssigkeitsphase. Die Gasströmung und ein daraus resultierender Druckabfall kommen zum Erliegen.

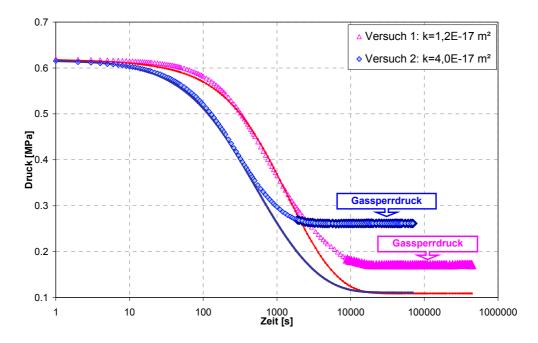


Abb. C.26 Gegenüberstellung von Mess- und Auswertungsergebnissen für Versuche mit Feuchtigkeit im Gebirge

3.1.3 Zeitabhängige Auflockerung des konturnahen Gebirges

Die Änderung der in situ-Permeabilität um einen bergmännisch aufgefahrenen Hohlraum erfolgt zeitabhängig. Unmittelbar nach der bergmännischen Auffahrung und/oder
dem Nachriss/Nachschnitt des Gebirgsstoßes kommt es stoßnah zu einer Permeabilitätserhöhung. Zeitabhängig dehnt sich diese Auflockerungszone in das Gebirge aus.
Die Größe, die räumliche Ausbreitung und der zeitliche Verlauf dieser Permeabilitätserhöhung werden u.a. bestimmt durch die Auffahrungsmethodik, die geologische und
bergtechnische Situation, den Gebirgsspannungszustand, die Lage des Hohlraumes
(Strecke, Schacht). Bisher liegen nur begrenzt Daten zur Beurteilung dieses Verhaltens, insbesondere für den Zeitmaßstab bergtechnischer Arbeiten (wenige Monate)
vor. Erfahrungen für die Grube "Glückauf" Sondershausen (Häfner et al., 2001), die
Schachtanlage Asse (Miehe et al., 1993) und den Standort WIPP⁴ (Stormont et al.,
1991) weisen Permeabilitätserhöhungen um mehrere Zehnerpotenzen über eine
Standzeit von Monaten nach.

Waste Isolation Pilot Plant; Forschungsbergwerk der US-Behörde für Energie, Forschung und Entwicklung in der Nähe Carlsbad, New Mexiko

Im Zusammenhang mit der Nachweisführung und der technologischen Planung des Baus von hydraulischen Querschnittsabdichtungen stellt die Beurteilung dieser zeitabhängigen Veränderung gegenwärtig eine wesentliche Fragestellung für die unterschiedlichen Salinargesteine (Steinsalz, Carnallitit, Anhydrit) dar.

3.1.4 Effektive Porosität

Die Ausbreitung eines Fluides im Porenraum nach einem Druckimpuls wird wesentlich bestimmt vom durchströmbaren, effektiven Porenraum (effektive Porosität) und dessen Permeabilität beeinflusst. Mit der Auffüllung und Durchströmung dieses Porenraumes pflanzt sich der Druckimpuls in das Gebirge hinein fort. Der im aktiven Prüfraum gemessene Druckverlauf und die in den Kontrollräumen registrierten Druckreaktionen werden durch die Porosität und Permeabilität des Strömungsraumes geprägt und können für die Identifikation dieser Parameter genutzt werden. Voraussetzungen dafür sind eine möglichst lange Messdauer, so dass ein möglichst vollständiger Abstrom von Fluid aus dem Prüfraum und die Druckreaktionen in den Kontrollräumen registriert werden können. Sind diese Voraussetzungen gegeben, können aus den gemessenen Druckreaktionen über Parameteridentifikation, neben Aussagen zur Permeabilität, auch Informationen über die effektive Porosität abgeleitet werden.

Auf Grund der sehr geringen Permeabilitäten im Salzgebirge und Salzbeton sind für vollständige Messungen Monate Messzeit erforderlich. Ein derartiger Aufwand ist wirtschaftlich nicht tragbar und auch nicht für die Einschätzung der Permeabilität dieser Größenordnung erforderlich. Bei wirtschaftlich vertretbaren Messzeiten (1 bis 2 Tage) werden nur sehr geringe Druckreaktionen beobachtet, so dass eine vertrauenswürdige Identifikation der effektiven Porosität nicht möglich ist. Hier sollten für die Identifikation der Permeabilität Porositätswerte aus Korrelationen von Stormont (Stormont, 1995), Heemann & Heusermann (Heemann & Heusermann, 2004) oder in überarbeiteter Form von Popp et al. (Popp et al., 2007) genutzt werden.

Zur Beurteilung des Einflusses dieser effektiven Porosität auf die identifizierte Permeabilität wurden für Steinsalz und einen Salzbeton Vergleichsrechnungen für einen Wertebereich von effektiven Porositäten durchgeführt. Die Ergebnisse sind in Abb. C.27 und Abb. C.28 dargestellt. Für das betrachtete, sehr geringe Permeabilitätsniveau ergibt sich für Steinsalz bei einer Erhöhung der Porosität um den Faktor 5 nahezu eine

Verdoppelung der Permeabilität. Für den Salzbeton führt die gleiche Porositätsveränderung zu einer Permeabilitätserhöhung um den Faktor ca. 2,4.

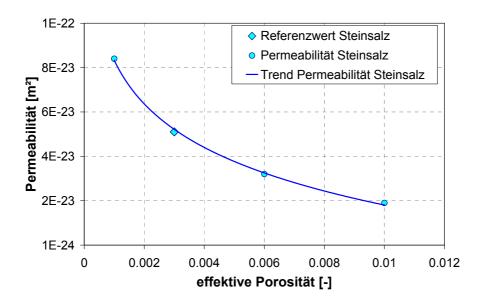


Abb. C.27 Permeabilität von Steinsalz in Abhängigkeit von der effektiven Porosität

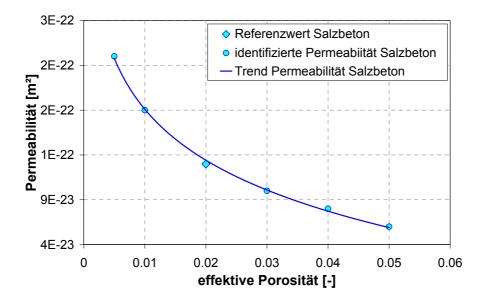


Abb. C.28 Permeabilität von Salzbeton in Abhängigkeit von der effektiven Porosität

3.2 Versuchsbedingungen und Auswertung

Neben den im Abschnitt 3.1 genannten Standorteinflüssen sind für die Auswertung der Versuche und die Beurteilung der Untersuchungsergebnisse ebenfalls die Randbedingungen und Einflüsse der Versuchskonfiguration und der Messmethodik zu berücksich-

tigen. Wie die nachfolgende Aufzählung zeigt, werden diese zum Teil mit durch die Standortgegebenheiten beeinflusst.

- Versuchsdauer
- Temperatur am Messort
- Bohrungsteufe → Volumina, Dichtheit, Kompressibilität
- Packerkonfiguration (1fach-, 2fach-, 4fach-Packer)
- Konturabstand
- Bohrlochbeschaffenheit
- Auswertungsansatz / Modellansatz
- Zweiphasenströmung (Feuchte im Gebirge; Restgasgehalt)

Die aus dem für die Versuchsauswertung angewendeten "Auswertungsansatz / Modellansatz" resultierenden Einflüsse werden nachfolgend kurz vorgestellt. Darüber hinaus werden Möglichkeiten zur Ermittlung möglichst konturnaher Permeabilitäten vorgestellt ("Konturabstand").

3.2.1 Auswertungsansatz/Modellansatz

Für die Auswertung der im Abschnitt 2 beschriebenen Bohrlochtests werden unterschiedliche Modellansätze angewendet. So werden Programmsysteme für die Auswertung von Pumpversuchen für die Beurteilung von grundwasserhydraulischen Problemstellungen genutzt, die der Auswertung einen eindimensionalen Strömungsraum radial zum Bohrungsverlauf zu Grunde legen. Abb. C.29 zeigt ein Beispiel für ein solches Modell. Dieses ermöglicht die Berücksichtigung der sich radial um den Prüfraum verändernden hydraulischen Eigenschaften. Eine Berücksichtigung von Änderungen der hydraulischen Eigenschaften entlang des Bohrlochverlaufes (insbesondere sekundäre Auflockerungszone) ist in einem solchen Modellansatz nicht möglich. Der von den Autoren genutzte zweidimensionale, radialsymmetrische Modellansatz wurde im Abschnitt 2 (Abb. C.22) vorgestellt.

Zur Beurteilung des Einflusses der unterschiedlichen Modellansätze (radial eindimensional und axial – r-z Geometrie - zur Bohrung zweidimensional) bzw. der Berücksich-

C

tigung der gemessenen "Informationen⁵" zur räumlichen Ausbreitung des Strömungsfeldes wurden Vergleichsrechnungen für einen in situ Permeabilitätsversuch mit sung durchgeführt und hinsichtlich ihrer Aussagen beurteilt. Die im Versuchsverlauf erfassten Druckreaktionen sind in Abb. C.30 dargestellt. Die deutliche Druckreaktion im Kontrollraum Sohle deutet auf eine Umströmung des zwischen Prüfraum und Kontrollraum Sohle liegenden Packers und auf eine erhöhte Permeabilität in diesem Bereich hin.

Bei Auflockerung eines Gebirgsbereiches um die Bohrung oder vorhandenen Klüften, die eine starke Strömung vom Druckraum zu den Kontrollräumen verursachen, wird, bei Vernachlässigung dieser Strömung, ein unreales Bild der Permeabilitätsverteilung identifiziert. In Abb. C.30 und Abb. C.31 sind die Ergebnisse der Anpassung für ein radialsymmetrisches Modell (Abb. C.30) und für ein zweidimensional ebenes Modell mit r-z-Geometrie (Abb. C.31) dargestellt. Die für die zwei Modellansätze ermittelten Vorstellungen zur Veränderung der Permeabilität im Strömungsraum sind in Abb. C.32 gegenübergestellt.

Wird die räumliche Ausbreitung der Strömung berücksichtigt (Abb. C.31), so ergibt sich eine nur 5 cm mächtige Auflockerungszone um die Bohrung mit einer Permeabilität von 5,5·10⁻¹⁷ m². Für den Gebirgsbereich ab einem Radius > 5 cm um die Bohrung wird mit 8·10⁻²¹ m³ eine deutlich reduzierte Permeabilität identifiziert. Bei Vernachlässigung der Umströmung der den Prüfraum einschließenden Packer (Abb. C.30) ist eine Anpassung der Druckentwicklung im Prüfraum nur über eine 30 cm mächtige Auflockerungszone mit erhöhter Permeabilität in der Größenordnung von 5·10⁻²⁰ m² bis 3,0·10⁻¹⁸ m² möglich. Für den Gebirgsbereich > 30 cm Radius um die Bohrung ergibt sich eine Permeabilität von 1·10⁻²⁰ m². Durch das falsche Identifikationsmodell wird diese unrealistisch große Auflockerungszone vorgespiegelt. Die Identifikation einer Permeabilität für die sekundäre Auflockerungszone um die Bohrung ist für das eindimensionale Auswertungsmodell nicht möglich.

Die Auflockerungszone wird durch den Bereich kleiner Messzeiten besonders charakterisiert und demzufolge durch die Vernachlässigung der Umströmung unrealistisch bewertet. Dem gegenüber verringert sich der Einfluss der Umströmung bei längeren Messzeiten.

57

⁵ Druckreaktionen in den Kontrollräumen

Da in diesem Beispiel ein nahezu vollständiger Druckabfallverlauf registriert wurde, wird durch die langen Messzeiten in der Bohrungsferne auch durch das Interpretationsmodell für radiale Strömung nahezu die gleiche Gebirgspermeabilität ermittelt.

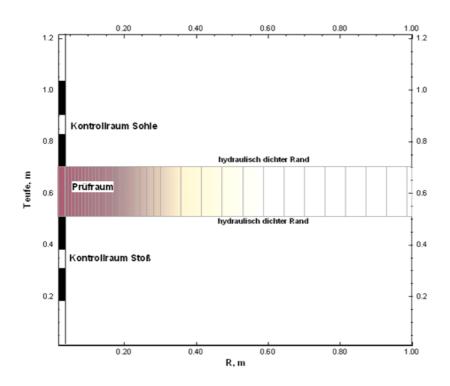


Abb. C.29 Eindimensional, radialsymmetrisches Modell

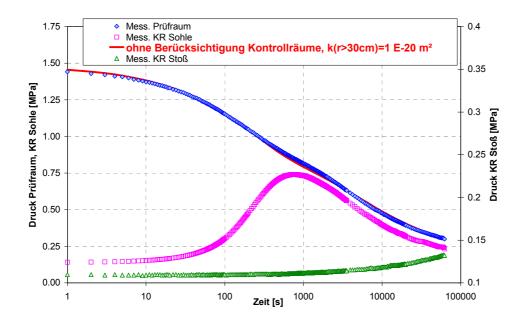


Abb. C.30 Anpassungsergebnis für eindimensional, radialsymmetrisches Modell (keine Berücksichtigung der Druckreaktion in den Kontrollräumen)

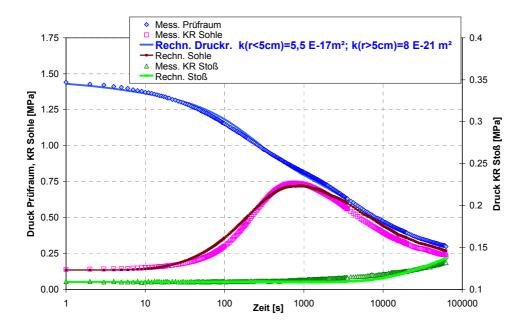


Abb. C.31 Anpassungsergebnis für zweidimensional ebenes, radialsymmetrisches Modell (r-z-Geometrie)

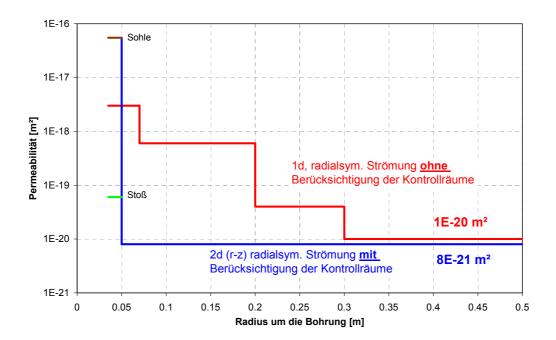


Abb. C.32 Gegenüberstellung der Versuchsauswertung für ein- und zweidimensionales Auswertungsmodell

3.2.2 Konturabstand

Für die Beurteilung der Permeabilität einer Auflockerungszone als Grundlage der Dimensionierung einer Querschnittsabdichtung ist der unmittelbar konturnahe, wenige Zentimeter hineinreichende Auflockerungsbereich im Stoß ausschlaggebend. Für die im Abschnitt 2 beschriebene Versuchsmethodik und Packerausrüstung sind Aussagen bis zu einem minimalen Konturabstand von 0,05 m bis 0,06 m möglich. Schlussfolgerungen auf die stoßnahe Permeabilität (< 0,05 m) werden aktuell durch Extrapolation von Versuchsdaten für unterschiedliche Konturabstände entsprechend Abb. C.24 gewonnen. Überwiegend Untersuchungen im Steinsalz haben gezeigt, dass die Permeabilitätsveränderung mit zunehmendem Abstand vom Stoß durch eine exponentielle Regression beschrieben werden können. Inwiefern die Extrapolation der gewonnenen Regressionsgeraden auf die Stoßkontur (z = 0 m) die realen Permeabilitätsverhältnisse hinreichend beschreibt, kann aktuell nicht sicher beurteilt werden.

In dieser Situation wurden im Rahmen des Projektes CARLA /GTS, 2007/ durch das Institut für Bergbau und Spezialtiefbau der TU Bergakademie Freiberg für die Untersuchung des Kontaktbereiches von Sorelbeton und carnallitischen Streckenstößen Oberflächenpacker entsprechend Abb. C.33 entwickelt und erfolgreich angewendet.

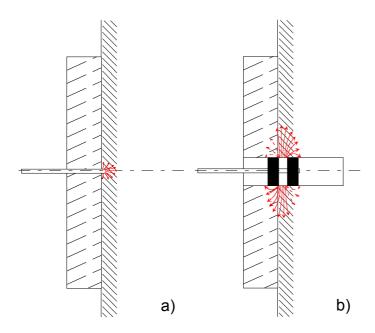


Abb. C.33 Materialspezifische Oberflächenpacker zur Untersuchung des Materialkontaktes

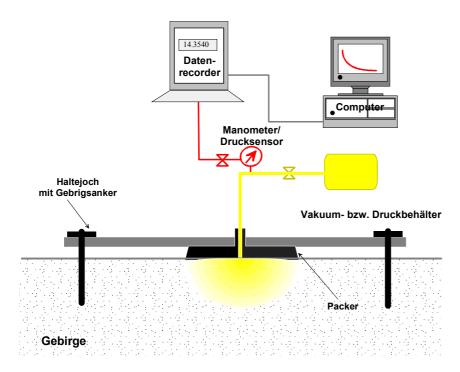


Abb. C.34 Flexibler Oberflächenpacker zur Untersuchung des Konturstoßes

In Zusammenarbeit mit den Autoren erfolgten Permeabilitätsmessungen für den Kontaktbereich Baustoff/Gebirge. Für die generelle Anwendung entsprechender Konzepte zur Ermittlung der stoßnahen Permeabilität ergeben sich folgende Einschränkungen:

- Der Einsatz von hydraulisch abbindenden Materialien als Oberflächenpacker kann durch den Flüssigkeitskontakt, die chemischen Wechselwirkungen und die Temperaturentwicklung zur Beeinflussung der Permeabilität der stoßnahen Auflockerungszone führen. Dies führt zu nicht oder nur eingeschränkt reproduzierbaren Versuchsergebnissen und Permeabilitäten.
- Zur Gewährleistung einer hydraulischen Dichtheit beim Einbinden eines Messröhrchens (Abb. C.33a) bzw. dem Setzen eines Packers (Abb. C.33b) sind mechanisch feste, nach Möglichkeit am Salinarstoß anbindende Oberflächenpackermaterialien erforderlich. Damit beschränkt sich der Einsatz der beschriebenen Oberflächenpacker weitgehend auf die Verwendung von hydraulisch abbindendem Material, wie Sorel- oder Solebeton. Untersuchungen für Packermaterialien mit geringerer Festigkeit, wie z. B. kompaktierte Tone, Salzversatz, sind nur sehr eingeschränkt möglich.
- Der Einsatz der beschriebenen Oberflächenpacker führt zu einem erhöhten technischen und zeitlichen Aufwand (u. a. Bau der Packer, Abbindedauer). Daraus resultiert eine begrenzte Flexibilität der möglichen Untersuchungen.

• Das Versuchskonzept ermöglicht die integrale Untersuchung des Kontaktbereiches zwischen Salinargebirge und Packermaterial sowie der Auswirkungen von Vergütungsmaßnahmen. Die bei hoher Qualität des Bohrloches im Kontaktbereich zwischen Packermaterial und Salinar mögliche Abdichtung erfordert in jedem Fall eine Überlappung des Salinargebirges durch ein Packerelement entsprechend Abb. C.33b (sonst Untersuchung des Kontaktbereiches). Damit ist durch den Einsatz von Oberflächenpackern die Reduzierung des beurteilbaren Konturabstandes möglich. Eine Untersuchung des unmittelbaren Konturstoßes ist nur bei genauer Kenntnis der Permeabilität des Packermaterials und der Kontaktfuge möglich.

Ausgehend von den vorangehend genannten Schwerpunkten sind die in Abb. C.33 dargestellten Oberflächenpacker gut geeignet für die Untersuchung der hydraulischen Anbindung von Bau- und Dichtmaterialien an Stoßoberflächen. Die Möglichkeiten einer repräsentativen Untersuchung des konturnahen Gebirgsbereiches beschränken sich in begrenztem Maße auf die Anwendung des Konzeptes It. Skizze b in Abb. C.33.

Auf Grund der Bedeutung der Kenntnisse zur konturnahen Permeabilität für die Konzipierung und Dimensionierung von Verschlussbauwerken und der begrenzten Aussagekraft von Bohrlochtests und Oberflächenpackertests laufen aktuell Bemühungen um die Entwicklung eines Oberflächenpackers entsprechend Abb. C.34.

Aus der im Abschnitt 2 beschriebenen Messmethodik resultieren, mit Ausnahme von integralen Messungen für längere Bohrungsabschnitte im Bohrlochtieferen, konturnah Messergebnisse für kurze Bohrungsabschnitte (bis maximal 1 m Prüfraumlänge). In Relation zur Größe des zu beurteilenden Gebirgsvolumens (in Abhängigkeit von den Hohlraumabmessungen) müssen diese als "Punktdaten" mit begrenzter Volumenrepräsentanz angesehen werden. In dieser Situation besteht Untersuchungsbedarf, inwiefern die sich daraus ergebende Unschärfe durch eine Kombination mit zusätzlichen geophysikalischen Messmethoden, wie z.B. Geoelektrik, akustische Verfahren oder Radar, ergänzt werden können. Erste Untersuchungen im Zusammenhang mit akustischen Verfahren (z.B. Kühnicke et al., 2000/2004; Voigt & Häfner, 2005) stellen eine mögliche Kombination der Messverfahren in Aussicht.

C

4 Schlussfolgerungen

Salzgesteine weisen in der Regel sehr geringe Permeabilitäten <<10⁻¹⁵ m² auf, die in starkem Maße von den sehr vielfältigen bergtechnischen und geomechanischen Standortbedingungen bestimmt werden. Aus der geringen Permeabilität und den spezifischen Eigenschaften der unterschiedlichen Salzgesteine ergeben sich hohe Anforderungen an die methodische und messtechnische Durchführung der in situ-Versuche zur Permeabilitätsermittlung sowie der Modellansätze zur Auswertung.

Insbesondere für Steinsalz wurden in den letzten Jahren an einer Vielzahl von Standorten – u.a. Schachtanlage Asse, Grube Bad Salzdetfurth, Grube Philippsthal, Grube Teutschenthal, ERA-Morsleben, Grube "Glückauf" Sondershausen – breite Erfahrungen zum Permeabilitätsverhalten gesammelt⁶. Demgegenüber liegen z.B. für Carnallitit, Anhydrit, Gips und Ton/Tonstein nur in sehr begrenztem Umfang charakterisierende in situ-Parameter vor.

Trotz der breiteren Datenbasis für Steinsalz und der z.T. komplexen begleitenden Informationen zu den Einzelmessungen ist die Ableitung von beschreibenden theoretischen Ansätzen nur für einzelne Zusammenhänge und Standorte möglich (z.B. Beschreibung der Verringerung der Gaspermeabilität mit zunehmendem Abstand zum Streckenstoß durch Exponentialfunktion der Form $k=k_{(z=0)}\cdot e^{b\cdot z}$). Die Ableitung von standortübergreifenden Ansätzen zur Beschreibung der Permeabilität der Auflockerungszone ist mit großen Unsicherheiten behaftet. Für die Konzipierung und Dimensionierung von hydraulischen Querschnittsabdichtungen ist daher die standortbezogene Ermittlung der in situ-Permeabilität erforderlich. Inwiefern die Punktdaten aus in situ-Permeabilitätsmessungen durch Messverfahren, wie z.B. Geoelektrik, akustische Verfahren oder Radar, in der Beurteilung der räumlichen Ausdehnung qualifiziert werden können, sollte geprüft werden.

Für die technologische Planung des Baus von hydraulischen Querschnittsabdichtungen stellt die Beurteilung der zeitabhängigen Veränderung der Permeabilität in der konturnahen Auflockerungszone der unterschiedlichen Salinargesteine gegenwärtig eine wesentliche Fragestellung dar. In diesem Zusammenhang steht ebenfalls die Forderung nach einer Erhöhung der Beurteilungssicherheit für die Permeabilität unmittelbar

⁶ Versuchsdatenbank bei den Autoren

am Konturstoß durch die Entwicklung eines individuell einsetzbaren Oberflächenpackern.

5 Publikationen und Referenzen zum Messverfahren

- Behr, A.; Voigt, H.D.; Haefner, F.; Belohlavek, K.-U. (2002): An advanced well test with automatic model calibration for soils and rocks. Proceedings of Model-CARE 2002, Prague, Czech Republic, 17-20 Juni, IAHS Publ. No. 272, 2002.
- Belohlavek, K.-U.; Behr, A. (1999): In-Situ Determinations of Geohydraulic Parameters of Natural Salt Rocks for Gas in Loosening Zones around Drifts (Cavities).

 Spring 1999 Meeting, Las Vegas, Nevada, USA, 11-14 April 1999.
- GTS (2007): Entwicklung eines Grundkonzeptes für langzeitstabile Streckendämme im leichtlöslichen Salzgestein (Carnallitit) für UTD/UTV. Teil 2: Erprobung von Funktionselementen in situ. GTS GmbH & Go. KG, BMBF gefördertes Forschungsvorhaben, FK: 02 C 1204, laufendes Vorhaben.
- Häfner, F., Belohlavek, K.-U., Behr, A., Förster, S., Pohl, A. (2001): In-situ-Ermittlung von Strömungskennwerten natürlicher Salzgesteine in Auflockerungszonen gegenüber Gas und Salzlösungen unter den gegebenen Spannungsbedingungen im Gebirge. Abschlussbericht TU Bergakademie Freiberg, April 2001
- Heemann, U. & Heusermann, S. (2004): Theoretical and experimental investigation on stresses and permeability in the BAMBUS project. DisTec 2004, International Conference on Radioactive Waste Disposal, April 26-28, 2004, Berlin.
- Kühnicke, H.; Reutter, O.; Schubert, F. (2000): Zerstörungsfreie Messmethoden zur Charakterisierung und Überwachung von Auflockerungszonen. 51. Bergund Hüttenmännischer Tag, 14.-16.06.00, Freiberg; in: Einsatz geotechnischer und geophysikalischer Methoden zur Lösung ingenieurtechnischer Aufgaben, Freiberger Forschungshefte C483 Geowissenschaften, Hrsg. H. Lindner, R. Azzam, Technische Universität Freiberg, S. 26-36

- Kühnicke, H.; Schubert, F.; Schulze, E. (2004): In-situ Investigation of Excavation Disturbed Zones Close to Drives in Salt mines. 26th European Conference on Acoustic Emission Testing, September 15-17, 2004, Berlin, Germany, DGZfP-Band BB 90, Nr. 2, 1017-1023
- Miehe, R.; Harborth, B.; Klarr, K.; Ostrowski, L. (1993): Permeabilitätsbestimmungen im Staßfurt-Steinsalz in Abhängigkeit von einer Streckenauffahrung. Kali und Steinsalz, Band 11, Heft 5/6, S. 175-184
- Popp, T., Wiedemann, M., Kansy, A. & Pusch, G. (2007): Gas transport in dry rock salt
 implications from laboratory investigations and field studies. In: M. Wallner, K.H. Lux, W. Minkley & H. R. Hardy. The Mechanical Behaviour of Salt
 Understanding of THMC Processes in Salt: 6th Conference (SaltMech6),
 Hannover, Germany, 22-25 May 2007. Publ.: Taylor and Francis, ISBN: 9780415443982, 17 26.
- Stormont, J.C. (1995) The influence of rock salt disturbance on Sealing. Second North American Rock Mechanics Symposium, Montreal, Quebec.
- Stormont, J.C.; Howard, C.L.; Daemen, J.J.K. (1991): Changes in rock salt permeability due to nearby excavation. Rock Mechanics as a Multidisciplinary Science
- Voigt, H.-D. & Häfner, F. (2005): In-situ gemessene Permeabilität im Salzgestein im Vergleich mit geophysikalischen Indikationen. 3. Fachgespräch "Geophysik und Barrieresysteme", Leipzig Germany 17. März.
- Voigt, H.-D., Häfner, F., Sitz, P. (2003): A field test to measure low permeabilities of host and excavatio-disturbed rocks. "Proceedings of a European Commission CLUSTER Conference and Workshop, Luxembourg, 3 to 5 Nov. 2003, published in the EUR series EURATOM.
- Voigt, H.-D.; Häfner, F.; Sitz, P.; Wilsnack, Th. (2003): Bestimmung geringster Durchlässigkeiten im Gebirge. Bergbau, Zeitschrift für Rohstoffgewinnung, Energie, Umwelt, S. 537-539, Dez. 2002.
- Wagner, R.M., Voigt, H.-D. (1999): Bestimmung der Durchlässigkeit trockener und teilgesättigter Böden. TerraTech 3, S.20-22

D Die Bewertung der Gasproblematik in einem Endlager im Salz auf der Basis von In-situ-Tests (Till Popp)

1 Einleitung

Die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle in tiefen geologischen Gesteinsformationen ist weltweit das einzig anerkannte Konzept für ihre langfristig sichere Entsorgung, um eine Gefährdung sowohl heute lebender als auch zukünftiger Generationen auszuschließen.

In einem Endlager für radioaktive aber auch für chemisch-toxische Abfälle können durch unterschiedliche Prozesse Gase – darunter vor allem Wasserstoff – gebildet werden, wodurch im zeitlichen Verlauf infolge des daraus resultierenden Druckanstieges die Barrierenintegrität durch ein Gasfracereignis gefährdet sein könnte (z.B. RSK, 2005). Die Gastransporteigenschaften potentieller Wirtsgesteine mit steigendem Druck sind somit von grundlegender Bedeutung, sowohl für die Konzeption eines Endlagers als auch für die Bewertung der Langzeitsicherheit eines Endlagers (z.B. Popp et al., 2007).

Vor diesem Hintergrund müssen zunächst grundlegende Prozesse hinsichtlich der relevanten Einflussparameter für einen Gastransport bei erhöhten Porendrücken experimentell charakterisiert und bezüglich der Veränderung der entsprechenden Transporteigenschaften quantifiziert werden. Das IfG hat dazu im Rahmen des UFOPLAN-Vorhabens SR 2470 im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) für das BMU umfangreiche Untersuchungen durchgeführt (IfG, 2007). Weiterhin ist das IfG an dem BMBF-Projekt "Modellentwicklung zur Gaspermeation aus unterirdischen Hohlräumen im Salzgebirge" (Förderkennzeichen BMBF – 02 C 0952) unter der Leitung von Prof. Dr. mont. Pusch (Institut für Erdöl- und Erdgastechnik, TU Clausthal, ITE) mit der Durchführung eines Untertageversuchs in Bernburg beteiligt (Kansy & Popp, 2006).

Da die Rahmenbedingungen zum Gastransport in Ton- und Salzgesteinen sowie die aus einem Gasdruckanstieg resultierenden Effekte außerordentlich komplex sind, war es das Ziel, die Gastransporteigenschaften von Salz- und Tongesteinen vor dem Hintergrund eines möglichen Gasdruckanstieges systematisch zu untersuchen und daraus belastbare Parameter zur Bewertung der Barrierenintegrität für eine rechentechnische

Modellierung zu erhalten. Aufgabe war u.a. die relevanten Transporteigenschaften (z.B. Permeabilität, kapillarer Sperrdruck) sowie mechanische Eigenschaften (z.B. Langzeitkriechverhalten, Rissschließung) zu quantifizieren, wobei neben den zu erwartenden Schädigungs- auch mögliche Verheilungsprozesse untersucht werden sollten. Hierbei waren schwerpunktmäßig folgende Fragen zu untersuchen:

- Wie reagiert das Wirtsgestein des Endlagers auf den Druckaufbau der Fluide?
- Wenn es zu einem Frac kommt, wie sieht der Kompaktions- oder Verheilungsprozess danach aus?
 - Abhängigkeit der Selbstheilung von der Dauer der Öffnung bzw. Höhe des Frac-Drucks
 - Abhängigkeit des Eintritts eines Fracs von der Druckaufbaurate

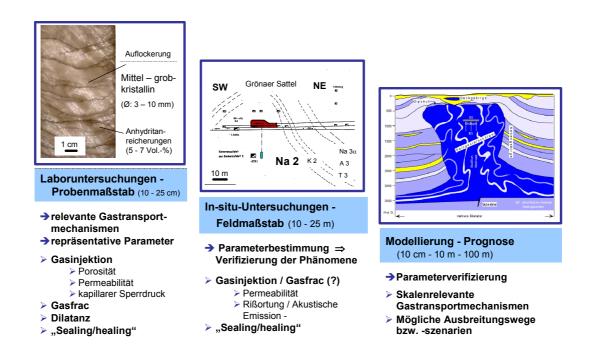


Abb. D.35 Untersuchungskonzeption

Hinzu kommt, dass aufgrund der Variabilität natürlicher Gesteine und der Problematik ungeschädigte Proben zu gewinnen, Skaleneffekte eine große Rolle spielen. Infolgedessen basiert die Untersuchungskonzeption (Abb. D.35) auf drei Arbeitsschwerpunkten mit verschiedenen Themengruppen als Unterpunkten:

 Laboruntersuchungen mit definierten experimentellen Randbedingungen bezüglich der exogenen und lithologischen Einflussfaktoren, bei denen ein weites Spektrum Die Bewertung der Gasproblematik in einem Endlager im Salz auf der Basis von In-situ-Tests (Till Popp)

an lithologischen und geomechanisch/hydraulischen Einflussgrößen abgeklärt wurde.

- Charakterisierung initialer Probenzustand
- Gasinjektionstests ⇒ Gleichgewichtsdruck; kapillare Sperrdruckeffekte
- Dilatanzuntersuchungen zur Bewertung der Permeabilitäts / Porositäts-Relation
- Verheilung bei isostatischer Belastung
- Einfluss eines Porendrucks (Gas / Lösung) auf das Verformungsverhalten
- Durchführung von in situ-Tests, die in einem großmaßstäblichen Rahmen mögliche Effekte als Folge eines Gasdruckaufbaus sowie das Potential dieser Wirtsgesteine für Verheilungsprozesse aufzeigen:
 - BfS-Untertageversuchsort: geschichtetes Leinesteinsalz (Na3)
 - Versuchsort Gaspermeation: tektonisch beanspruchtes Staßfurt-Steinsalz (Na2)
 - Untertageversuchsort Sigmundshall: Tonformation (Roter Salzton T4)
 - Gasfracszenario Merkers Naturanalogon eines Gasfracszenarios mit anschließender Verheilung (vgl. 2. Beitrag Minkley & Popp)
- Modelltechnische Umsetzung der erzielten Ergebnisse
 - Gasfracanalogon Merkers geomechanische Rückrechnung der Randbedingungen beim Gebirgsschlag mit gleichzeitigem Gasdurchbruch sowie Prognose des Wiederverheilungsvermögens (vgl. 2. Beitrag Minkley & Popp)
 - Bewertung der Ergebnisse der Bohrlochinjektionsversuche mit Simulationsrechnungen auf Basis der experimentell bestimmten analytischen Ansätze zur Beschreibung des gasdruckabhängigen Permeationsverhaltens.

2 In-situ-Test am Standort Bernburg

Zur Verifizierung der im Labor bestimmten Gastransportphänomene sowie der dort bestimmten Parameter sind großmaßstäbliche Druckaufbautests in gasdicht komplettierten Bohrlöchern unerlässlich. Die in situ-Untersuchungen an Steinsalz werden im

Steinsalzbergwerk Bernburg durchgeführt. In dem zur Unternehmensgruppe esco (european salt company GmbH & Co KG) gehörenden Werk, das an der B71, ca. 35 km südlich von Magdeburg gelegen ist, wird in einer mittleren Teufe von 475 m Bergbau auf Steinsalz betrieben.

Es sind dort zwei Untertageversuchsorte mit je einem Bohrlocharray von 9 Bohrungen, jeweils mit einer Länge von ca. 25 m, eingerichtet worden, mit dem die Gastransporteigenschaften von Steinsalz bis zu einem maximalen Gasdruck von 200 bar untersucht werden können.

Ausgehend von der Annahme, dass ein gasdruckinduzierter Riss mit entsprechenden mikroakustischen Signalen ("Acoustic Emission" - AE) verbunden sein sollte, ist zum Nachweis von Rissbildung im druckbeanspruchten Gebirge zusätzlich ein AE-Messsystem installiert worden, das eine kontinuierliche Erfassung und Rissortung ermöglicht.

Der sogen. BfS-Standort liegt im geschichteten Leinesteinsalz (Na3) bzw. der Versuchsort Gaspermeation liegt im tektonisch beanspruchten Staßfurt-Steinsalz (Na2), wobei sich die Ergebnisbeschreibung auf den letzteren Standort konzentriert.

2.1 Geologische Rahmenbedingungen und technische Installationen

Der Gaspermeationsversuchsort liegt an der NE-Flanke des Grönaer Sattels, rund 40 Meter südwestlich des Schachtes Bernburg, in der Zufahrt zur Füllstelle des Schachtes. Der Grönaer Sattel selbst ist das dominierende tektonische Element innerhalb des östlichen Grubenfeldes Bernburg. In seinem Kern ist das Staßfurt-Steinsalz (Na2) bis zu einer Mächtigkeit von rund 400 Meter angestaut. Seine lang gestreckte ca. 2,0 km lange Sattelachse streicht aus ostsüdöstlicher Richtung kommend im Grubenfeld generell herzyn. Eine mehr westöstliche Streichrichtung ist im nordwestlichen Teil und im Südosten des Sattels ausgebildet.

Am Versuchsort ist das Staßfurt-Steinsalz (Na2) in einer Teufe von 540 m im stratigraphischen Niveau der Anhydritregion aufgeschlossen. Das hier vorliegende Schichteinfallen beträgt 13 Grad nach NO. Ein Überblick über den geologischen Aufbau in diesem Teil der Lagerstätte wird mit dem geologischen Schnitt links in Abb. D.36 gegeben.

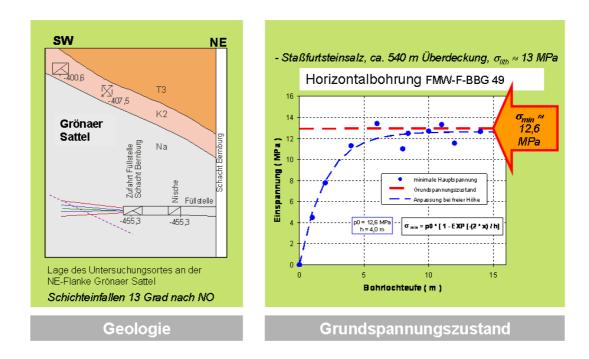


Abb. D.36 Überblick über den geologischen Aufbau des esco-Steinsalzbergwerkes Bernburg (li.) und Ergebnisse der Hydrofracmessung (re.)

Wie für die Anhydritregion typisch, wechseln am Stoss des Versuchsortes horizontale, makroskopisch erkennbare, dünne Anhydritlagen von <1 mm bis cm-Stärke mit überwiegend bis zu dm-mächtigen Steinsalzbänken, womit die ursprüngliche primäre Schichtung des Steinsalzes nachgezeichnet wird. Nach dem Kernbefund fallen die Schichten in einem flachen Winkel von ca. $5-10^{\circ}$ zur Bohrlochachse ein, so dass mit zunehmender Bohrlochteufe unterschiedliche Anhydritlagen sukzessive geschnitten werden (Abb. D.37).

Die Anhydritlinien sind sehr heterogen ausgebildet (z.T. scharf konturiert und megaskopisch dicht, oder von Halitfeinstreifen bündelweise texturiert bis diffus in der Steinsalzmatrix angereichert). Sie sind jedoch aufgrund der tektonischen Beanspruchung nicht durchgehend, sondern liegen im dm-Bereich intensiv verfaltet bis zerrissen oder mehrfach übereinander geschoben vor. Da in der Bohrung weiter aushaltende Anhydriteinlagerungen nicht angetroffen wurden, wird das Steinsalz zwar als stark mit Anhydrit durchsetzt, aber insgesamt als homogen und gleichzeitig als repräsentativ für Staßfurt-Steinsalz (Na2) in der steilen Lagerung angesprochen.

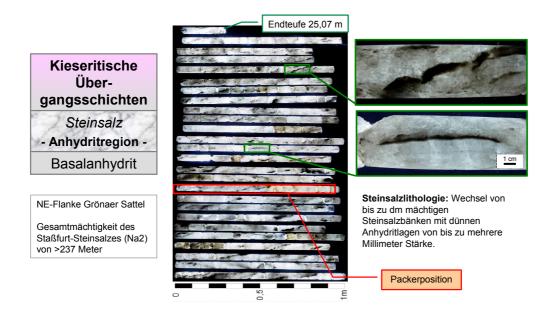
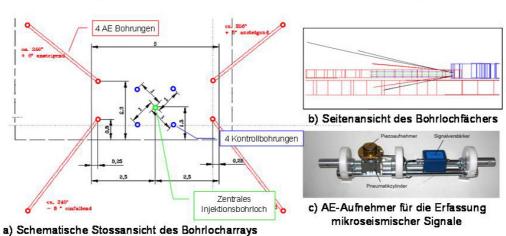


Abb. D.37 Steinfurtsteinsalz

Da im Umfeld des Versuchsortes, abgesehen von einzelnen Strecken, keine größeren Grubenbaue vorhanden sind, liegt der Versuchsort somit in einem nahezu unverritzten Gebirgsbereich. Ausgehend vom Aufbau des Deckgebirges und des Salinars mit einer Gesamtüberdeckung von 540 m wird ein petrostatischer Teufendruck (d.h. Primäroder Grundspannungszustand) in der Größenordnung von $\sigma_{lith} \approx 13$ MPa abgeschätzt. Dieser Wert wird durch Hydrofracmessungen bestätigt (rechts in Abb. D.36).



Lokalisierung der Rissbildung durch seismisches AE-monitoring

Abb. D.38 Injektionsversuche in einem Bohrlocharray

Das Bohrlocharray zur Durchführung der Injektionstests besteht aus einem zentralen, 25 m langen, horizontal verlaufenden Injektionsbohrloch MB-2 (\varnothing = 62 mm) sowie vier parallel dazu verlaufenden Kontrollbohrungen (\varnothing = 42 mm: SL 5 – SL 8, siehe Abb. D.38). Sie dienen zur Detektion eines Gastransportes bzw. Gasdurchbruches und sind zur Erfassung des entsprechend dem Schichtungsverlauf möglicherweise anisotropen Gastransportes schichtparallel bzw. senkrecht dazu um das zentrale Injektionsbohrloch im Abstand von 1 bzw. 2 m gebohrt worden.

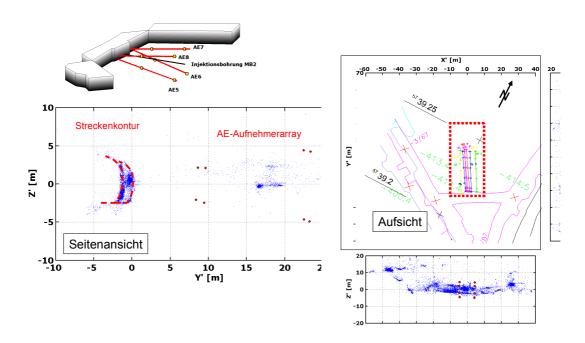


Abb. D.39 Lokalisierung mikroseismische Ereignisse

Im näheren Umfeld wurden vier weitere leicht, je zwei nach unten bzw. oben einfallende AE-Bohrungen (\varnothing = 101 mm) niedergebracht, die ein trichterförmiges Messarray aufspannen (siehe links oben in Abb. D.39) Für die mikroakustische Dauerüberwachung unter Tage wurde ein von der Fa. GMuG in Bad Nauheim entwickeltes Messverfahren installiert (Manthei et al., 2000), die auch die Messungen durchführten und auswerteten.

Die Länge dieser Bohrungen beträgt ca. 25 m bei einem Durchmesser von 101 mm. Die AE-Aufnehmer sind jeweils bei 10 m bzw. 20 m Bohrlochteufe positioniert. Die Sensoren werden mechanisch durch eine Feder an die Bohrlochwand gepresst. Die registrierten Ereignisse werden über die gemessenen Laufzeiten auf Basis einer vorher durchgeführten Geschwindigkeitskalibrierung geortet. Hierzu werden die erkannten Einsatzpunkte sowohl der Longitudinal- als auch der Transversalwelle benutzt. Bei al-

len georteten Ereignissen werden die Ortskoordinaten und weitere Kenndaten bestimmt.

Die im Rahmen der mikroakustischen Messungen am BfS-Versuchsort georteten Ereignisse sind nach Anwendung des sogen. "Collapsing"-Verfahrens, das zu einer verbesserten räumlichen Auflösung der Messungen führt, als blaue Punkte in Abb. D.39 als Seitenansicht sowie als Aufsicht dargestellt. Danach zeigen sich im Bereich der Streckenstösse, d.h. an dem Stoß an dem Querschlag, an dem die Bohrungen ansetzten, sowie auch den weiter entfernten Strecken, die Hauptförderstrecke (links) und die Bandstrecke (rechts), deutliche Ereignisse, die als Saumbereich die Auflockerungszone (ALZ) mit 1 – 2 m Reichweite nachzeichnen. Zusätzlich gibt es im Bereich der Injektionsbohrung bei ca. 16 m einen Häufungsschwerpunkt, der nach dem Kernbefund aus einem signifikanten Materialwechsel von Steinsalz zu einer Anhydritschicht resultiert. Insgesamt belegt die Darstellung die ausgezeichnete Qualität und Leistungsfähigkeit des mikroakustischen Messsystems.

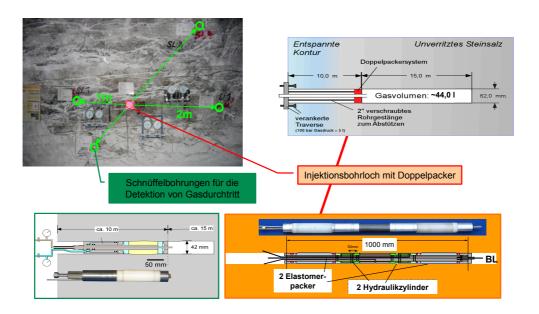


Abb. D.40 Installation am Versuchsort

Die Packer im Injektionsbohrloch bzw. in den Kontrollbohrungen sind außerhalb der Auflockerungszone der Streckenkontur angeordnet (siehe Abb. D.40). Die Abdichtung der zentralen Messbohrung erfolgt durch eine speziell hierfür entwickelte Bohrlochsonde. Da in dem abgepackerten Injektionsintervall (Volumen: max. ca. 0,044 m³) Gasdrücke bis 20 MPa realisierbar sein sollten, bestanden besondere Anforderungen an die Gasdichtheit des Bohrlochverschlusses sowie an die Sicherheit im Falle eines

Versagens des Packersystems. Es besteht aus einem hydraulo-mechanisch kontrolliert gespannten Elastomer-Doppelpacker mit einer effektiven Packerdichtlänge von 1 m. Über den zwischen den Packern liegenden Kontrollraum kann ein mögliches Umströmen des hinteren Packers detektiert werden. Der Packer wird zusätzlich über einen steifen Rohrstrang an einer Traverse guer zum Bohrlochmund gesichert.

In den Kontrollbohrungen wurden ebenfalls hydraulisch gespannte Einfach-Elastomerpacker mit einer Dichtlänge von ca. 25 cm eingesetzt, die sich in früheren Druckaufbautests bewährt haben.

2.2 Ergebnisse

Die am Versuchsort Gaspermeation noch laufenden Druckaufbautests haben zwischenzeitlich eine Dauer von mehr als 800 Tagen erreicht, wobei sie zunächst als Druckpulstests durchgeführt wurden, d.h. der Druck wird in Stufen erhöht und jeweils die Druckabfallkurve bewertet. Dabei ist es in der Druckstufe bei 140 bar Nenndruck zu einem Gasdurchbruch bis in die Kontrollbohrlöcher gekommen. Der zeitliche Verlauf des Versuchs ist in Abb. D.41 dargestellt.

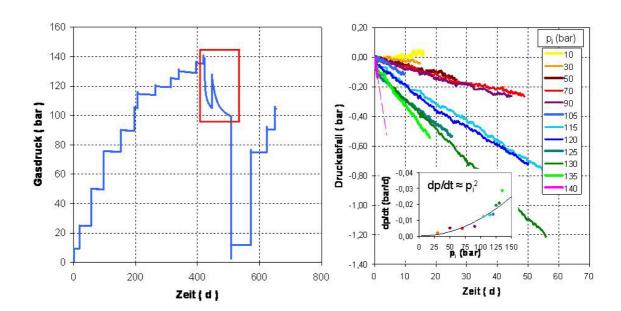


Abb. D.41 In-situ-Gasinjektionstest

In der ersten Versuchsphase von ca. 200 Tagen wurde der Druck in Schritten zwischen 10 und 20 bar bis auf 115 bar erhöht. Mit der Annäherung an die mutmaßliche minimale Gebirgsspannung wurde der Gasdruck in 5-bar-Schritten gesteigert. Die über den

Ausgangsdruck jeder Druckstufe normierte Darstellung des Bohrlochdruckes zeigt einen quasi-stationären Verlauf mit einem Druckabfall zwischen wenigen mbar bis zu etwa 30 mbar pro Tag bei p_{Gas} = 135 bar, ohne dass Sättigungsbedingungen mit einem konstanten Druckniveau erreicht werden. Diese stufenweise Zunahme der Druckabfallrate bis etwa 135 bar entspricht der nach Darcy mit steigendem Druck zu erwartenden quadratischen Druckabhängigkeit der Fließrate für den stationären Fluss kompressibler Medien (vgl. Abb. D.41, rechts).

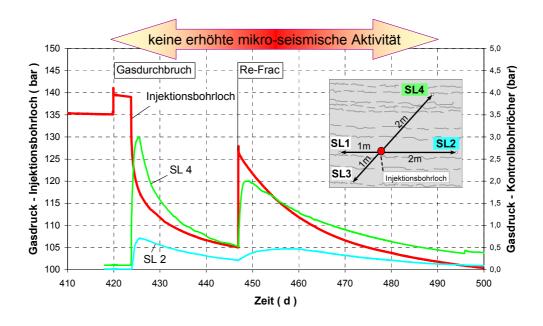


Abb. D.42 Gasdurchbruch bei ca. 140 bar

In der nächsten Druckstufe bei 140 bar trat eine signifikante Erhöhung der Druckabfallrate auf etwa 0,13 bar pro Tag auf. Weiterhin kam es, wie in Abb. D.42 dargestellt, nach etwa 4 Tagen zu einem schlagartigen Gasdurchbruch mit einem Druckabfall von 20 bar innerhalb eines Tages, der gleichzeitig in den Kontrollbohrungen SL 2 und SL4 zu einem Druckanstieg von 0,7 bar im Abstand von 2 m bzw. 2,8 bar im Abstand von 1 m führte. Festzuhalten ist dabei, dass es keine erkennbaren Vorboten (z.B. allmähliche Zunahme des Druckabfalls) sowie während des gesamten Ereignisses **keine erhöhte mikro-akustische Aktivität** gab. Danach stabilisierte sich der Druck auf einem Niveau von ca. 110 bar bei einem Druckabfall von ca. 50 mbar pro Tag.

Dieser Vorgang einer deutlichen Druckentlastung mit einem Gasdurchschlag zu den Kontrollbohrungen sowie der anschließenden Stabilisierung auf einem niedrigeren Gasdruckniveau wiederholt sich nahezu analog, nachdem der Gasdruck erneut auf 125 bar erhöht worden ist. Nach Bestätigung der Reversibilität des Gasdurchbruchmechanismus, wurde das Bohrloch bis auf 10 bar entlastet und beobachtet, ob es zu Ausgasungseffekten des gasdruckbeladenen Salzgebirges kommt.

Abb. D.43 zeigt den zeitlichen Verlauf der Rate oberflächennaher Ereignisse (linkes Teilbild) und von Ereignissen aus der Umgebung der Injektionsbohrung (rechtes Teilbild) sowie des Gasdruckes im Injektionsbohrloch (grüne Linie).

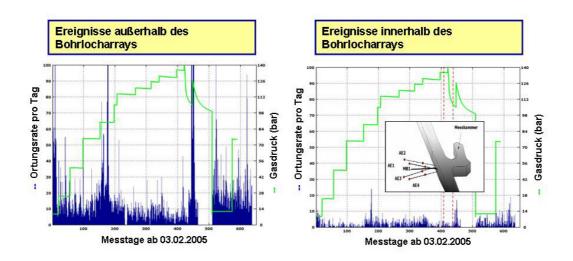


Abb. D.43 Mikroseismische Rissortung

Die beiden Teilbilder zeigen, dass vereinzelt sehr hohe Ortungsraten auftreten, die im Ergebnis der in beiden Bildern dargestellten räumlichen Diskriminierung zum Teil auf Arbeitsgeräusche am Stoß und bei der Instrumentierung der Injektionsbohrung und den umgebenden Beobachtungsbohrungen zurückzuführen sind. Signifikante Anstiege der Ortungsrate Anfang August 2005 (hier nicht dargestellt), Anfang Juli 2006 (Messtag 300) und im Mai 2007 (Messtag 500) in den oberflächennahen Auflockerungszonen (Teilbild links) in den Frühjahrs- bzw. Sommermonaten resultieren aus der jahreszeitlich bedingten Zunahme der Luftfeuchtigkeit im Grubengebäude, die zu einer Erhöhung der Rissbildungsrate an den Stößen der Strecken führt. In der Umgebung der Injektionsbohrung (Teilbild rechts) sind keine deutlichen jahreszeitlichen Schwankungen der Ortungsrate zu erkennen, weil die Feuchtigkeit nicht in oberflächenferne Bereiche eindringt.

Unabhängig davon, lässt sich keine Korrelation der mikroakustischen Aktivität mit dem Gasinndendruck der Bohrung erkennen. Insbesondere für die Bewertung des Gasfracverhaltens ist wichtig festzuhalten, dass es vor dem Druckabfall keine signifikante Zu-

nahme der Druckabfallrate sowie keine erhöhte SE-Aktivität vor und während des Prozesses des Gasdurchbruches gab und somit kein "Pre-Cursor"-Ereignis auftrat. Dies ist zunächst überraschend, zumal der Gasdurchschlag innerhalb eines Tages spontan und mit hoher Dynamik (Druckabfall bis ca. 20 bar/Tag) erfolgte. Dieser Prozess unterscheidet sich offensichtlich sehr deutlich von einer üblichen mechanisch induzierten Rissbildung. Es bilden sich vielmehr "Kurzschlüsse" zwischen schon vorhandenen Wegsamkeiten, die bewirken, dass größere Volumina für das einströmende Gas zur Verfügung stehen. Dieser Prozess ist mit geringer Neubildung von Rissoberfläche verbunden. Daher wird nur wenig Energie in Form von mikroakustischen Ereignissen freigesetzt. Aufgrund der bisher bei GMuG vorliegenden Erfahrung beispielsweise zu dynamischen Bruchprozessen im Salzgebirge kann davon ausgegangen werden, dass die dynamische Empfindlichkeit des mikroakustischen Messsystems ausreichend ist, um auch kleine Rissbildung registrieren zu können.

2.3 Auswertung der Gasinjektionstests – numerische Simulation

Insgesamt sind die an beiden Standorten beobachteten Druckabfallraten mit einer Bandbreite zwischen wenigen mbar/d bis zu 50 mbar/d bei Druckstufen unterhalb der Gebirgsspannung extrem niedrig, was insbesondere zur Beobachtung eines hinreichenden Messeffekts Versuchszeiten bis zu mehr als 50 Tagen erforderlich machte. Gleichzeitig ist dies ein Hinweis auf die hohe Gasdichtigkeit des Salzgebirges.

Gleichzeitig entspricht die im Detailbild in Abb. D.41 dargestellte Zunahme der Druckabfallrate vom Gasdruck bis etwa 13,5 MPa der nach Darcy zu erwartenden quadratischen Druckabhängigkeit einer Fließrate für den stationären Fluss kompressibler Medien. Damit wird für die in Bernburg durchgeführten Gasinjektionstests eindeutig belegt, dass im trockenen Salzgebirge fluidinduzierte Effekte im Sinne einer 2-Phasenströmung bei den durchgeführten Messungen vernachlässigt werden können und offenbar nur Gasausbreitung im Sinne einer DARCY-Strömung vorliegt. Dies stellt eine wichtige Vorbedingung zur Bestimmung der Permeabilität aus den beobachteten Abfallkurven dar.

Eine zweite Vorbedingung ergibt sich aus der Annahme, dass Porendrücke im Salzgebirge vernachlässigbar sind (vgl. hierzu auch Häfner et al., 2001).

Für die Auswertung der Druckverläufe wurden zwei Verfahren verwendet:

- ein analytisches Verfahren basierend auf einem (quasi)-stationären radialsymmetrischen Abströmen unter Annahme einer mittleren Strömungsrate: r-Geometrie.
 Die Grenzbedingung Reichweite ergibt sich proportional zum Gasverlust im Bohrloch über das schrittweise Aufsättigen einer vorliegenden Porosität von 0,1% mit einem mittleren Porendruck entsprechend der vorliegenden Druckstufe.
- ein von der Arbeitsgruppe Häfner (BA Freiberg) im Rahmen eines BMBF-Forschungsvorhabens entwickeltes numerisches Rechenprogramm BT_2d (Häfner et al., 2001: r-z-Geometrie. Mit diesem Verfahren sind vorrangig in Salzbergwerken in horizontalen oder vertikalen Hohlräumen durchgeführte Permeabilitätsmessungen interpretiert worden.

Mit beiden Verfahren wurden zueinander konsistente Ergebnisse erzielt, die sich im Detail um einen Faktor 2 – 3 unterschieden. In Abb. D.44 sind beispielhaft die Permeabilitätsergebnisse als Funktion des initialen Injektionsdruckes für den Versuchsort Gaspermeation dargestellt.

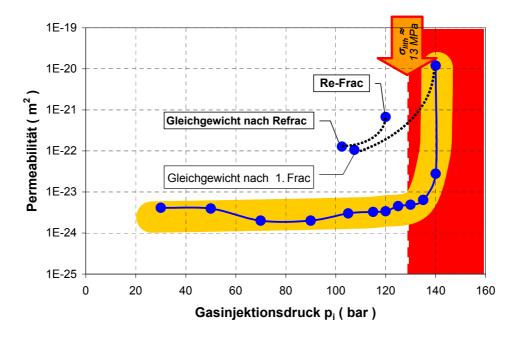


Abb. D.44 Hydraulische Integrität nach Gasdurchbruch

An beiden Standorten wird übereinstimmend eine initiale Dichtheit des Salzgebirges in der Größenordnung von ~10⁻²⁴ m² nachgewiesen. Mit steigendem Druck ist ein schwacher Trend einer kontinuierlichen Permeabilitätszunahme zu beobachten.

Als Folge der stufenweisen Druckerhöhung findet bei beiden Orten in einem Bereich zwischen 130 und 140 bar eine signifikante Zunahme der Permeabilität statt, die als einsetzende Gaspermeation gedeutet wird und im Fall Bernburg auch zu einem Gasdurchschlag in zwei Kontrollbohrlöcher führte. Die Testauswertung belegt eine Permeabilitätszunahme bis zu 4 Dekaden.

Als Folge der beim Gasdurchschlag gleichzeitig einhergehenden Druckentlastung bis zur Stabilisierung auf einem quasi stationärem Druckniveau nimmt die Permeabilität spontan wieder ab, wobei die niedrige Ausgangspermeabilität nicht vollständig wieder erreicht wird, der Prozess aber reversibel ist. Anzumerken ist hierzu noch, dass nach nahezu vollständiger Entspannung des Bohrlochs auf 10 bar, wobei kein Rückfluss von Gas beobachtet wurde, die im Wiederholungszyklus gemessenen Druckabfallkurven praktisch identisch sind. Im Ergebnis kann somit gefolgert werden, dass das Salzgebirge durch die vorhergehende Gasdruckbelastung sowie den Gasdurchschlag in seinen Gastransporteigenschaften nicht entscheidend verändert worden ist.

Bezüglich Wiederherstellung der Integrität bedeutet dies, die druckinduzierte Aufweitung der Fliesswege beim Überschreiten der Minimalspannung ist zumindest teilweise spontan reversibel, d.h. es findet unmittelbar in Abhängigkeit vom Gasdruck eine spontane Rissschließung statt.

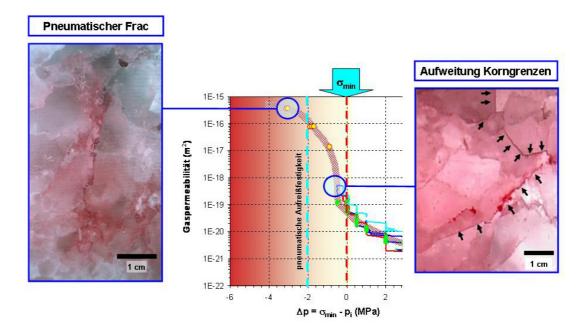


Abb. D.45 Laborexperiment - Pneumatisches Rissgefüge

Als Basis des Auswerteverfahrens wird mit dem r-z-Modell eine zweidimensonale Porendruckverteilung für jeden Messzyklus berechnet. Diese Ergebnisse sind in Abb. D.45 für die Druckstufe bei 125 bar bzw. im Moment des Gasdurchschlages bei 140 bar dargestellt.

Deutlich wird, dass die gasdruckbeeinflusste Zone bei Gasdrücken unterhalb der minimalen Druckeinspannung infolge der geringen Permeabilität nur etwa im Dezimeterbereich um das Bohrloch herum liegt, und sich die gasdruckbeladene Zone mit dem Gasdurchbruch bei 140 bar, erkennbar an der 0,3 MPa-Isolinie, auf den Meterbereich erweitert.

Im Experiment wurde tatsächlich ein Druckanstieg bis zu 0,28 MPa, allerdings nur in den 2 m entfernten Kontrollbohrungen beobachtet. Die Druckfront ist somit in dieser Region weiter fortgeschritten als in der Modellierung prognostiziert. Da in den näher liegenden Bohrungen kein Effekt auftrat, ist die Gasausbreitung nicht homogen. Deshalb stimmt die Ausdehnung des durch den Gasdurchbruch beeinflussten Salzgebirges nur qualitativ mit der durch das Häfner-Programm berechneten Porendruckverteilung im Gebirge überein, was die Grenzen des rotationssymmetrischen Rechenmodells mit homogener Gasausbreitung aufzeigt.

3 Laboruntersuchungen

Für die Bewertung der Permeabilitätsvariation bei Entwicklung eines Gasdruckes bis über den Einspannungszustand hinaus sind umfangreiche Laboruntersuchungen durchgeführt worden, zu deren Illustration auf Abb. D.46 experimentelle Daten zur Permeabilität als Funktion des Differenzdruckes ($\Delta p = \sigma_{min} - p_i$) zwischen der kleinsten Hauptspannung (σ_{min}) und dem Injektionsdruck (p_i) dargestellt sind. Die Ergebnisse können, wie folgt, zusammengefasst werden:

Die initiale Permeabilität k einer Salzprobe hängt in erster Linie vom vorliegenden Schädigungsgrad ab. Unverritztes, d.h. ungeschädigtes Steinsalz ist qualitativ dicht, d.h. die Permeabilität ist deutlich niedriger als 10⁻²⁰ m². Sie variiert mit den lithologischen Eigenschaften (Korngröße, Gehalt und Verteilung der lithologischen Verunreinigungen z.B. Anhydritpartikel) sowie der wirkenden Druckeinspannung. Zusätzlich sind Anisotropieeffekte zu berücksichtigen, die primär aus einer sedimentären Schichtung oder auch aus einer tektonischen Beanspruchung resultieren können, wobei Unterschiede bis zu mehreren Größenordnungen auftreten können.

- 2. Wird über einer Salzprobe der Gasinjektionsdruck (p_p) erhöht, ist die druckbedingte Änderung der Permeabilität zunächst gering. Erst mit Erreichen der minimalen Hauptspannung ergibt sich eine deutliche Zunahme, wobei diese offenbar unabhängig von der wirkenden Druckeinspannung ist, d.h. σ_{min} . Somit ist nur der Differenzdruck (Δp) als $\Delta p = \sigma_{min} p_i$ von Bedeutung.
 - Bei der Veränderung der Permeabilität mit steigendem Druck können drei Bereiche unterschieden werden.
 - (1) Ausgehend von der spezifischen inhärenten Gesteinspermeabilität kommt es im Steinsalz mit Erhöhung des Gasdruckes zunächst zu einer moderaten Permeabilitätszunahme. Sie entspricht einer rein druckbedingten Aufweitung der vorhandenen primären Fließwege.
 - (2) Mit Annäherung des Gasdruckes (Δp = 0,5 1 MPa) an den Einspannungszustand setzt erhöhte Gasmigration ein, die in einem begrenzten Druckintervall zu einer deutlichen Permeabilitätszunahme (bis zu 5 Größenordnungen) bis auf ein Permeabilitätsniveau zwischen 10⁻¹⁶ und 10⁻¹⁸ m² führt. Die Zunahme der Permeabilität hängt in erster Linie von der Ausgangspermeabilität (k_{init}) ab, wobei dieser Effekt durch die Probenlithologie (Auflockerungszustand) und vermutlich auch von der Einspannung "verschmiert" sein kann. Ursächlich ist hier vermutlich die lokale Öffnung zusätzlicher Wegsamkeiten, insbesondere ausgehend von den Korngrenzen in grobkörnigen Bereichen, wo eine geringere Kornbindung vorliegt.
 - (3) Ausgehend von den neu generierten Fließwegen kommt es mit weiterer Gasdrucksteigerung nur noch zu einer geringen Permeabilitätszunahme, analog zu Abschnitt (1). Anzumerken ist, dass für die Realisierung von Überdrücken > 2 MPa extrem hohe Druckaufbauraten erforderlich waren (> 10 bar / s). Sie ließen sich praktisch nur als Druckstoßtests mittels Entspannung eines großen Gasvolumens realisieren.
 - 3. Mit einer Gasdruckreduzierung kehrt sich der Permeabilitätsverlauf um und ist nahezu reversibel. Somit unterscheiden sich die Effekte einer mechanisch induzierten Permeabilitätszunahme infolge dilatanter Verformung und die eines Gasfracs. Die hier zu beobachtende spontane Permeabilitätsabnahme resultiert vermutlich aus der elastisch bedingten Rissschließung durch den Einspanndruck, wie aus Mikrostrukturuntersuchungen gefolgert werden kann.

Auf Basis der Laboruntersuchungen ist ein auf dem Tangens Hyperbolicus basierender Ansatz abgeleitet worden, der den experimentellen Kurvenverlauf gut beschreibt (s. Beitrag Minkley & Popp).

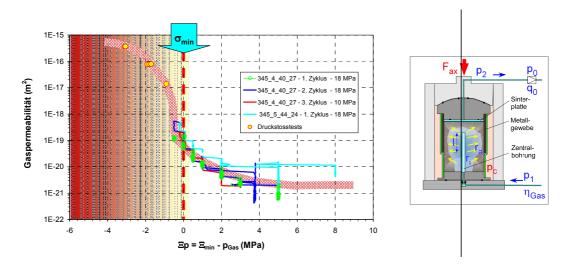


Abb. D.46 Laborexperiment Gasinjektion

Die Auswertung der Mikrostrukturgefüge nach Durchführung der Druckaufbautests zeigt charakteristische Unterschiede in Abhängigkeit des aufgebrachten Gasinjektionsdruckes. Bereits mit Erreichen der Minimaldruckeinspannung wurde jeweils eine deutliche Permeabilitätszunahme beobachtet, wobei Proben, die nur mit geringen Überdrücken (Δp < 1 MPa) beaufschlagt wurden, keinen Gasfrac zeigten. Die Gasdurchtrittszone entspricht nach den Probenbefunden vielmehr einer integral aufgelockerten Permeationszone infolge der Aufweitung von Korngrenzen im Sinne der Schaffung vieler Einzelmikrorisse (Abb. D.45 – Gefügebild rechts).

Im Gegensatz gibt es bei höheren Gasinjektionsrate (10 – 100 bar/s) eindeutige Belege für das Auftreten von gasdruck-induzierten Rissen, die transgranular über mehrere Zentimeter die Proben durchziehen können (Abb. D.45 – Gefügebild rechts).

4 Gasdruckaufbau im Salz – Feldexperiment und In-situ-Bedingungen

Der Effekt eines Druckanstieges im dichten Salzgebirge hängt primär von der vorhandenen Permeabilität im Salzgebirge sowie der Druckaufbaurate, aber auch von der entsprechenden Hohlraumgröße ab.

Anzumerken ist, dass Dichtheit von Steinsalz nach Einschätzung von Berest (z.B. Berest & Brouard, 2002) aufgrund von Erfahrungen der Gasspeicherung nicht bedeutet, dass die Permeabilität gleich 0 ist, sondern aufgrund der Größenordnung 10^{-20} - 10^{-22} m² extrem niedrig ist. In den Bohrlochinjektionstests wurden Permeabilitäten k < 10^{-23} m², d.h. sehr dichtes Steinsalz, nachgewiesen, was somit diesbezüglich repräsentativ ist.

Wirken jedoch mechanische Beanspruchungen im Salzgebirge, die zu Rissbildung und somit zu Dilatanz führen, nimmt die Gasdurchlässigkeit zu und über das gaswegsame Gefüge um einen Hohlraum wird sich eine gasdruckbeladene Zone ausbilden. Dieser Prozess kann initiiert werden durch:

- hohe mechanische Belastungen bei reduzierter Druckeinspannung (z.B. in der ALZ);
- wirkende Gasdrücke, welche die mechanische Druckeinspannung überschreiten.

Zur Bewertung der Gasdruckbelastbarkeit in Abhängigkeit von der Druckaufbaurate sowie Hohlraumgröße sind in Abb. D.47, Abb. D.48 und Abb. D.49 experimentelle Messwerte aus Labor- und Feldtests dargestellt. Die dargestellten Druckanstiegsraten weisen eine Bandbreite von 12 Größenordnungen auf: 10⁻⁹ bar/s bis 100 bar/s.

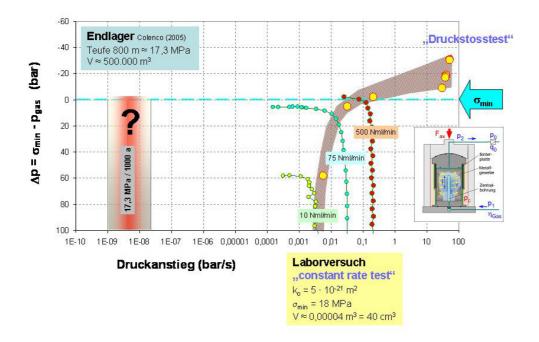


Abb. D.47 Laborversuche "constant rate test"

Als Referenzfall wird der angenommene Druckanstieg in den Einlagerungshohlräumen eines Endlagers im Salz mit einem Hohlraum von 500.000 m³ in 800 m Teufe betrachtet, wobei der Gasdruck in den Einlagerungsstrecken nach ca. 1000 Jahren den lithostatischen Druck von ~17,3 MPa erreicht (für Details s. Skrzyppek et al, 2005).

Die aus einem Druckaufbau in einem Hohlraum resultierenden Zustandsbedingungen werden zunächst in Abb. D.47 anhand der Messkurven von Gasinjektionstests an definiert eingespannten Laborproben mit konstanten Injektionsraten illustriert. Die benutzte Versuchsanordnung mit Injektion in eine zentrische Sackbohrung mit radialer Strömungsgeometrie in der zylindrischen Probe simuliert einen kleinmaßstäblichen Bohrlochversuch.

Dargestellt sind die Ergebnisse eines Mehrstufeninjektionstests mit drei Stufen unterschiedlicher Injektionsrate zwischen 10 ml/min – 75 ml/min - 250 ml/min. Danach nimmt in der Probe bzw. in der Bohrung der Gasdruck entsprechend des Boyle-Mariotte'schen Gasgesetzes (p \cdot V = const.) kontinuierlich mit Druckaufbauraten in der Größenordnung 0,01 bar/s zu.

Im zeitlichen Verlauf der Gasinjektion ergibt sich abhängig von der anfänglichen Druckaufbaurate jeweils als Folge der mit zunehmendem Druck effizienter werdenden Abströmprozesse ein druckabhängiges Gleichgewicht zwischen der ins Bohrloch einund ausströmenden Gasmenge ein. In den weiteren Darstellungen werden jeweils die im Endzustand erreichten Gleichgewichtsdrücke bezogen auf die initiale Injektionsrate betrachtet.

Erreicht der Druck im Hohlraum die minimale Gebirgsspannung σ_{min} – hier gegeben durch den Manteldruck -, bleibt der Gasdruck über eine Spannweite von bis zu 4 Größenordnungen höhere Druckaufbauraten konstant und nimmt erst, wenn die der Druckaufbau die somit erhöhte Gasaufnahmefähigkeit übersteigt, wieder zu. Nach dem experimentellen Befund kommt es bei Überdrücken von $|\Delta p| \approx 2 - 4$ MPa zu pneumatisch induzierten Fracrissen.

Diese Ergebnisse werden analog auch in der Auswertung der Bohrlochtests bestätigt, wobei zunächst angenommen wird, dass die in den Pulstests beobachteten quasistationären Druckabfallraten aus einem kontinuierlichem Abströmprozess von Gas ins Salzgebirge resultieren, weshalb für einen Gleichgewichtzustand eine Gasinjektion mindestens mit der gleichen Rate erforderlich wäre.

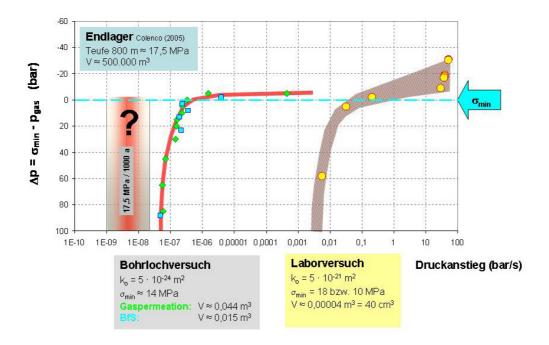


Abb. D.48 Endlager, Laborversuch und Bohrlochversuch

Werden die so bestimmten Gleichgewichtsinjektionsraten und –drücke analog zu vorher dargestellt (Abb. D.48), zeigt sich für beide Bohrlochtests anfänglich in einem engen Druckanstiegsratenintervall in der Größenordnung von 10^{-7} bar/s ein schneller Druckanstieg bis in den Bereich der minimal wirkenden Druckeinspannung. Danach ändert sich die Charakteristik der Druckentwicklung. Qualitativ verschiebt sich der Kurvenverlauf horizontal, leicht ansteigend im Bereich der minimalen Hauptspannung. Ursache ist die Ausbildung einer Sekundärpermeabilität im Bereich der Minimalspannung (d.h. $\Delta p \approx 0$), womit zur Realisierung einer weiteren Druckerhöhung die Druckanstiegsraten um mehrere Größenordnungen erhöht werden müssen, analog zu den Ergebnissen der vorab diskutierten Laborversuche.

Geht man von einer Sekundärpermeabilität mit einer Zunahme um bis zu 4 Dekaden aus, würde es nach unser Einspannung frühestens bei einer Druckratenerhöhung um mindestens vier Größenordnungen zu einer Überschreitung des Aufnahmevermögens des Gebirges kommen, d.h. der Gasdruck müsste wieder zunehmen. Nach Einschätzung des IfG waren die bei den Bohrlochtests simulierten Druckaufbauraten aber noch nicht ausreichend, eine gasdruck-induzierte Schädigung, d.h. Rissbildung, hervorzurufen.

Am BfS-Standort wurde experimentell mit Konstant-Raten-Tests mit Druckanstiegsraten in der Größenordnung von 1 mbar/s ein Überdruck von 15 bar realisiert, wobei es

nach Ausweis des hoch-sensitiven AE-Monitorings aber keinen Hinweis auf Rissbildung gab.

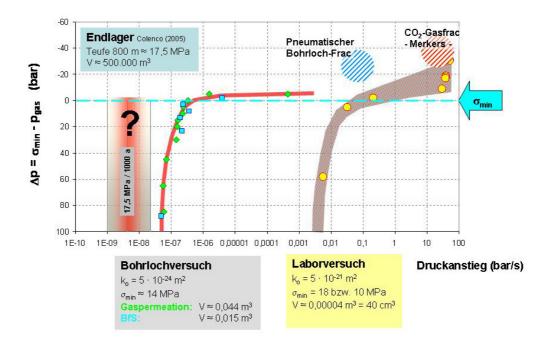


Abb. D.49 Endlager, Laborversuch und Bohrlochversuch

Unabhängig davon ist bedeutungsvoll, dass nur im Laborexperiment bei sehr großen Druckaufbauraten in der Größenordnung von 10-100 bar/s mit resultierenden Überdrücke in der Größenordnung von > 20-40 bar, gasdruck-induzierte Schädigung, d.h. ein Gasfrac beobachtet wurde (vgl. Abb. D.49). Ein notwendiger Überdruck Δp von mindestens 2-4 MPa zur Initiierung eines Gasfracs wird auch durch die Ergebnisse von pneumatischen Gasfracs, die z.B. von UGS Mittenwalde durchgeführt werden (s. Schreiner et al., 2004) sowie die Interpretation des Gasfracanalogons Merkers (s. Beitrag Minkley & Popp) belegt.

Die Tatsache, dass sich die Ergebnisse der Bohrlochtests und kleinmaßstäblichen Laborversuche in den zum Erreichen der wirkenden Druckeinspannung entsprechend des Skalierungsfaktors um mehrere Größenordnungen unterscheiden, weist auf den Einfluss der Hohlraumgröße hin: Je größer ein Hohlraum, desto dichter ist er. Dieser Skaleneffekt ergibt sich aus dem mit steigendem Volumen ungünstigerem Verhältnis von Abströmfläche zum Hohlraumvolumen, der mit zunehmender Gasausbreitung in der Kontur zu einem abnehmenden Druckgradienten führt, d.h. das System ist relativ steifer.

5 Zusammenfassende Bewertung

Mit den durchgeführten Untersuchungen konnten wichtige Erkenntnisse zum Verhalten von Steinsalz bei Gasdruckbelastung gewonnen werden. Erstmals konnte dabei an zwei Versuchsorten im Bergwerk Bernburg das Phänomen eines "Gasfracs" in einem größeren Maßstab für ein unverritztes Salzgebirge quasi online verfolgt werden.

Herausragendes Ergebnis ist, dass es bei der Simulation eines Gasdruckanstieges im Bohrloch nicht zu einem Gasfrac kam, sondern die Entwicklung einer Sekundärpermeabilität nachgewiesen wurde, die nach Erreichen der kleinsten Gebirgsspannung einen weiteren Anstieg des Gasdruckes begrenzt. Aufgrund der beobachteten Zunahme der Gasdurchlässigkeit um mehrere Größenordnungen kommt es zu einem Abströmen von Gas ins Gebirge. Nur wenn eine Gasbildung die daraus resultierende höhere Gasaufnahmefähigkeit übersteigt, könnte sich ein Gasüberdruck entwickeln, der bei Überdrücken von > 2 – 4 MPa zu einer rupturellen Beanspruchung des Gebirges führen würde.

Als Gastransportmechanismus dominiert im trockenen Salzgebirge der Einphasenfluss von Gas, wobei es mit Annäherung des Gasdruckes an die kleinste Gebirgsspannung zu einer druckbedingten weitgehend elastischen Aufweitung bereits bestehender Fliesswege über Korngrenzen, insbesondere im Bereich so genannter "Flaschenhälse" kommt. Dies wird vor allem durch die Reversibilität der Permeabilitäts-Gasdruckbeziehung mit Wiederherstellung der vorhergehenden Dichtheit nach einer erfolgten Druckentlastung belegt. Bezüglich der auftretenden Sekundärpermeabilität ist zu berücksichtigen, dass aus gesteinsmechanischer Sicht die Schaffung einer zusätzlicher Porosität im dichten Gebirgsverband als Erklärungsansatz für eine gasdruckbedingte Zunahme der Gasausbreitung im Salzgebirge nicht einfach möglich ist, obwohl dieser Mechanismus und insbesondere der Begriff "Sekundär-Porosität" spätestens seit dem Workshop des BfS, 28. / 29. September 2005, Gegenstand kontroverser Diskussion ist.

Unabhängig davon ist bedeutungsvoll, dass das Abströmen von Gas aus dem geschädigten Gesteinsbereich in den ungeschädigten Einschlussbereich des Wirtsgesteins eine Permeabilität voraussetzt, die entscheidend von der Differenz Gasdruck \Leftrightarrow minimale Hauptspannung abhängt. Dieser Prozess wurde in den Labor- und Feldtests über die Applikation definierter Gasinjektionsraten analog zu einer konstanten Gasbildungsrate simuliert. Dabei stellte sich jeweils ein Gleichgewichtsdruck ein, d.h. Gaszutrittsra-

te und Abströmrate waren gleich. Dieser Gleichgewichtszustand blieb auch nach Erreichen der Minimalspannung durch den Gasdruck infolge der Entwicklung der druckinduzierten Sekundärpermeabilität erhalten, so dass der Druck trotz der Erhöhung der Injektionsraten um mehrere Größenordnungen annähernd konstant blieb.

Die Auswertung der experimentellen Untersuchungen im Labor- und Feldmaßstab sowie der Vergleich mit vereinfachenden Simulationsrechnungen eines hypothetischen Gasvolumens von ca. 500.000 m³ in Abhängigkeit von verschieden Druckaufbauraten (hier nicht dargestellt) belegt, dass das Strömungsverhalten um einen Hohlraum wesentlich von dem Verhältnis von nutzbarer Abströmfläche zu Hohlraumvolumen bestimmt wird und somit Skaleneffekte zu berücksichtigen sind. Unabhängig davon wird davon ausgegangen, dass es bei den in einem Endlager prognostizierten Druckbildungsraten infolge der Ausbildung einer Sekundärpermeabilität nicht zu einem kritischen Fracdruck kommt.

Aus dem mit steigendem Druck veränderten Gastransportverhalten und der verbesserten Gasaufnahmefähigkeit des Salzgebirges um einen Hohlraum hat somit eine konzeptionelle Neubewertung der Situation "Gase in einem Endlager in einer Salzformation" zu erfolgen, wobei nach Einschätzung des IfG ein lokal begrenzter Gasaustritt über das Salzgebirge möglich ist, mit nachfolgender Selbstabdichtung bei abnehmendem Druck.

Forschungsbedarf

Ein fundiertes Verständnis der sich aus einer möglichen Gasentwicklung ergebenden Konsequenzen für die Gesamtintegrität des Barrierengesteins, egal ob Salz- oder Tongestein hat unmittelbare Auswirkung auf die Planung technischer Konzepte für eine Endlagerung radioaktiver Abfälle, d.h.

- Beeinflussung der Gasbildungsprozesse durch technische Maßnahmen (z.B. durch Abfallkonditionierung)
- Schaffung von "Sammelhohlräumen" für Gasspeicherung.

Lässt sich aufbauend auf die hier erhaltenen Erkenntnisse nachweisen, dass diese Maßnahmen nicht nötig sind, ergeben sich Vorteile sowohl unter Aspekten der Sicherheit wie auch der Kosten-Nutzen-Relation.

Als Basis einer hierfür erforderlichen Bestimmung des zeitabhängigen Schadstoffaustrages für eine Bandbreite möglicher Quellterme mittels Modellrechnungen sind insbesondere noch die Reichweite und der Mechanismus der Gasausbreitungsprozesse zuverlässiger aufzuklären. Hierfür sind aus Sicht des IfG zwei Schwerpunkte denkbar:

- (1) Für eine Kalibrierung der Rechenmodelle ist ein Demonstrationsversuch mit einer günstigeren Maßstäblichkeit zur realen Endlagersituation durchzuführen, bei dem die Auswirkung eines Druckaufbaus in einem untertägigen Hohlraum realistisch simuliert werden kann. Dabei ist schwerpunktmäßig nachzuweisen,
 - dass sich während einer simulierten Freisetzung von Gas mittels kontinuierlicher Gasinjektion auch in einem größeren Hohlraumvolumen ein Gleichgewichtszustand einstellt. Über ein zielgerichtetes Messprogramm können gleichzeitig die resultierende Hohlraumbelastung (z.B. druckbedingte Konvergenz) und die diskreten Fliesswege für eine Gasausbreitung im Salzgebirge bestimmt werden. Die dabei erhaltenen Messparameter dienen als Basis für Modellrechnungen zur Bestimmung der integralen Permeabilität eines potentiellen Einlagerungsbereichen, unabhängig von Skaleneffekten, sowie unter Einbeziehung geologischer Inhomogenitäten.
- (2) Die Auffahrung eines Bergwerkes in einer Salzstruktur für eine Einlagerung radioaktiver Abfälle sowie die sich aus der Deponierung ergebenden Folgeprozesse, d.h. ein möglicher Druckaufbau infolge Gasbildung, stellen einen erheblichen Eingriff in den vorhandenen natürlichen Gleichgewichtszustand des Gebirges dar. Für die Prognose der Langzeitentwicklung, d.h. der Barrierenintegrität im Umfeld eines Endlagers, ist die möglichst genaue Kenntnis der geowissenschaftlichen Rahmenbedingungen unbedingte Voraussetzung. Das sind:
 - der geologische Strukturaufbau,
 - das Festigkeits- und Verformungsverhalten der den Einlagerungsraum umgebenden Gesteine
 - der mechanische Spannungszustand.

In einer ersten Näherung wird für gebirgsmechanische Modellrechnungen davon ausgegangen, dass sich in einer Salzlagerstätte insbesondere aufgrund der plastischen Eigenschaften der Salzgesteine infolge von Kriechprozessen ein isostatischer Grund-

spannungszustand in Abhängigkeit von der wirkenden Auflast des überlagernden Gebirges einstellt.

Übertägige Bohrlochmessungen an verschiedenen Salzstrukturen Norddeutschlands, die u.a. für Gasspeicherung in Kavernen genutzt werden, zeigen aber, dass die Annahme lithostatischer Druckverhältnisse nicht pauschal gültig ist, was auch durch großräumige Modellrechnungen der zeitlichen Strukturentwicklung belegt wird (z.B. Schreiner et al., 2004). Analog dazu belegen untertägige Hydrofracmessungen, die das IfG an verschiedenen Standorten in für die Salzgewinnung genutzten Salzbergwerken Norddeutschlands durchgeführt hat, dass die wirkende Druckeinspannung gegenüber dem lithostatischen Druck reduziert sein kann. Die wirkenden Spannungsverhältnisse müssen deshalb standortspezifisch überprüft bzw. die vereinfachten Annahmen generell bestätigt werden.

6 Literatur

- Häfner, F., Belohlavek, K.-U., Behr, A., Förster, S. & Pohl, A., 2001. Abschlußbericht zum BMBW- Forschungsvorhaben "In situ Ermittlung von Strömungskennwerten natürlicher Salzgesteine in Auflockerungszonen gegenüber Gas und Salzlösungen unter gegebenen Spannungsbedingungen im Gebirge", TU Bergakademie Freiberg, Institut für Bohrtechnik Fluidbergbau.
- IfG, 2007. Popp, T. Wiedemann, M., Böhnel, Minkley, W. & Manthei, G.. Untersuchungen zur Barriereintegrität im Hinblick auf das Ein-Endlager-Konzept. Vorhaben: SR 2470 Bundesamt für Strahlenschutz, Abschlussbericht.
- Kansy, A. & Popp, T., 2006. Modellentwicklung zur Gaspermeation aus unterirdischen Hohlräumen im Salzgebirge. BMBF-Vorhaben 02 C 0952. Vortrag 7. Projektstatusgespräch zu BMBF/BMWi-geförderten FuE-Vorhaben auf dem Gebiet der Entsorgung gefährlicher Abfälle in tiefen geologischen Formationen, Projektträger Forschungszentrum Karlsruhe, Wassertechnologie und Entsorgung am 03. 04.05.2006 in Karlsruhe.
- Manthei, G., Eisenblätter, J. & Spiess, T., 2000. Acoustic emission in rock mechanics studies.- In: Acoustic Emission Beyond the Millenium: 127-144, Eds. Kishi, T., Ohtsu, M., Yuyama, S., ISBN 0-08-043851-2. Elsevier; Oxford.

- Popp, T., Wiedemann, M., Kansy, A. & Pusch, G., 2007. Gas transport in dry rock salt

 implications from laboratory investigations and field studies. In: M. Wallner, K.H. Lux, W. Minkley & H. R. Hardy. The Mechanical Behaviour of Salt

 Understanding of THMC Processes in Salt: 6th Conference (SaltMech6),

 Hannover, Germany, 22–25 May 2007. Taylor and Francis, 17 26.
- Rsk, 2005. Reaktor-Sicherheitskommission-Stellungnahme "Gase im Endlager" vom 27.01.2005 (379. Sitzung).
- Schreiner, W., Jäpel, G. & Popp, T., 2004. Pneumatic fracture tests and numerical modelling for evaluation of the maximum gas pressure capacity and the effective stress conditions in the leaching horizon of storage caverns in salt diapirs. Solution Mining Research Institute, Fall 2005 Technical Meeting.

 Berlin / Germany; October 3 6 / 2004.
- Skrzyppek, J., Mayer, G., Wilhelm, S., Niemeyer, M., Folle, S., Rolfs, O. & Suter, D., 2005. Untersuchung der Gasbildungsmechanismen in einem Endlager für radioaktive Abfälle und der damit verbundenen Auswirkungen auf die Führung des Nachweises der Endlagersicherheit. Colenco Power Engineering, Bericht (erstellt im Auftrag des BfS, Stand 31.05.2005), Colenco Bericht 3161/28, 102 S., Baden (CH).Physikalische Modellierung und rechnerische Simulation einer Fluidinfiltration in das primär impermeable Salzgebirge (K.-H. Lux)

E Gase im Endlager und fluidgefüllte Salzkavernen – zwei unterschiedliche Sachverhalte, ein gleichartiger Prozess der Barrierenschädigung? (Karl-Heinz Lux)

Die Gasbildung in einem Endlager kann verschiedene Ursachen haben – zu nennen sind hier vornehmlich die biochemische Zersetzung von organischen Abfällen und die Metallkorrosion, die Auswirkung in mechanischer Hinsicht ist die gleiche: eine Intensivierung des konvergenzbedingten Druckaufbaus in den Porenräumen des verschlossenen Endlagers.

Nachweis der Langzeitsicherheit / Methodischer Ansatz

Voraussetzung: Standsicherheit / Dichtheit in der Betriebsphase Ausgangssituation: mit Abfällen / Versatz verfülltes und verschlossenes Bergwerk

Endlager-System

= Gebirge + Bergwerk / Grubenbaue + Abfall / Versatz → Systemverhalten?

Prognose des langzeitigen Endlagersystemverhaltens

Systementwicklungen mit großer Wahrscheinlichkeit

Nachweisziel vollständiger Einschluss

Systementwicklungen mit geringer Wahrscheinlichkeit

Nachweisziel Nachweisziel Einhaltung Umweltverträglichkeit

Abb. E.50 Prinzip der Nachweisführung beim Langzeitsicherheitsnachweis

Dabei stellt sich dann die Frage, welche Fluiddrücke extremal erreicht werden, ob diese Drücke die Fluiddruckbelastbarkeit des Salinargebirges überschreiten und wenn ja, in welcher Weise die Fluide in das Salinargebirge eindringen und sich dort ausbreiten und welche Folgen dieser Prozess der Fluidinfiltration für die Integrität der geologischen Barriere(n) und damit für die Langzeitsicherheit des Endlagers hat. Dabei sind dann nicht nur die hydraulisch-mechanischen Prozesse der Ausbildung von Sekundärwegsamkeiten zu betrachten, sondern auch die Freisetzung von Radionukliden.

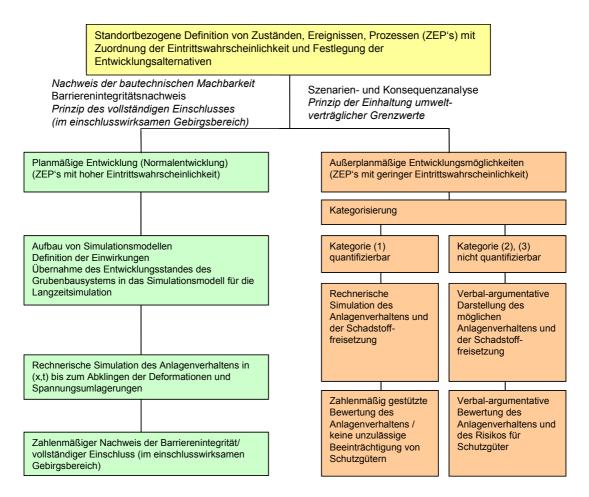


Abb. E.51 Prinzip der Nachweisführung beim Langzeitsicherheitsnachweis

Grundsätzlich gilt das Isolationsprinzip, d.h. der vollständige und dauerhafte Einschluss der Abfälle im geologischen Untergrund. Die Bilder Abb. E.50 und Abb. E.51 zeigen den daraus folgenden methodischen Ansatz für den standortbezogen zu erarbeitenden Langzeitsicherheitsnachweis. Danach ist zunächst für Endlagersystementwicklungen, die mit hoher Wahrscheinlichkeit zu erwarten sind, der vollständige, dauerhafte und sichere Einschluss der Abfälle im Salinargebirge nachzuweisen. Für Endlagersystementwicklungen, die eine nur geringe Eintrittswahrscheinlichkeit haben, aber nicht auszuschließen sind, ist im Fall der Freisetzung von Radionukliden und anderen umweltgefährdenden Stoffen deren Umweltverträglichkeit nachzuweisen. Dazu müssen aber dann als Grundlage für nunmehr erforderliche Stofftransportsimulationen die möglichen Ausbreitungspfade und ihre Transporteigenschaften bekannt sein.

Ohne hier zu diskutieren, ob eine Gasbildung den Endlagersystementwicklungen mit hoher oder geringer Eintrittswahrscheinlichkeit zuzuordnen ist, erfordert eine rechnerische Analyse dieses Phänomens und seiner Folgewirkungen ein Verständnis der Prozesse bei Druckaufbau und bei bzw. nach Erreichen / Überschreiten der Gasdruckbelastbarkeit des Gebirges.

Grundsätzlich scheint die Situation der Gasbildung im verschlossenen Endlager mit dem Druckaufbau und seinen Folgewirkungen ähnlich zu sein zu der Situation des konvergenzbedingten Druckaufbaus in einer verschlossenen solegefüllten Kaverne im Salinargebirge. In diesem Fall geht es um die Frage, ob eine verschlossene solegefüllte Salzkaverne grundsätzlich langfristig dicht bleibt oder ob und unter welchen Randbedingungen der konvergenzbedingte Soledruckaufbau zu einem wie auch immer gearteten Aufreißen des Gebirges führen kann, sodass dann langfristig von einer nicht dichten Kaverne bzw. genauer einem nicht dichten Gebirge im Umgebungsbereich der Kaverne auszugehen ist. Damit ergibt sich dann auch die Frage, wie dieser hydraulische Versagensprozess abläuft und ob Möglichkeiten bestehen, den Versagensprozess in seiner Entwicklung zu beschreiben und die im Lauf der Zeit freigesetzten Solemengen zu quantifizieren.

Hier wie dort besteht damit die Aufgabe, den jeweiligen Druckaufbauprozess in seiner Zeitabhängigkeit zu beschreiben und die Prozesse zu verstehen, die dann induziert werden, wenn der Fluiddruck die Fluiddruckbelastbarkeitsgrenze des Gebirges erreicht und konvergenzbedingt auch nach dem ersten Eindringen von Fluid in die abdichtenden Gebirgsschichten das Druckniveau weiter erhalten bleibt bzw. sich wieder aufbaut, sodass sich die Infiltrationsprozesse fortsetzen können. Erreicht die Infiltrationsfront eine wasserführende Gebirgsformation außerhalb des Salinargebirges, dann ist auch bei primär impermeablem Gebirge sekundär eine hydraulische Verbindung entstanden zwischen dem untertägigen Hohlraum, in diesem Fall der solegefüllten Kaverne, und dem Gebirge außerhalb der abdichtenden Gebirgsformation. Ob diese hydraulische Verbindung einen nur temporären Charakter hat und sich die sekundär fluiddruck-induziert ausgebildeten Wegsamkeiten wieder verschließen, wenn das Fluiddruckniveau endgültig abfällt und damit keine wässrigen Lösungen von außen in die Salinarbarriere eindringen können, mit anderen Worten die Salinarbarriere als sekundär temporär semipermeabel anzusprechen ist, muss noch geklärt werden.

Abgesehen davon, dass es sich im Fall der Endlagerung um gasförmige Fluide, im Fall der verschlossenen Kaverne um Sole handelt, sind das betroffene Geosystem und die zu beantwortenden zentralen Fragestellungen gleich:

- Wie groß ist die Fluiddruckbelastbarkeit des primär unter Gebirgsdruckwirkung als flüssigkeits- und gasdicht angesehen Salinargebirges, hier von Steinsalz?
- Wie verläuft der Prozess des Versagens bei Erreichen der Fluiddruckbelastbarkeit bei einem im Vergleich zu der Situation des Hydraulic-Fracturing sehr langsamen Druckaufbau?
- Kann der Gebirgsbereich mit dem eindringenden Fluid und der sich ausbildenden Sekundärporosität / Sekundärpermeabilität räumlich-zeitlich quantifiziert werden?
- Können die Sekundärporosität und die Sekundärpermeabilität dieser Infiltrationszone quantifiziert werden?
- Kann der Volumenstrom durch die sekundär induzierte Infiltrationszone quantifiziert werden?

Grundsätzlich wird in einer Arbeitshypothese postuliert, dass unabhängig von der Art des Fluides (Gas oder Flüssigkeit) qualitativ gleichartige Prozesse in der Salinarbarriere ablaufen, wenn das Niveau der Gasdruckbelastbarkeit des Gesteins im jeweiligen Gebirgsspannungsfeld erreicht bzw. überschritten wird. Damit können die Erkenntnisse zum Tragverhalten verschlossener solegefüllter Salzkavernen und zu seiner physikalischen Modellierung und numerischen Simulation übertragen werden auch auf den Fall der Gasbildung im Endlager mit seinen hydraulisch-mechanischen Folgewirkungen. Da für diese Simulation mit Gas als Fluid noch keine Untersuchungsergebnisse vorliegen, werden nachfolgend das Simulationsinstrumentarium und prinzipielle Erkenntnisse aus physikalischer Modellierung und numerischer Simulation am Beispiel einer verschlossenen solegefüllten Salzkaverne vorgestellt.

7 Tragverhalten verschlossener solegefüllter Kavernen

Das Tragverhalten von Kavernen im Salzgebirge zur Mineralgewinnung (solution mining) oder zur Energiespeicherung (crude oil or natural gas) ist seit Jahrzehnten Gegenstand wissenschaftlicher Forschung. Dabei standen bislang die Sicherheitsnachweise für Bau- und Betrieb der Kavernen im Vordergrund der Forschung. Etwa Anfang der achtziger Jahre hat sich dann auch die Frage gestellt, wie mit den Salzkavernen nach Einstellung des Solbetriebs bei Erreichen der zulässigen Endkonfiguration (Sole-

gewinnung) oder nach Einstellung des Speicherbetriebes (Erdöl- / Erdgasspeicherung) zu verfahren ist. Der Diskussionsstand ist etwa wie folgt zu sehen:

- Die Verfüllung mit granularen Feststoffen wie Sand oder Kies wird aus Ressourcenschonungs- und Kostengründen nur als ultima ratio angesehen.
- Die Verwendung von bergbaufremden (mineralischen) Abfällen zur Stabilisierung der Hohlräume stößt bislang auf wenig Begeisterung in der Öffentlichkeit (jüngstes Beispiel: geplante Abfallentsorgungskavernen in Stade).
- Bei einer solegefüllten Kaverne mit offenem Bohrloch ist infolge der Gebirgskonvergenz längerfristig ein Auspressen der Sole in das (Tiefen-)Grundwasser (perforiertes Bohrloch im Bereich der versalzenen Grundwasserleiter) sowie der Ausbildung von Gebirgsdeformationen und Setzungen an der Tagesoberfläche zu erwarten.
- Bei einer luftgefüllten Kaverne mit offenem Bohrloch und damit ohne nennenswerten Stützdruck (= Atmosphärendruck) ist insbesondere bei größeren Teufenlagen bereits mittel- bis kurzfristig von progressiv in das Gebirge sich ausbreitenden Konturabschalungen in der Kaverne mit einer Schwächung der Tragelemente (Hangendschwebe, Salzfesten) auszugehen, die begleitend zu dem Selbstversatz zu inakzeptablen Senkungen an der Tagesoberfläche, in besonderen Situationen auch zu Tagesbrüchen führen könnten (instabiles Tragsystem).

Für die Stilllegung stehen demnach mehrere Optionen zur Verfügung; die am meisten nicht zuletzt aus wirtschaftlichen Gründen präferierte ist die solegefüllte Kaverne mit Bohrlochverschluss. Damit ist für das Abschlussbetriebsplanverfahren zu klären, wie sich eine verschlossene solegefüllte Kaverne langfristig verhält, z.B. bezüglich Druckaufbau infolge Gebirgskonvergenz oder hinsichtlich Fluiddruckbelastbarkeit des Salzgebirges. Extreme Annahmen gehen dabei unter Einbeziehung eines viskosen Materialverhaltens des Salzgebirges und eines impermeablen Gebirges von einem Fluidüberdruck Δp_{ii} im Dachbereich der Kaverne aus, der sich aus der Beziehung

$$\Delta p_{ii} = (\gamma_G - \gamma_S) \cdot h_{Kav} \tag{1}$$

ergibt mit

 γ_G = Gebirgswichte im Bereich der Kaverne,

 γ_{S} = Wichte der Sole,

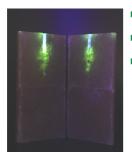
 h_{Kav} = Höhe der Kaverne

sowie von einem instantanen Aufreißen des Gebirges in Form von Macrofracs nach Überwindung der so genannten hydraulischen Zugfestigkeit (Hydraulic-Fracturing), z.B. Gloria & Costinescu (1978) und Langer et al.(1984).

Austritt von Fluiden aus verschlossenen untertägigen Hohlräumen im Salinargebirge

Hypothese: Steinsalz im unverritzten Zustand ist unter primären Gebirgsspannungen flüssigkeits- und gasdicht → Ansatz eines impermeablen Gebirges

Beispiel: verschlossene fluidgefüllte Salzkavernen



- mögliche Prozesse
- physikalische Modellierung
- numerische Simulation



Abb. E.52 Tragverhalten verschlossener solegefüllter Kavernen

Weniger extreme Annahmen gehen dagegen davon aus, dass das Gebirge bei (langsam) ansteigendem Fluiddruck bei Erreichen noch näher zu präzisierender mechanisch-hydraulischer Beanspruchungsbedingungen seine Dichtheit verliert, dass das hydraulische Versagen des Gebirges aber nicht durch instantane Makrorissbildung geprägt wird, sondern durch eine auf Mikrorissbildung beruhende allmähliche Soleinfiltration in das Gebirge erfolgt mit progressiver räumlicher Ausdehnung der Infiltrationszone im Gebirge im Lauf der Zeit (Lux et al., 1986, Naujoks, 1986, Düsterloh & Lux, 2004).

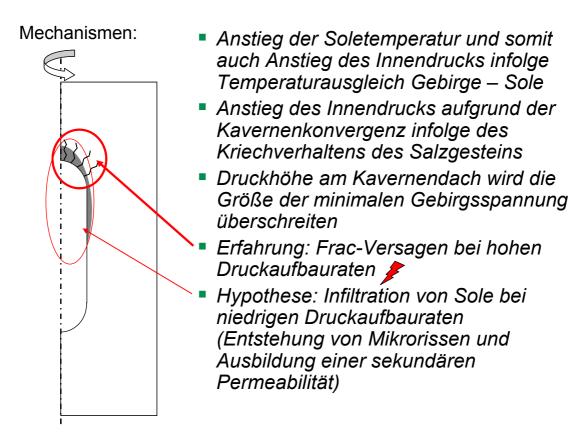


Abb. E.53 Tragverhalten verschlossener solegefüllter Kavernen

Mit diesem Ansatz und der Annahme eines impermeablen und eines keinem Fracversagen unterliegenden Gebirges ergibt sich für eine solegefüllte verschlossene Kaverne nach einiger Zeit ein stationärer Zustand zwischen konvergenten Gebirgsdeformationen im unteren Kavernenbereich und divergenten Gebirgsdeformationen im oberen Kavernenbereich bei einer integralen Konvergenzrate $\dot{K}\equiv 0$. Der Kaverneninnendruck entspricht in seinem Gradienten der Solewichte und in seinem Niveau in Kavernenmitte dem Gebirgsdruck. Daraus folgt im Kavernensohlbereich ein Soledruck unterhalb des primären Gebirgsdruckes, während im Kavernendachbereich der Soledruck größer wird als der primäre Gebirgsdruck, nicht aber das (Über-)Druckniveau aus Gl. (1) erreicht.

Abb. E.53 zeigt zur Illustration den allmählichen Druckanstieg in einer solegefüllten Kaverne mit dem durch die Solewichte vorgezeichneten und im Lauf der Zeit konstanten Innendruckprofil und dem rechnerisch für eine Standardkaverne ermittelten Endzustand (Lux et al, 1986), sowie den ohne diese rechnerische Analyse unter Einbeziehung der mechanisch-hydraulischen Wechselwirkungen zuvor eingeschätzten hydraulischen Endzustand entsprechend Gl. (1).

Grundsätzliches Verhalten / impermeables Salzgestein:

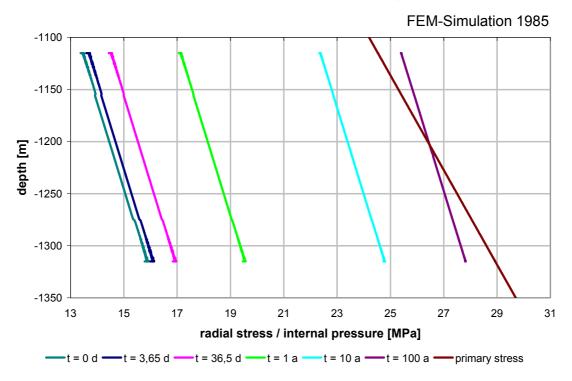


Abb. E.54 Tragverhalten verschlossener solegefüllter Kavernen

Nach bestehenden Erkenntnissen kann bei Sole als Druckfluid davon ausgegangen werden, dass bei geringen bis verschwindenden Druckaufbauraten das primär impermeable, d.h. unter Gebirgsdruck flüssigkeits- und gasdichte Steinsalzgebirge bei Erreichen eines Fluiddruckniveaus, das etwa der minimalen Gebirgsspannung entspricht, durch progressive Infiltration von Sole in sekundär ausgebildete Mikro-Wegsamkeiten seine Dichtheit verliert.









Abb. E.55 Prüfmaschinen

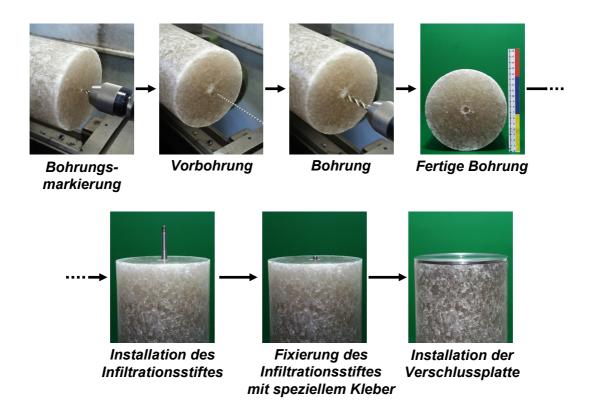


Abb. E.56 Probenherstellung

Zur Ermittlung des Infiltrationsverhaltens von Steinsalz sind laborative Untersuchungen an Prüfkörpern der Abmessungen $l/d=30/15\ cm$ in speziell für diese Versuche konstruierten Prüfanlagen durchgeführt worden. Die Abb. E.55 und Abb. E.56 zeigen die Prüfstände und den Ablauf der Probenherstellung. Das Versuchsprinzip besteht darin, die Prüfkörper triaxial zu beanspruchen und gleichzeitig überlagernd axial einen Flu-

iddruck aufzubringen, wobei der Fluiddruck als versuchstechnische Variable angesehen wird und sowohl unterhalb wie auch oberhalb der lateralen (minimalen) mechanischen Spannung liegt. Die Axialspannung ist in der Regel größer als der Fluiddruck. Aus dieser Versuchskonstellation folgt im Grundsatz (bei isotropem Gefüge) eine bezogen auf den Prüfkörper axialgerichtete Ausbreitung der Infiltrationsfront. Die Fluidinfiltration erfolgt über künstlich angebrachte Schlitze oder Bohrungen von einigen cm Länge, um eine Gefügeimperfektion an der fluiddruckbelasteten Gesteinsoberfläche zu simulieren. Gemessen werden während des Versuches die mechanischen Spannungen Axialdruck σ_1 und Lateraldruck $\sigma_{2,3}$ ($\equiv \min \sigma$) sowie der Fluiddruck p_{Fl} . Im Fall der Infiltration wird der Fluiddruck p_{Fl} durch Zuführung von Druckflüssigkeit konstant gehalten. Gemessen wird auch das dazu erforderliche Fluidvolumen $V_{\rm inf}$, das dem Infiltrationsvolumen entspricht. Das Versuchsende ist erreicht nach Ablauf einer vorgegebenen Versuchs- bzw. Infiltrationszeit oder nach Durchbruch des Fluids und Erreichen einer etwa stationären Strömung. Nach Versuchsende wird der Prüfkörper aufgeschnitten. Da dem Druckfluid ein Tracer zugegeben wurde, können die infiltrierten Zonen unter UV-Licht entsprechend Abb. E.57 visualisiert werden.



Abb. E.57 Einige Versuchsergebnisse

Repräsentative Messdaten eines Infiltrationsversuches sind in Abb. E.58 dargestellt. Aufgetragen sind die konstant gehaltenen mechanischen und hydraulischen Drücke sowie das zur Aufrechterhaltung eines konstanten Fluiddruckes verbrauchte und in den Prüfkörper injizierte Fluidvolumen. Dieses Fluidvolumen entspricht damit dem Volumen der in den Prüfkörper infiltrierten Flüssigkeit, ist also gleich dem Infiltrationsvolumen.

Aufzeichnung der druckgeregelten Infiltration - p_{FI} = 3.5 MPa - min σ = 2 MPa - max σ = 4 MPa

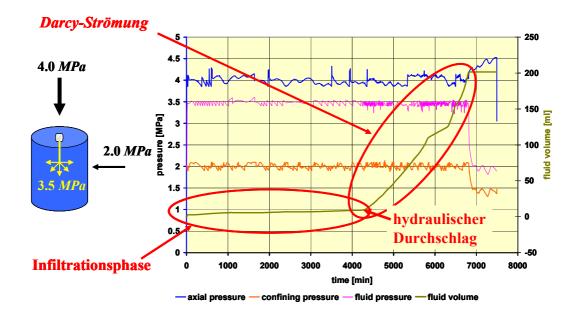


Abb. E.58 Messdaten eines Infiltrationsversuchs

Es zeigt sich, dass im zeitlichen Verlauf des Injektions- bzw. Infiltrationsvolumens zwei Bereiche zu unterschieden sind, die ausgezeichnet sind durch eine jeweils etwa konstante, aber sehr unterschiedliche Infiltrations- (= Injektions-)rate. In der Interpretation wird der erste Teil der Kurve mit der signifikant geringeren Rate mit dem eigentlichen Infiltrationsprozess in Beziehung gesetzt: angetrieben durch den konstant gehaltenen Druck schafft sich das Fluid bei hinreichend großem Druckniveau im Vergleich zu der lateralen mechanischen (Minimal)Spannung im Kristallkorngefüge intergranulare Wegsamkeiten, in die es eindringt und von denen ausgehend es dann weiter vordringt. Dadurch entsteht ein vernetztes Mikrorissgefüge mit der Hauptausbreitungsrichtung in Richtung der größeren Hauptspannung bei gleichzeitiger, in der Intensität allerdings untergeordneter lateraler Ausdehnung. Diese Versuchsphase wird als Infiltrationsphase bezeichnet.

Die Infiltrationsphase endet relativ abrupt – in den Messdaten erkennbar an der zu einem gewissen Zeitpunkt fast instantan signifikant ansteigenden Injektionsrate. In der Interpretation wird dieser Zeitpunkt gleichgesetzt mit dem hydraulischen Durchschlag des Fluids und der Schaffung einer hydraulischen Verbindung zwischen zwei Reservoiren mit unterschiedlichen Fluiddrücken. Der zweite Teil der Messkurve mit der höheren

Injektionsrate wird in Konsequenz als *Darcy*-Strömungsprozess gedeutet. Strömungswege sind die zuvor durch den Infiltrationsprozess sekundär geschaffenen Wegsamkeiten. Da dieser Strömungsprozess unter sonst konstanten Bedingungen mit im Grundsatz konstanter Rate bezüglich des Volumenstroms erfolgt, kann davon ausgegangen werden, dass in dieser Zeit unter den allerdings entsprechend dem hydraulischen Potentialfeld veränderten Porendruckbedingungen keine neuen Wegsamkeiten mehr geschaffen werden.

Druckabhängige Darstellung der mittleren Infiltrationsgeschwindigkeit $\overline{\mathcal{V}}_{\mathrm{inf}}$

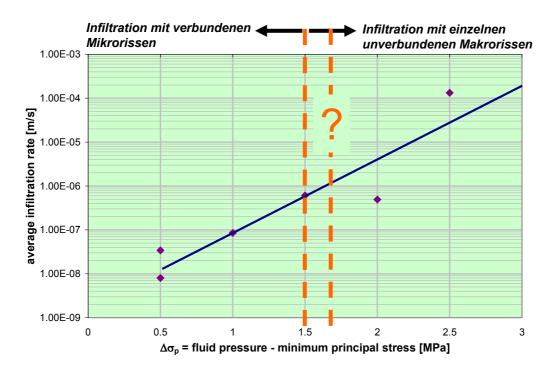


Abb. E.59 Mittlere Infiltrationsrate in Abhängigkeit vom Differenzdruck

Werden der Infiltrationsweg und die Zeit bis zum Durchschlag bei integralmakroskopischer Betrachtungsweise miteinander verknüpft, dann kann daraus eine mittlere Infiltrationsrate abgeleitet werden. Abb. E.59 zeigt hier für mehrere Versuche mit unterschiedlicher Konstellation Minimalspannung und Fluiddruck, zusammengefasst in dem Differenzdruck $\Delta\sigma_p = p_{Fl} - min\,\sigma$ (Druckspannung bzw. Fluiddruck mit jeweils positiven Vorzeichen), die ermittelten mittleren Infiltrationsraten.

Der Versagensprozess und der Versagensbeginn sind dabei untergeordnet von der Salzqualität abhängig, sondern werden vielmehr dominiert vom Beanspruchungszustand und von der Fluiddruckerhöhungsrate \dot{p}_{Fl} . Es zeigt sich, dass in der Tendenz für

 $0~MPa < \Delta\sigma_p < 1,5-2~MPa~$ zunächst eine Infiltration des Fluids (in den ersten Versuchen ein Tracerfluid) in das Steinsalzgefüge des Prüfkörpers zu beobachten ist. Dabei ist die Intensität der Infiltration abhängig von der Größe von $\Delta\sigma_p$. Bei Zunahme der Druckdifferenz $\Delta\sigma_p$ auf Zahlenwerte von $\Delta\sigma_p > 1,5-2~MPa~$ wird dann allerdings keine allmähliche mikrorissbasierte Infiltration mehr beobachtet, sondern die eher spontane Ausbildung von Makrorissen. Ebenfalls in der Tendenz und damit zunächst als Hypothese formulierbar ist bei größeren Druckaufbauraten ein instantan geprägtes Makroriss-Versagen nach Überschreiten der so genannten hydraulischen Zugfestigkeit zu beobachten, während bei sehr geringen Druckaufbauraten eine Infiltration von Sole in das Salzgestein auf induzierten Mikrofissuren vornehmlich intergranular entlang von Korngrenzenflächen erfolgt. Die hydraulische Zugfestigkeit verschwindet in diesem Fall. Abb. E.60 fasst diese wichtigen Ergebnisse der Laboruntersuchungen zusammen.

Wichtige Ergebnisse der Laboruntersuchungen:

- kein dichtes Gebirge für $p_{\scriptscriptstyle FI} > \min \sigma$
- keine Makrorisse für \dot{p}_{Fl} sehr klein oder $\Delta\sigma_{_{p}}$ < 1.5-2.0~MPa
- zwei dominante Prozessmechanismen sind gültig für

$$\Delta \sigma_p = 0(?) - 1.5 / 2.0 MPa$$

- Infiltrationsprozess
- Strömungsprozess

Abb. E.60 Schlussfolgerungen aus den Ergebnissen der Laboruntersuchungen

Ausgehend von Beobachtungen in den laborativen Untersuchungen ist ein EDV-Programm zur rechnerischen Simulation des Infiltrationsprozesses entwickelt worden. Dieses EDV-Programm mit der Bezeichnung *INFIL* beinhaltet jedoch nicht nur das Programm zur Umsetzung des physikalischen Modells eines zeit- und spannungs- / fluiddruckgesteuerten Infiltrationsprozesses in ein primär impermeables Kontinuum. Vielmehr ist es darüber hinaus das zentrale Steuerprogramm eines Programmpaketes, das

die geomechanischen Prozesse vor dem Verschluss der Kaverne und insbesondere die geomechanisch-(geo)hydraulisch gekoppelten Prozesse nach Verschluss der Kaverne über Druckaufbau und Infiltration bis hin zu der finalen *Darcy*-Strömung auf den durch den Infiltrationsprozess induzierten Sekundärwegsamkeiten numerisch simuliert. Die in Abb. E.61 dargestellten Fragen zur zeitlichen und räumlichen Ausdehnung der Infiltrationszone um eine verschlossene solegefüllte Kaverne sowie zur Innendruckentwicklung in der verschlossenen solegefüllten Kaverne können mit diesem Programmpaket untersucht werden. Bei der Darstellung des Programmablaufs ist entsprechend Abb. E.62 zu unterscheiden zwischen der Infiltrations- und der Strömungsphase.

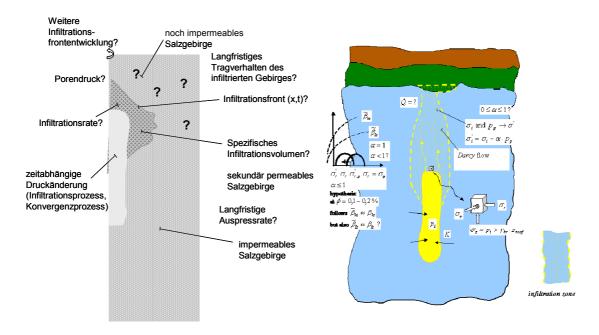


Abb. E.61 Fragen zum Verhalten solegefüllter verschlossener Kavernen

Anhand eines repräsentativen Beispiels aus der Kavernenbaupraxis wird im Folgenden aufgezeigt, wie das Programmsystem *INFIL* bei der Analyse des Tragverhaltens von verschlossenen solegefüllten Kavernen eingesetzt werden kann und zu welchen Einblicken in das Tragverhalten die rechnerische Simulation führt. Die Validierung der vorgestellten Modelle und Simulatoren erfolgt anhand der Re-Analyse eines Feldversuches, der Mitte der neunziger Jahre in Deutschland durchgeführt worden ist.

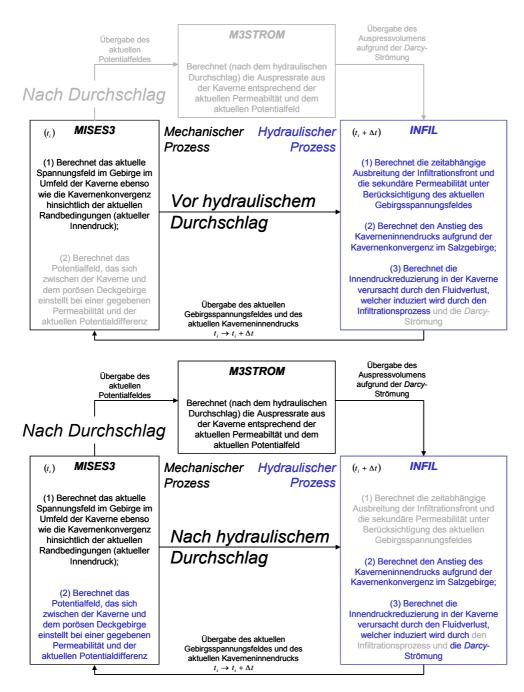


Abb. E.62 Programmablaufdiagramm in der Infiltrationsphase (links) und in der Strömungsphase (rechts)

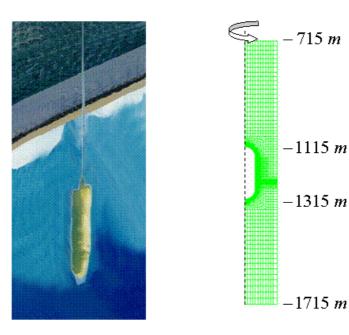


Abb. E.63 Typische Salzkaverne (links) und Berechnungsmodell der idealisierten Kaverne (rechts)

Der Analyse anhand des repräsentativen Beispiels wird eine typische Salzkaverne aus einem größeren Kavernenfeld zugrunde gelegt mit dem Kavernendach in Teufe $z_D = -1115 \, m$, der Kavernensohle in Teufe $z_S = -1315 \, m$ und damit einer Kavernenhöhe von $h = 200 \, m$ sowie einem Kavernendurchmesser von $d = 80 \, m$. Abb. E.63 zeigt links eine Kaverne im Salinargebirge und rechts ein exemplarisch diskretisiertes Berechnungsmodell mit idealisierter Kavernengeometrie und dem zugehörigen rotationssymmetrischen Gebirgsausschnitt. Der Salzspiegel liegt in Teufe z = -715 m. Oberhalb des Salzspiegels soll eine poröse wassergesättigte Gebirgsformation anstehen. Für die Modellierung und Simulation des Tragverhaltens der stillgelegten Kaverne wird zunächst angenommen, dass nach der Flutung der Kaverne mit Sole und vor dem Anordnen des Kavernenverschlusses hinreichend Zeit für einen Temperaturausgleich zwischen Gebirge und Sole verstrichen ist, so dass hier thermisch bedingte Druckerhöhungen vernachlässigt werden können. Von Bérest et al. (2001) ist auf den temperaturausgleichsbedingten Druckaufbau bei verschlossener Kaverne und seine nachteiligen Auswirkungen bei einem zu frühzeitigen Kavernenverschluss hingewiesen worden. Damit beginnt für die rechnerische Simulation der Druckaufbau nach der Anordnung des fluiddichten Verschlusses der Kaverne unter isothermen Bedingungen und bei einem hydrostatischen Innendruckniveau ($\gamma_{\scriptscriptstyle S}=0.012\, MN/m^3$). Ohne Berücksichtigung der Infiltration entwickelt sich der Kaverneninnendruck aufgrund der Hohlraumkonvergenz entsprechend Abb. E.64 dahin, dass in der mittleren Kavernenhöhe an der KaΕ

vernenkontur ein Druckgleichgewicht zwischen dem Kaverneninnendruck und dem Gebirgsdruck in dieser Teufe anliegt.

Verhalten ohne Infiltration / State of the Art 1985

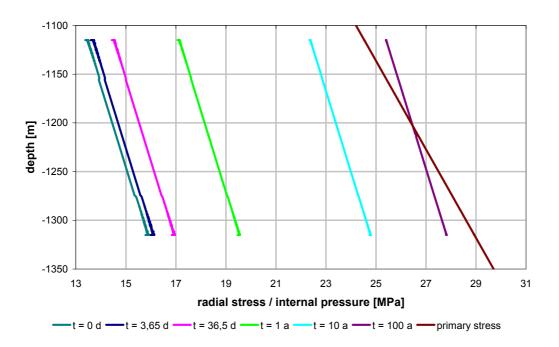


Abb. E.64 Kavernenverhalten ohne Berücksichtigung der Infiltration

Wird dagegen die Infiltration infolge des Druckanstiegs in der Kaverne als Prozess in der Simulation des Verhaltens verschlossener solegefüllter Kavernen berücksichtigt, so vergehen zunächst etwa 30 Jahre, bis sich der für den Beginn des Infiltrationsprozesses notwendige Innendruck in der Kaverne aufgebaut hat. Anschließend beginnt sich allmählich eine Infiltrationszone auszubilden, die entsprechend Abb. E.65 155 Jahre nach Kavernenverschluss mit dem hydraulischen Durchschlag am Salzspiegel eine hydraulische Verbindung zwischen der Kaverne und dem Deckgebirge schafft.

Prozess der Infiltration / State of the Art 2005/2006/2007?

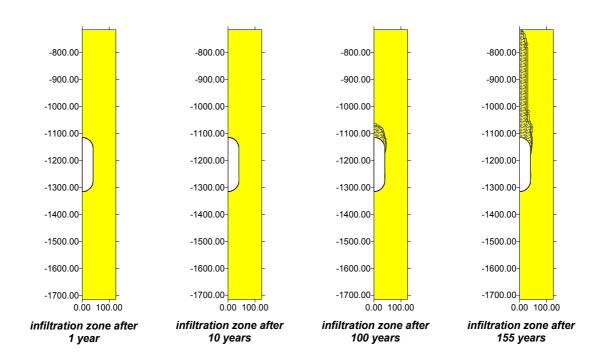


Abb. E.65 Ausbreitung der Infiltrationszone zu verschiedenen Zeitpunkten

Darcy-Strömung

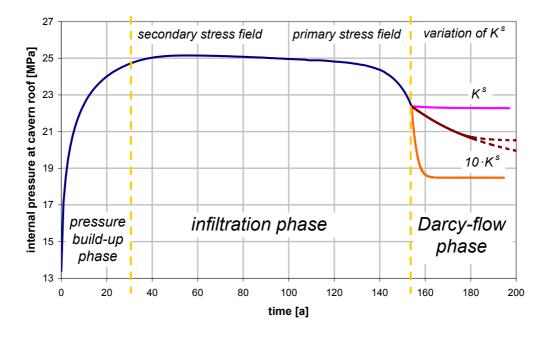


Abb. E.66 Abhängigkeit der Darcy-Strömung von der Permeabilität in der Infiltrationszone

Nach dem hydraulischen Durchschlag der Infiltrationsfront beginnt der *Darcy*-Strömungsprozess, der zu einer weiteren Innendruckabnahme in der Kaverne führt. Wie weit der Innendruck fällt, ist stark abhängig von der Permeabilität innerhalb der Infiltrationszone, wie in Abb. E.66 dargestellt

Der zur Validierung der Modelle und Simulatoren herangezogene Feldversuch fand Anfang der 90er Jahre mit der Kaverne K102 des Kavernenfeldes Etzel statt. Es wurde dabei ein Fluid in die Kaverne verpumpt und die zeitabhängige Entwicklung des Innendrucks am Rohrschuh gemessen. Dabei gab es alternierend mehrere Pump- und Beobachtungsphasen. Abb. E.67 zeigt das zur Simulation verwendete FEM-Modell der Kaverne K102 und die gemessenen Innendrücke am Rohrschuh.

Im Hinblick auf die numerische Qualität der Berechnungsdaten sind der Kavernennahbereich und der erwartete Infiltrationsbereich im Hangenden der Kaverne gezielt sehr fein diskretisiert worden. Die Oberkante des Berechnungsmodells entspricht dem Salzspiegel.

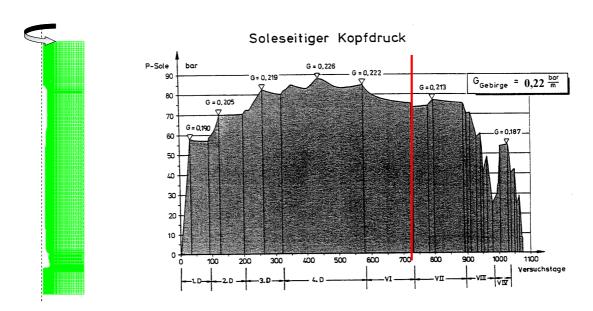


Abb. E.67 FEM-Modell der Kaverne K102 und gemessener Innendruckverlauf während des Feldversuchs

Das Salzgebirge wird als homogen und isotrop modelliert (keine Schichtung, keine Textur auf Korngefügeebene). Die Modellierung des Kriechverhaltens erfolgt mit dem elastisch-viskosen Stoffmodell *Lubby2*. Die Materialkennwerte entsprechen den für die Lagerstätte aus Laborversuchen abgeleiteten Kennwerten.

Zur Simulation des Druckaufbauversuchs wird im Rahmen des Programmsystems eine Kopplung zwischen den Programmteilen *MISES3* (geomechanisches Modell) und *INFIL* (Infiltrations-Modell) vorgenommen. Die numerische Simulation des geomechanisch-geohydraulisch gekoppelten Prozessablaufes erfolgt dabei zeitgesteuert in Tagesinkrementen. Für jeden Berechnungstag wird zunächst für das mechanische Programm *MISES3* die Innendruckänderung in der Kaverne aufgrund von Lage der Infiltrationsfront, injiziertem Solevolumen, Kavernenkonvergenz und Soleinfiltration ermittelt. Aus der Aktualisierung des Innendrucks folgt eine Aktualisierung des sekundären Spannungszustandes im Gebirge. Dann folgt auf Grundlage des tagesaktuellen Innendrucks und des Sekundärspannungsfeldes die aktualisierende Simulation des hydraulischen Prozesses mit dem Programm *INFIL*, also die Ermittlung des Fortschritts des Infiltrationsprozesses mit aktualisiertem Verlauf der Infiltrationsfront und der Änderung des Innendruckniveaus – letztere wie vorstehend beschrieben auch dann wieder als Eingangsdatum für das nächste Zeitinkrement.

Da aus den vorhandenen Daten zum Druckaufbau entsprechend Abb. E.67 nur unzureichend zu entnehmen ist, um welchen Betrag der Innendruck an welchem Tag zugenommen hat, ist für die Simulation nicht unmittelbar vom Verlauf des Innendrucks ausgegangen worden. Vielmehr ist der Simulation der zeitliche Verlauf der Injektionsvolumina zugrunde gelegt worden. Dabei wird unter Verwendung des Kompressionsmoduls der Sole aus dem Infiltrationsvolumeninkrement das zugehörige Druckinkrement nach Gl. (2) berechnet:

$$\Delta p_{Fl} = \frac{\Delta V_{inj}}{V_{K_{CD}}} \cdot K \tag{2}$$

mit

 Δp_{FI} = Druckinkrement in MPa

 ΔV_{ini} = inkrementelles Injektionsvolumen in m^3

 V_{Kay} = Kavernenvolumen in m^3

K = Kompressionsmodul der Sole in MPa

Vor diesem Hintergrund zeigt das Abb. E.68 die Berechnungsergebnisse am Ende des Simulationszeitraums. Dargestellt sind sowohl die Ausbreitung der Infiltrationsfront am Ende des Simulationszeitraums als auch der zeitabhängige Vergleich des berechneten und des gemessenen Kaverneninnendrucks.

Prozess der Infiltration

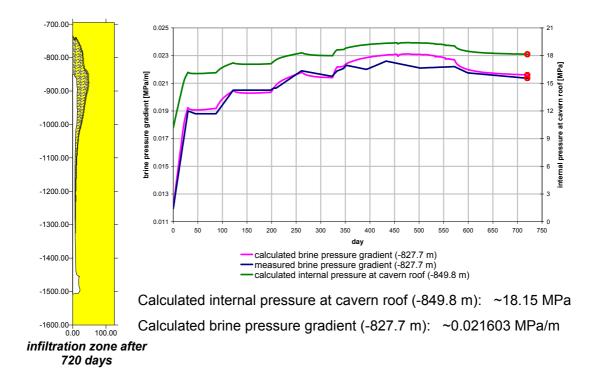


Abb. E.68 Berechnungsergebnisse am Ende des Simulationszeitraums

Die retrospektive Analyse des *Feldversuches Etzel* zeigt, dass das Programmsystem *INFIL* trotz seiner (noch) groben physikalischen Modellierung bezüglich des Infiltrationsprozesses einen plausiblen Einblick in das Tragverhalten des Gebirges erlaubt. Es zeigt sich allerdings auch, dass zur Verbesserung der Zuverlässigkeit der Berechnungsdaten die Eingansparameter standortbezogen in einer so engen Bandbreite wie möglich und vertretbar rechzeitig im Vorfeld einer Kavernenstilllegung zu ermitteln sind. Für die Prognose des Tragverhaltens nach Kavernenverschluss sollte für die weniger präzise fassbaren Parameter im Rahmen der zu erwartenden Bandbreite eine Sensitivitätsanalyse durchgeführt werden. Dadurch wird das mögliche zukünftige Verhalten des Tragsystems in seiner Variationsbreite aufgezeigt. Auf diesen Ergebnissen ist dann die Stilllegungsplanung aufzubauen.

Für die Stilllegung von Salzkavernen ist im Allgemeinen auch zu beachten, dass der konvergenzbedingte Druckaufbau durch einen thermisch induzierten Druckaufbau überlagert und verstärkt wird (infolge je nach Situation unterschiedlich intensiver Wiedererwärmung der Sole durch Wärmefluss aus dem Gebirge, evtl. Hydratationswärme). Damit stellt sich die Frage, welchen Einfluss die Soleerwärmung auf den Infiltrationsprozess hat und ob sich aus diesem Prozess Auswirkungen auf den Kavernenver-

schluss ergeben, z.B. hinsichtlich seines Zeitpunktes nach Betriebseinstellung. Sollten hier Wartezeiten von etlichen Jahren oder gar mehreren Jahrzehnten erforderlich sein, hätte dieses erheblichen Einfluss auf der wirtschaftlichen Seite.

Ansatz der Temperaturentwicklung

$$\Delta V_{th} = \alpha \cdot V_0 \cdot \Delta T \quad ; \quad \Delta p = \Delta V / (\beta \cdot V_0) = K \cdot (\Delta V / V_0) \quad \rightarrow \quad \Delta p = (\alpha / \beta) \cdot \Delta T$$

$$\stackrel{\bullet}{\longleftarrow} \quad \text{Wärmeausdehungskoeffizient} \quad \stackrel{\bullet}{\longleftarrow} \quad \text{Systemkompressibilität}$$

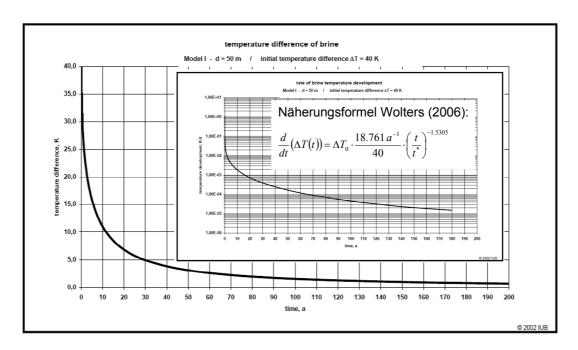


Abb. E.69 Ansatz der Temperaturentwicklung

Zur ersten Einschätzung der hydraulisch-mechanischen Wirkung aus einer Soleerwärmung werden entsprechend Abb. E.69 folgende Annahmen getroffen:

- Die Temperaturverteilung in der Kaverne ist homogen, aber zeitabhängig.
- 2. Die Soleerwärmung wird im Bereich $0~K \le \Delta T_0 \le 40~K$ angenommen mit folgendem zeitabhängigen Verlauf:

$$\frac{d}{dt}(\Delta T(t)) = \Delta T_0 \cdot \frac{c}{40} \cdot \left(\frac{t}{t^*}\right)^{-1,5305} \tag{3}$$

mit

 $\Delta T(t)$ = Funktion zur Beschreibung der Temperaturdifferenz zwischen Sole und Gebirge zum Zeitpunkt t,

E Gase im Endlager und fluidgefüllte Salzkavernen – zwei unterschiedliche Sachverhalte, ein gleichartiger Prozess der Barrierenschädigung? (Karl-Heinz Lux)

 ΔT_0 = Anfangstemperaturdifferenz zwischen Sole und Gebirge,

c = kavernengeometrieabhängiger Parameter (hier: $18,761 a^{-1}$) und

 t^* = Normierungszeiteinheit 1 a.

3. In der verschlossenen Kaverne resultiert aus der Soleerwärmung folgende Innendruckerhöhung:

$$\frac{d}{dt}p_i(t) = \frac{\alpha}{\beta} \cdot \frac{d}{dt} (\Delta T(t)) \tag{4}$$

mit

 $p_i(t)$ = Kaverneninnendruck zum Zeitpunkt t,

 α = Wärmeausdehnungskoeffizient,

 β = Systemkompressibilität und

 $\Delta T(t)$ = Funktion zur Beschreibung der Temperaturdifferenz zwischen Sole und Gebirge zum Zeitpunkt t.

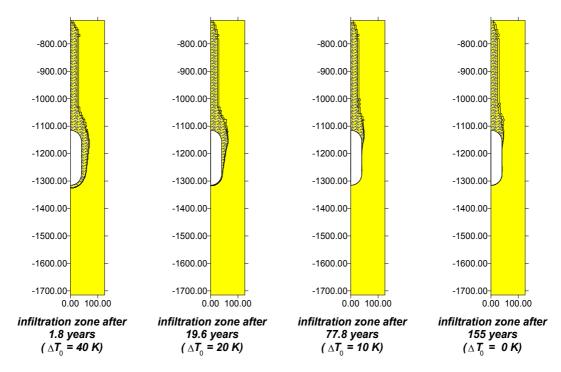


Abb. E.70 Infiltrationszonen für verschiedene Anfangstemperaturdifferenzen

Anhand von Variationsberechnungen am Modell der idealisierten Kaverne mit unterschiedlichen Anfangstemperaturdifferenzen ΔT_0 zwischen Sole und Gebirge zeigt sich, dass

- die räumliche Ausdehnung der Infiltrationszone insbesondere im unteren Kavernenbereich entsprechend Abb. E.70 eine starke Abhängigkeit von der anfänglichen Temperaturdifferenz zwischen Sole und Salzgebirge aufweist, wobei das Gebirge im unteren Kavernenabschnitt bei einer geringeren
 anfänglichen Temperaturdifferenz deutlich geringer bis nur marginal infiltriert
 wird,
- die infiltrierten Solevolumina in Abhängigkeit von der reduzierten räumlichen Ausdehnung der Infiltrationszonen bei reduzierter anfänglicher Temperaturdifferenz zwischen Sole und Salzgebirge ebenfalls reduziert sind (an der Entwicklung der Infiltrationsvolumina ist zu erkennen, dass im Fall 1 die Infiltrationspropagation nach dem hydraulischen Durchschlag der Infiltrationsfront in ein poröses Deckgebirge nicht beendet ist),
- die Zeit bis zum hydraulischen Durchschlag der Infiltrationsfront in ein poröses
 Deckgebirge erwartungsgemäß auch eine starke Abhängigkeit von der anfänglichen Temperaturdifferenz zwischen Sole und Salzgebirge zeigt, da durch den
 Temperaturausgleich zwischen Sole und Gebirge ein erheblich bescheunigter
 Innendruckaufbau induziert wird gegenüber dem nur durch die Kavernenkonvergenz bedingten Innendruckaufbau im Fall 4 und
- die Auspressrate nach dem hydraulischen Durchschlag der Infiltrationsfront in ein poröses Deckgebirge entsprechend Abb. E.72 ebenfalls eine Abhängigkeit von der anfänglichen Temperaturdifferenz zeigt, wobei eine geringere Temperaturdifferenz zu einer geringeren Auspressrate und somit indirekt auch zu geringeren Oberflächenabsenkungen führt.

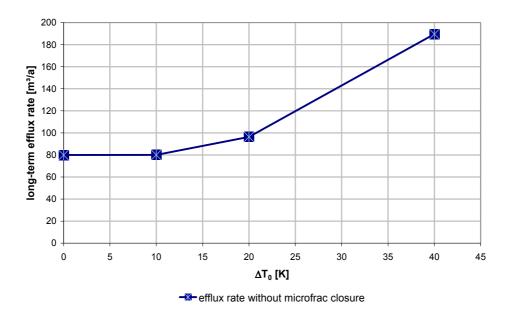


Abb. E.71 Auspressraten als Funktion der Anfangstemperaturdifferenzen

Bei der Berechnung der Auspressraten nach dem hydraulischen Durchschlag der Infiltrationsfront am Salzspiegel ist auch zu beachten, dass sich Sekundärwegsamkeiten bei einer Änderung der Spannungsverhältnisse auch wieder verschließen können. Hierzu wurde ein hypothetischer Ansatz entsprechend Abb. E.71 getroffen, um dieses Verhalten analysieren zu können. Die durchgeführten Arbeiten zur numerischen Quantifizierung des möglichen Einflusses der Rissverschließung auf die langzeitige Auspressrate von Sole aus der Kaverne in die poröse Deckgebirgsschicht zeigen, dass die durchschnittliche Auspressrate durch die Rissverschließung stark reduziert wird. Zur Illustration ist in Abb. E.73 die berechnete langzeitige durchschnittliche Auspressrate aufgetragen aus einer Simulation mit Berücksichtigung der Rissverschließung (grüne Markierung) im Vergleich zu den berechneten Auspressraten ohne Berücksichtigung der Rissverschließung (blaue Markierungen). Ein Temperaturunterschied Sole – Gebirge ist nicht angenommen worden ($\Delta T_0 \equiv 0$).

Einfluss der Mikrorissverschließung:

Hypothesen:

- (1) $\Delta \sigma_p > 0 \, MPa \rightarrow \text{Bildung/\"Offnung von Wegsamkeiten}$ (= Infiltrationsprozess)
- (2) $\Delta \sigma_p < 0 \, MPa \longrightarrow \text{Schlie} \text{Sung von Wegsamkeiten}$ (= Reduzierung der Sekundärpermeabilität)

Annahmen zur Modellierung (Rissverschließung/Rissöffnung)

$$\Delta\,\sigma_{\,p} < -3\,\,MPa \quad \to \text{Sekundärpermeabilität = 0}\,\,m^2$$
 (impermeables Salzgebirge)
$$\Delta\,\sigma_{\,p} > -3\,\,MPa \quad \to \text{erneute Öffnung von Wegsamkeiten}$$
 (Wiederanstieg der Sekundärpermeabilität)

$$\Delta\,\sigma_{_p} > 0 \; MPa \; o \; {\rm vollständig} \; {\rm wieder} \; {\rm ge\"{o}ffnete} \; {\rm Wegsamkeiten}$$

Abb. E.72: Hypothetischer Ansatz zur Mikrorissverschließung

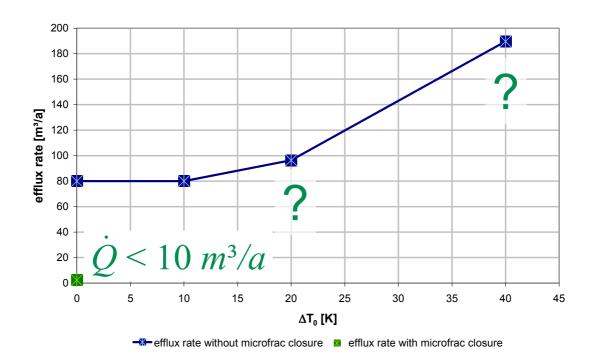


Abb. E.73 Einfluss der Rissverschließung auf die Auspressraten

8 Übertragung des *INFIL*-Ansatzes auf versetzte Grubenbaue / Beispiel Abfallkaverne

Grundsätzlich ist davon auszugehen, dass in einem Endlager die Resthohlräume in Abfallablagerungskammern sowie die weiteren Infrastruktur-Grubenbaue versetzt werden. Damit liegt im Endlager der Fall vor, dass sich konvergenzbedingt neben dem Fluiddruck ein Stützdruck im Mineralkorngerüst des Versatzes / der Abfälle ausbildet und dieser Gebirgs- und Kompaktionsdruck im Mineralkorngerüst dann auch einen Druckaufbau im Porenraumfluid bedingt. Damit ergibt sich hier eine ähnliche Situation wie bei einer feststoffverfüllten Kaverne mit freien fluiden Phasen im Feststoffporenraum.

Die Übertragung des *INFIL*-Ansatzes auf versetzte Hohlräume ist am Beispiel der bereits verwendeten idealisierten Kaverne untersucht worden, wobei das Innere der Kaverne nun selbst auch durch Elemente diskretisiert worden ist, denen Feststoffeigenschaften zugeordnet werden (→ Versatz- oder Abfallkaverne). Es wurden verschiedene Variationsberechnungen mit zunehmender Komplexität im Bezug auf die physikalische Modellierung des Abfalls durchgeführt. Einige der durchgeführten Variationen sind in Abb. E.74 aufgelistet.

Die Übertragung des sich durch die Kavernenkonvergenz erhöhenden Abfalldrucks auf das Fluid im Porenraum des Abfalls geschieht durch den *Skempton*-Koeffizienten. Der Porosität des Abfalls wird mit 10% angenommen, wobei die Poren vernetzt sind und zu Beginn der Berechnung nach Verschluss der Kaverne ein hydrostatischer Druck im Fluid herrscht.

Grundlegende Annahmen:

- Der Abfall weist einen Porenraum von 10 % auf (n = 0,1).
- Die Porenräume sind vernetzt.
- Im Porenraum liegt ein hydrostatischer Druck vor.

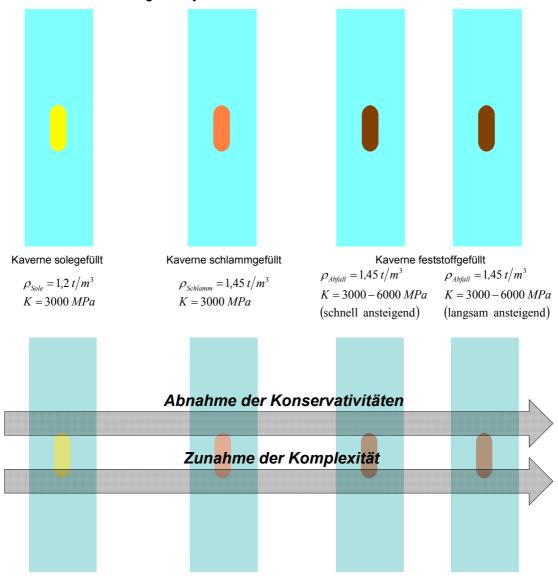


Abb. E.74 Einige durchgeführte Berechnungsvariationen zur feststoffverfüllten Kaverne mit Porenfluid

Bei der Betrachtung der beiden Beispiele mit feststoffverfüllter Kaverne und unterschiedlicher Kompaktionscharakteristik ist die Infiltrationsfront im Endzustand der abgeklungenen Gebirgsdeformationen $(\dot{K} \to 0)$ mit jeweils etwa 3,5 Metern in nur sehr geringem Maße in das Gebirge eingedrungen und jeweils etwas mehr als 100 Jahre nach Kavernenverschluss zum Stillstand gekommen. Abb. E.75 zeigt diese Ergebnisse. Der Stillstand der Infiltrationsfront ist besonders gut zu erkennen an den jeweiligen Infiltrationsraten aufgetragen über die Zeit, ebenfalls dargestellt in Abb. E.75.

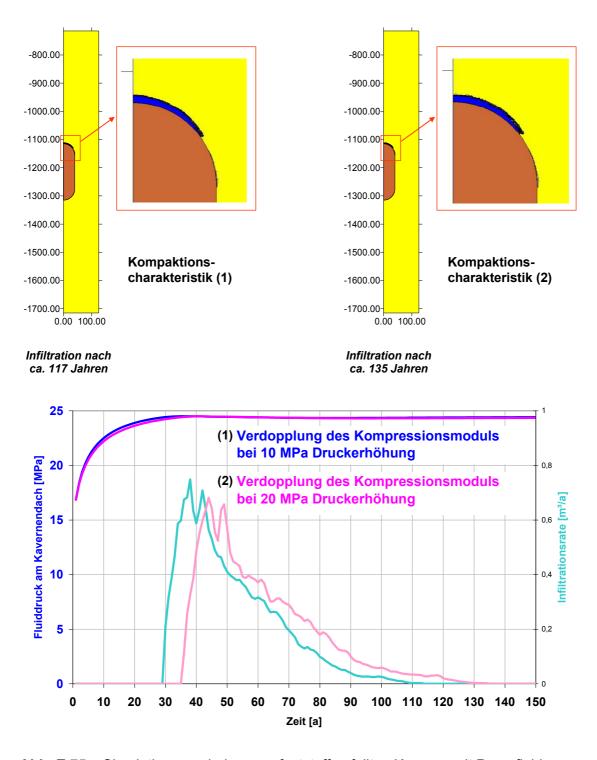


Abb. E.75 Simulationsergebnisse zur feststoffverfüllten Kaverne mit Porenfluid

9 Zusammenfassung und Ausblick

Das Tragverhalten des verschlossenen Endlagers bei Gasbildung mit ihren Folgewirkungen auf die Integrität der geologischen Salinar-Barriere und das Tragverhalten einer solegefüllten verschlossenen Salzkaverne weisen grundsätzliche Ähnlichkeiten auf, so dass die Arbeitshypothese aufgestellt wird, dass in beiden Fällen gleichartige Prozesse in der Salinarbarriere ablaufen und Erkenntnisse aus dem Systemverhalten der Salzkaverne auf das Endlagersystem übertragen werden können.

Die Ergebnisse der numerischen Simulationen mit dem Programmsystem *INFIL* zeigen für die verschlossene solegefüllte Kaverne, dass in Verbindung mit den laborativen Untersuchungen und den Erfahrungen aus einem Feldversuch zentrale Phänomene und Mechanismen zum Verhalten von mechanisch-hydraulisch gekoppelten Tragsystemen im Salinargebirge verstanden werden und damit verbundene sicherheitlich relevante Aufgabenstellungen bearbeitet werden können, z.B. Verlauf des Druckaufbaus, Identifizierung des Infiltrationsbeginns, Propagation des Infiltrationsprozesses, Ausbildung von Sekundärporosität und Sekundärpermeabilität sowie nach dem hydraulischen Durchschlag in eine poröse Gesteinsformation Ermittlung von hydraulischem Potentialfeld und Volumenstrom. Dabei sind einerseits die laborativen Grundlagen und die physikalische Modellierung und andererseits die numerische Simulation noch zu verbreitern bzw. zu erweitern.

Für die nähere Zukunft soll bei der Untersuchung von Infiltrationsprozessen im Salinar das Programmsystem *INFIL* erweitert werden auf dreidimensionale Berechnungsmodelle. Ein Grund dafür ist auch die Untersuchung von anisotropen Gefügeverhältnissen und deren Einfluss auf das Infiltrationsverhalten sowie die Infiltrationszonen. Außerdem sollen auch Abfälle mit unterschiedlichen Fluiden im Porenraum untersucht werden, insbesondere mit Gasen. Es wird davon ausgegangen, dass unter Berücksichtigung fluidbezogener Spezifika wie z.B. Kompressibilität und Viskosität das Phänomen der Gase im verschlossenen Endlager mit seinen Folgewirkungen auf die geologische Barriere mit diesem Instrumentarium nach entsprechender laborativer Vertiefung quantitativ analysiert werden kann und das für den Langzeitsicherheitsnachweis erforderliche Zahlenwerk bereitgestellt werden kann.

10 Literatur

- Bérest, P. et al. (2001): A Salt Cavern Abandonment Test. Intern. Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences.
- Düsterloh, U. & Lux, K.-H. (2004): Geomechanical Investigations on the Hydraulic Integrity of Geological Barriers. Intern. Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences 41.
- Gloria, K. & Costinescu, A. (1978): In situ-Untersuchungen des zulässigen Druckgradienten für Gaskavernen in Steinsalz. 26. DGMK-Haupttagung (Oktober), Berlin.
- Langer, M. et al. (1984): Gebirgsmechanische Bearbeitung von Stabilitätsfragen bei Deponieka-vernen im Salzgebirge. Kali und Steinsalz, H. 2.
- Lux, K.-H. et al. (1986): Gebirgsmechanische Anforderungen an die untertägige Deponierung von Sonderabfällen im Salzgebirge. Forschung und Praxis U-Verkehr und unterirdisches Bauen, STUVA, Köln.
- Naujoks, A. (1986): Untersuchungen zum Frac-Verhalten von verschlossenen Salzkavernen.

F Das Gasfracanalogon Merkers infolge des Gebirgsschlages 1989 - Wiederherstellung der Barriereintegrität (Wolfgang Minkley)

1 Einleitung

Natur-Analoga sind ein wichtiges Hilfsmittel für die Bewertung des zukünftigen Verhaltens geologischer Strukturen und Formationen, wenn mit ihnen großskalige und zeitlich langfristige Phänomene beschrieben werden können (Nierste & Bräuer, 2001). Aktuelle experimentelle Untersuchungen (vgl. Beitrag Popp) belegen, dass ein Gasfracszenario im Salzgebirge nur dann möglich ist, wenn der aus Gasfreisetzung resultierende Druckaufbau die Gasaufnahmefähigkeit des Salzgebirges übersteigt und ein Überdruck $|\Delta p|$ von mehr als 2 – 4 MPa erreicht wird. Derartige Rahmenbedingungen sind im natürlichen Maßstab nur unter zwei Konstellationen wahrscheinlich.

- Frac durch schnelle Gasdruckerhöhung, z.B. bei Explosion
- Frac bei dynamischer Beanspruchung mit Abfall der Einspannung im Gebirge,
 z.B. bei Erdbeben oder Gebirgsschlägen.

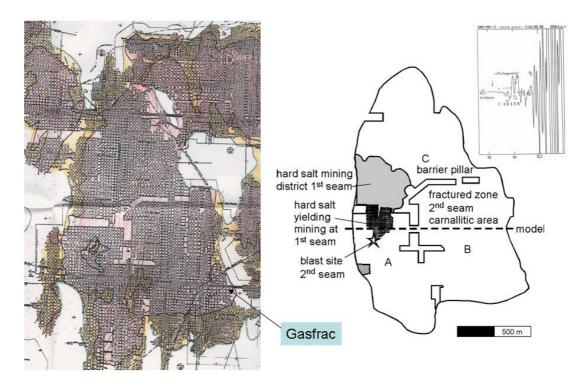


Abb. F.76 Gasfrac bei Gebirgsschlag Völkershausen 1989

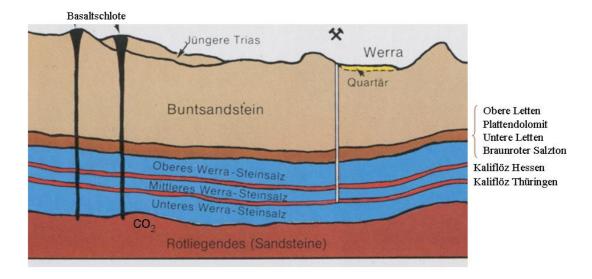


Abb. F.77 Geologischer Gebirgsaufbau am Standort Merkers

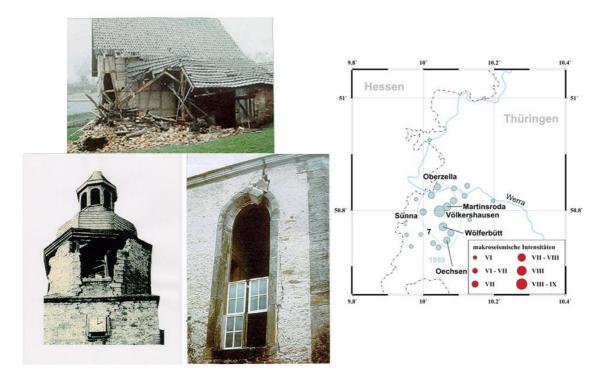


Abb. F.78 Auswirkungen auf die Tagesoberfläche

Am Standort Merkers liegt eine weltweit einmalige geologische Situation vor, bei der es in Zusammenhang mit dem Gebirgsschlag Völkershausen am 13.03.1989 zu einem Gasaustritt durch die geologische Liegendbarriere des Unteren Werrasteinsalzes mit einer anschließenden Verheilungsphase kam (Abb. F.76, Abb. F.77 und Abb. F.78). Das Ziel der Arbeiten an diesem weltweit einzigartigen Analogon eines Gasfracs ist nachzuweisen,

- F Das Gasfracanalogon Merkers infolge des Gebirgsschlages 1989 Wiederherstellung der Barriereintegrität (Wolfgang Minkley)
 - ob der zu beobachtende Rückgang im Gasaustritt auf Selbstheilungseffekte innerhalb der Steinsalzbarriere zurückzuführen ist und sich somit die Integrität der Steinsalzbarriere, zumindest teilweise wieder hergestellt hat. Es liegen, abgesehen von den hier durchgeführten Untersuchen, nach unserem Kenntnisstand bisher keine In-situ-Befunde zur Ausbildung der Schädigungszone im Salz nach einem Gasfrac vor.

Die Untersuchungskonzeption hierzu basiert auf zwei Säulen:

- Aufgrund der langjährigen gutachterlichen Begleitung dieser Vorgänge besteht die günstige Möglichkeit, die gebirgsmechanischen Rahmenbedingungen der Gasfracentwicklung während und nach dem Gebirgsschlag bis heute mit gebirgsmechanischen Modellrechnungen nachvollziehen zu können.
- Mittels einer Horizontalbohrung, die bis in den Bereich der ehemaligen Gasfraczone geführt wurde, sollte der aktuelle Zustand der geologischen Barriere bezüglich seiner gebirgsmechanischen / hydraulischen Integrität bewertet werden. Die dabei gemessenen Parameter dienen gleichzeitig zur Kalibrierung des eingesetzten Rechenprogramms.

1.1 Geologische Situation mit dem Gebirgsschlag 1989

Die Kaligrube Merkers gehört zu den Salzlagerstätten in der flachen Lagerung im Werra-Gebiet. Seit 1901 findet hier Salzbergbau statt, wobei als Besonderheit im Salz im Gefolge von Basalteinschaltungen erhebliche Gasintrusionen auftreten können. Sie stehen mit dem tertiären Basaltvulkanismus der Rhön in kausalem Zusammenhang. Das dabei freigesetzte CO₂ akkumulierte hauptsächlich unterhalb der Salzgesteine des Zechstein in den Klüften der ansonsten geringpermeablen Gesteine des Oberrotliegend und basalen Zechstein, d.h. u.a. im klüftigen Werraanhydrit (Abb. F.77). In 800 bis 1000 m Teufe existieren mehrere voneinander getrennte Lagerstätten mit gasförmigem, flüssigem oder überkritischem CO₂.

Unter der Annahme eines offenen hydraulischen Systems würden im Unteren Werra-Anhydrit (A1 bzw. z1WA) bei vorhandener Klüftung Fluide mit einem Druck in der Größenordnung um ca. 7 – 7,5 MPa anstehen. In Zusammenhang mit dem Gebirgsschlag Völkershausen ist es als Folge der vorliegenden Gasdruckbelastung in der Steinsalzliegenbarriere zu einem Gasfrac mit lokaler Gasfreisetzung gekommen.

Dieser bisher schwerste weltweit bekannte Gebirgsschlag mit einer Magnitude von M_L = 5,6, der zu erheblichen Schäden an der Tagesoberfläche, insbesondere in der Ortschaft Völkerhausen führte, ereignete sich am 13.03.1989 (Abb. F.78). Er wurde durch das Gewinnungssprengen ausgelöst und erfasste innerhalb weniger Sekunden den carnallitischen Teil des westlichen Grubenfeldes auf einer Fläche von 6,5 km² und wurde erst an den das Feld östlich, westlich und südlich begrenzenden Vertaubungsbzw. Umwandlungszonen gestoppt (Abb. F.76).

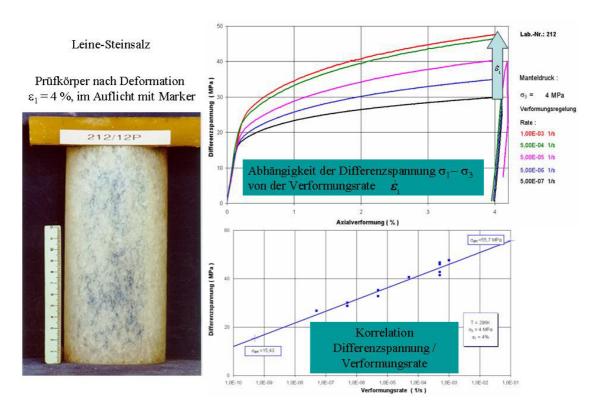


Abb. F.79 Messung der Differenzspannung in Abhängigkeit von der plastischen Verformung

Eine plausible Rückrechnung für den Gebirgsschlagvorgang in Völkershausen konnte erst nach der Entwicklung eines speziellen visko-elasto-plastischen Stoffmodells zur Beschreibung des spezifischen Entfestigungs- und Sprödbruchverhaltens von Carnallitit (Minkley et al., 2001) durchgeführt werden. Dabei wurde versucht, das inelastische Verhalten und die zum Bruch führenden Schädigungsmechanismen mit der Gefügeentfestigung auf der Grundlage der Plastizitätstheorie durch eine phänomenologische Modellbeschreibung zu erfassen, die eine handhabbare Parameteridentifikation weitgehend auf Basis bewährter geotechnischer Versuchstechnik erlaubt. Für das elastoplastische Stoffmodell werden nur wenige zusätzliche Parameter benötigt, die sich aus konventionellen verformungsgesteuerten einaxialen und triaxialen Druckversuchen mit

Messung der Volumenänderung in Abhängigkeit von der plastischen Verformung bestimmen lassen (vgl. experimentelle Datensätze für Steinsalz in Abb. F.79 und Abb. F.80).

Damit konnte auch zweifelsfrei bestätigt werden, dass der Gebirgsschlag durch eine einzelne Sprengung (mit 30 kg Dekamon) an einem vorgeschädigten Carnallititpfeiler ausgelöst worden ist (Minkley, 2004).

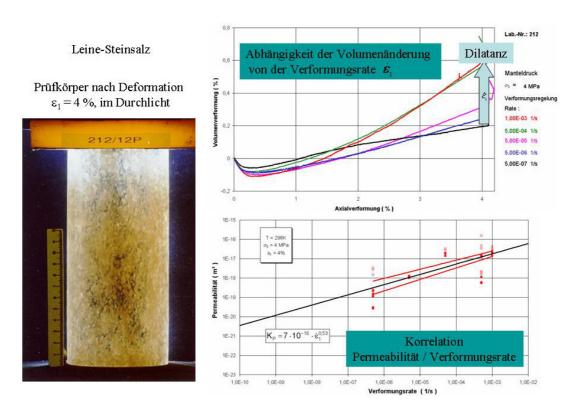


Abb. F.80 Messung der Volumenänderung in Abhängigkeit von der plastischen Verformung

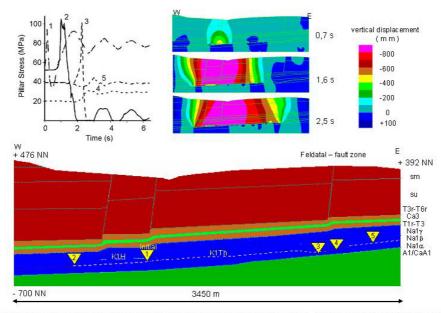
Ausgehend von dieser zunächst lokalen Instabilität hat sich der Bruchvorgang dann kettenreaktionsartig über eine Gesamtfläche von 6,5 km² im Abbaufeld ausgebreitet und in wenigen Sekunden 3200 Carnallititpfeiler in 750 m bis 900 m Teufe zerstört. Die Rückrechnung lieferte insgesamt eine konsistente Erklärung für den in situ abgelaufenen Bruchvorgang, einschließlich des vor Ort beobachteten lokalen Versagens der Liegendbarriere durch den CO₂-Gasfrac während der dynamischen Entspannung des Unteren Werra-Steinsalz beim Kollaps des Abbaufeldes auf der 2. Sohle (Abb. F.76).

Unmittelbar nach dem Gebirgsschlag ist am südöstlichen Bruchfeldrand, aus Rissen und Spalten in der Streckensohle austretendes CO₂ festgestellt worden. Seit dem Ge-

birgsschlag am 13.03.1989 bis Ende 2000 sind ca. 46 Mio. m³ CO₂ in das Grubengebäude geströmt bzw. über Bohrungen gefördert worden (Minkley & Brückner, 2003). Ab Juni 1993 setzte eine Verwässerung des Gaszutrittes in der Bohrung 143/4/92 ein, mit der das Gasvorkommen im Unteren Werra-Anhydrit angebohrt worden ist. Der Druck ist gegenwärtig auf 2,7 MPa abgefallen und ebenfalls ist messtechnisch seit 2001 kein CO₂-Durchtritt durch die geschädigte Liegendbarriere mehr nachweisbar.

1.2 Modellaufbau / Gebirgsschlagrückrechnung

Das gebirgsmechanische Berechnungsmodell basiert auf einem geologischen W-E-Profilschnitt, der durch das Bruchfeld des Gebirgsschlages von Völkershausen am 13.03.1989 verläuft (Abb. F.81). Als Berechnungsprogramm wurde der diskontinuumsmechanische Rechencode UDEC gewählt, in den das visko-elasto-plastische Stoffmodell als DLL-file geladen wurde.



Dynamische Berechnung unter Verwendung des entwickelten visko-elasto-plastischen Stoffmodells

Abb. F.81 Back analysis des Gebirgsschlages

Das ebene Berechnungsmodell stellt einen W-E-Schnitt durch das ca. 2,2 km breite und sich in Nord-Süd-Richtung etwa 3,5 km erstreckende Bruchfeld dar, wobei in die Schnittebene die unter dem östlichen Bruchfeldrand durch Radarmessungen (Käding & Lukas, 1997) und Bohrungen nachgewiesene Ausdünnung im Unteren Werra-Steinsalz auf weniger als 30 m sowie die über der 6. südl. Abt. n. Westen bei einer Zwischenmit-

telmächtigkeit von nur 35...40 m verlustarm abgebauten Bereiche der 1. Sohle projiziert wurden.

Das gebirgsmechanische Strukturmodell ist 3450 m breit und bildet das geologische Profil von der Tagesoberfläche bis ins Rotliegende in einer Teufe von -700 m NN ab (Abb. F.81). Die seitlichen Modellränder sind bei der statischen Berechnung in horizontaler Richtung verschiebungsfrei und der untere Modellrand ist in vertikaler Richtung fixiert. Bei den dynamischen Berechnungen wurden dagegen an den seitlichen Modellrändern energieabsorbierende, viskose Randbedingungen implementiert, welche die Energieabstrahlung in das umgebende Gebirge simulieren. Die im geologischen Profilschnitt vorgegebenen Schichtgrenzen und die das suprasalinare Deckgebirge durchsetzenden, mit ca. 80° nach Westen steil einfallenden Bruchstörungszonen, wie die Feldatal-Störung und die Dorndorf-Oechsen-Störungszone (Staffelbrüche mit nach Westen abgesenkten Schollenteilen), werden durch das Berechnungsmodell wiedergegeben.

Die zeitliche Rückrechnung des Gebirgsschlages erfolgte ausgehend von den individuellen Stoffparametern für die in Abb. F.81 dargestellten Struktureinheiten nach der Generierung des Primär- bzw. Grundspannungszustandes mit der Auffahrung des Kammer-Pfeiler-Systems im Flöz Thüringen und anschließend im Flöz Hessen entsprechend der Auffahrungshistorie. Dabei wurden die jeweiligen Pfeilerdimensionen angemessen berücksichtigt.

In der statischen Berechnung wurde mit der Anlage der Abbaukammern im Carnallitit am östlichen Modellrand begonnen und die Auffahrung der Baufelder auf der 2. Sohle mit einer nach Westen gerichteten Abbauentwicklung nachvollzogen. Durch die Hohlraumschaffung im Carnallitit wurden Entfestigungs- und Kriechvorgänge in Gang gesetzt, die im Modell mit Hilfe des visko-elasto-plastischen Stoffmodells erfaßt werden. Deutlichen Einfluß auf die Entfestigung der Pfeilerkonturen üben auch die Kontaktbedingungen zwischen Carnallitit und Steinsalz aus.

Die Berechnungen belegen die negativen gebirgsmechanischen Auswirkungen des nachträglich erfolgten verlustarmen Hartsalzabbaus der 1. Sohle auf die bereits ein Jahrzehnt zuvor aufgefahrenen, sprödbruchgefährdeten carnallitischen Tragelemente der 2. Sohle. Es werden erhöhte Pfeilerbelastungen auf der 2. Sohle im Carnallitit nachgewiesen, im Vorfeld der Abbaukante der 1. Sohle 55 ... 65 MPa und im Druckschatten unterhalb der 1. Sohle Pfeilerbelastungen von 45 ... 55 MPa.

In den dynamischen Berechnungen, wird ausgehend von dem initialen Pfeilerversagen ein kettenreaktionsartiger Bruchmechanismus ausgelöst. Der einmal in Gang gesetzte Bruchprozess mit hohen dynamischen Zusatzlasten an der Bruchfront entwickelt eine Eigendynamik und überwindet auch statisch noch nicht instabile Tragelemente. Der Bruchvorgang wird erst am Baufeldrand bzw. im Übergangsbereich von carnallitischer zu sylvinitischer Fazies gestoppt. Das sich an den Abbaufreibereich unter der Feldatal-Störungszone östlich anschließende carnallitische Abbaufeld ist vom Gebirgsschlag nicht betroffen worden. Die Berechnung kommt zum gleichen Ergebnis. Der Abbaufreibereich gerät als randlicher Auflagebereich unter Zusatzlast (Kurve 4 in Abb. F.81), die Pfeiler im östlich benachbarten Abbaufeld nehmen die stark abgeschwächte dynamische Zusatzlast ohne Versagen auf (Kurve 5 in Abb. F.81). Für die 1600 m vom dynamisch angeregten Pfeiler bis zum östlichen Baufeldrand benötigt der Bruchvorgang in der Berechnung etwa 2,2 Sekunden (Abb. F.81, Kurve 3).

In Abb. F.81 ist ebenfalls das berechnete vertikale Verschiebungsfeld im Gebirge zu verschiedenen Zeitständen dargestellt. Die dynamisch eingetretene Absenkung der Tagesoberfläche erreicht in der Berechnung im Senkungszentrum nach dem Ausschwingen etwa 1, vom Betrag her die gleiche Größenordnung wie in der nach dem Gebirgsschlag durchgeführten Senkungsmessung.

1.3 Beanspruchung der geologischen Barriere

Für den statischen Ausgangszustand vor dem Gebirgsschlag ergeben die Berechnungen, abgesehen von den die Abbauhohlräume unmittelbar umgebenden Auflockungszonen, dass die hangende und liegende Steinsalzbarriere frei von Dilatanz sind. Das bedeutet, dass die im Zusammenhang mit dem quasistatisch ablaufenden Konvergenzund Senkungsprozess stehende Abbaueinwirkung in den geologischen Barrieren keine Gefügeschädigung hervorgerufen hat, welche die Dichtwirkung beeinträchtigt. Die Primärpermeabilität des Steinsalzes ist in den Barrieren erhalten geblieben. Auch die minimale Hauptspannung in den salinaren Barriereschichten liegt deutlich über der theoretisch möglichen hydraulischen Druckbelastung.

Die Dichtheit der geologischen Barrieren ist damit selbst im flächenhaft ausgedünnten Unteren Werra-Steinsalz unter dem östlichen Baufeldrand unter statischen Bedingungen gewährleistet. Dieses Berechnungsergebnis ist konform mit den Erfahrungen und Beobachtungen vor dem Gebirgsschlag, die keinerlei Hinweise auf eine Verletzung der

Dichtheit und Barriereintegrität ergaben. Unter statischen bzw. quasistatischen Randbedingungen wäre dieser Zustand aufrechterhalten geblieben. Grund hierfür ist die Kriechfähigkeit der Salinargesteine, die bei Aufrechterhaltung ausreichender Einspannbedingungen und dilatanzfreier Verformungen die Primärpermeabilität der Schutzschichtgesteine erhält, selbst wenn sich die Barriereschichten durch die kriechbedingte Hohlraumkonvergenz im Meterbereich verlagern.

Anders stellt sich die Situation unter dynamischen Belastungsbedingungen dar. Bei dynamischen Beanspruchungen sind Kriechverformungen nicht maßgebend, das Gestein reagiert vor allem elastisch. Unter diesen Bedingungen können sich viel größere und weitreichendere Spannungsumlagerungen vollziehen in deren Folge dilatante Verformungen mit Gefügeschädigungen einhergehen (Abb. F.79 und Abb. F.80).

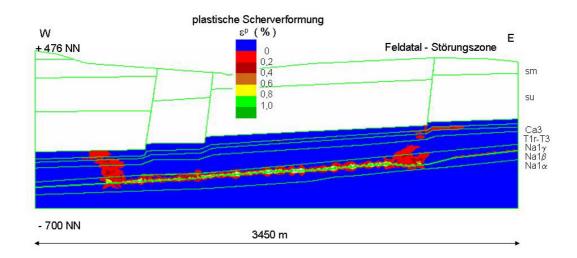
Durch den Implosionsvorgang im Abbauhorizont in Verbindung mit einer momentanen elastischen Hangend- und Liegendentspannung werden bei Gebirgsschlägen im Carnallitit extreme Beanspruchungen in den umgebenden salinaren Barriereschichten hervorgerufen, die ein Vielfaches derjenigen bei quasistatisch ablaufender Hohlraumkonvergenz betragen. Gebirgsschläge stellen somit für die geologischen Barrieren worstcase-Situationen dar.

Durch adäquate Simulation derartiger Herdprozesse in gebirgsmechanischen Berechnungsmodellen können die Grenzen der Belastbarkeit salinarer Barrieren analysiert werden, aus denen sich Rückschlüsse für erforderliche Mächtigkeiten langzeitsicherer geologischer Barrieren ableiten. Aus der Analyse quasistatischer Verformungsprozesse und Berechnungen lassen sich diese sicherheitsrelevanten Aussagen zum Barriereverhalten nicht ableiten.

Zum Nachweis der Barrierenintegrität sind das Dilatanz- und Minimalspannungskriterium von entscheidender Bedeutung.

Wenige Sekunden nach Auslösung des Gebirgsschlages sind als Folge der elastischen Reaktionen erhebliche Spannungsumlagerungen und Schädigungen im Abbauhorizont und im umgebenden Gebirge eingetreten. Der Vergleich der berechneten minimalen Hauptspannung im Gebirge vor und 6 Sekunden nach dem Gebirgsschlag zeigt, dass entspannte Gebirgsbereiche vornehmlich über und unterhalb des Bruchfeldrandes weit in das umgebende Gebirge hineinreichen. Die Scherverformungen sind im Hangenden über den Bruchfeldrändern stärker ausgeprägt. Im Bereich der Bruchfeldränder kon-

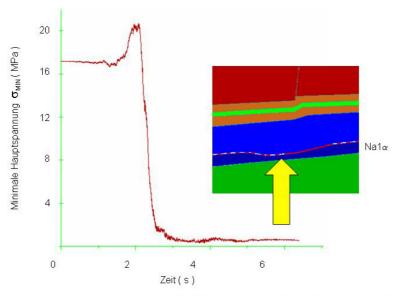
zentrieren sich auch die Scherverschiebungen an Schichtflächen im umgebenden Salzgebirge (Abb. F.82).



Modell Westfeld Merkers: Plastische Scherverformung 6 Sekunden nach Gebirgsschlag

Abb. F.82 Beanspruchung der geologischen Barrieren

Obwohl die Beanspruchungen der hangenden geologischen Barriere größer sind als die der liegenden Barriere, kann das geschichtete Mehrbarrierensystem im Hangenden seine Schutzfunktion aufrechterhalten, während in der geologischen Barriere zum Liegenden hin schützende, plastisch reagierende Gebirgsschichten fehlen.



Modell Westfeld Merkers: Abfall der minimalen Hauptspannung an der Basis des Unteren Werra – Steinsalzes beim Gebirgsschlag

Abb. F.83 Darstellung von σ_{min} des Gebirgsschlages

Das Gasfracanalogon Merkers infolge des Gebirgsschlages 1989 - Wiederherstellung der Barriereintegrität (Wolfgang Minkley)

Wie aus Abb. F.82 ersichtlich, reichen plastische Scherverformungen mit dilatanter Gefügeauflockerung von der Kammersohle am östlichen Bruchfeldrand bis an den Unteren Werra-Anhydrit heran. Die in größerer Entfernung von der Kammersohle eintretenden Dilatanzbeträge im Unteren Werra-Steinsalz sind relativ gering, so dass die Permeabilität allein durch den Auflockerungseffekt nur marginal erhöht worden wäre. Entscheidend für das Versagen der Liegendschutzschicht sind die dynamisch hervorgerufenen Spannungsumlagerungen unter dem östlichen Bruchfeldrand, wo der kettenreaktionsartige Pfeilerzerstörungsvorgang zum Stehen gekommen ist. Nach Durchlaufen der Druckwelle vor der Bruchfront ist verbunden mit dem Konvergenzsprung im Abbauhorizont die minimale Hauptspannung an der Basis des Unteren Werra-Steinsalzes im Gebiet der Ausdünnung unter dem Bruchfeldrand schlagartig auf wenige Megapascal abgefallen (Abb. F.83).

Als Folge sind im Gebiet der Feldatal-Störung, mit der flächenhaften Ausdünnung des Unteren Werra-Steinsalzes auf weniger als 30 m, unter dem östlichen Bruchfeldrand infolge der dynamischen Beanspruchung sowohl das Dilatanzkriterium (hier nicht weiter dargestellt) als auch infolge der vorhandenen Gasakkumulationen im Subsalinar das Frac-Kriterium verletzt.

In der Berechnung zur Überprüfung des Frac-Kriteriums wurde von einem

Fluiddruck p_{Fl} = 7,5 MPa, dh. einem CO₂-Druck, wie er in den Bohrungen Schorngraben 2 und 3 angetroffen wurde,

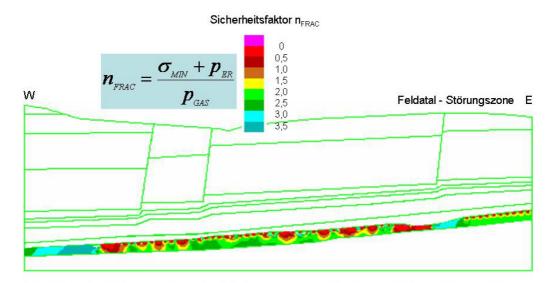
sowie von einem

Durchtrittsdruck $P_{ER} = 0.5 \text{ MPa}$

ausgegangen

Aus dem berechneten sekundären Spannungsfeld nach dem Gebirgsschlag wird deutlich, dass der Sicherheitsfaktor gegenüber einem Aufreißen der liegenden Steinsalzbarriere im Bereich der Ausdünnung des Unteren Werra-Steinsalzes durchgehend vom Niveau der Abbausohle bis zur Oberkante des Unteren Werra-Anhydrits mit $n_{FRAC} \le 0,5$ weit unter 1 liegt (Abb. F.84). Bei anstehendem Gasdruck an der Basis des Unteren Werra-Steinsalzes in der angegebenen Größenordnung musste es zwangsläufig infol-

ge des Gebirgsschlages in besagtem Gebiet aufgrund der starken Liegendentspannung mit Scherdilatanz zu einem Gasfrac kommen.



Modell Westfeld Merkers: Sicherheitsfaktor gegenüber Gasfrac im Unteren Werra – Steinsalz 6 Sekunden nach Gebirgsschlag

Abb. F.84 Minimalspannungskriterium

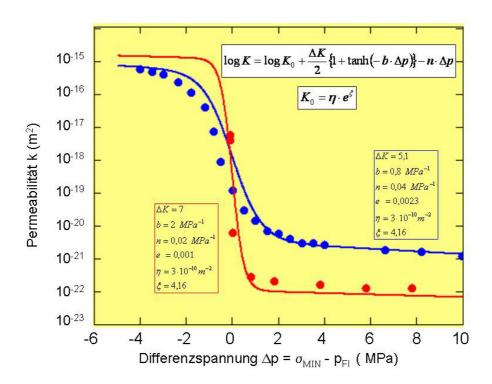


Abb. F.85 Permeabilität als Funktion der Differenzspannung

Unter Verwendung der in Abb. F.85 dargestellten und auf Basis aktueller experimenteller Gasinjektionstests für unverritztes Steinsalz neu abgeleiteten Beziehung (vgl. Beitrag *Popp & Minkley*) lässt sich die Permeabilität in der Liegendschutzschicht für die Differenz zwischen minimaler Gebirgsspannung und Gasdruck berechnen (Abb. F.86). Die Primärpermeabilität im Steinsalz von $k = 10^{-22} \text{ m}^2$ ist in den Bereichen unter den Kammersohlen durch Entspannung und Auflockerung deutlich erhöht, jedoch nur im Bereich der Steinsalzausdünnung ist eine bis zur Oberkante des Unteren Werra-Anhydrits durchschlägige, hochpermeable Zone mit $k \approx 10^{-14} \text{ m}^2$ ausgebildet.

Wie durch diese Rechnung nachvollzogen, ist unmittelbar nach dem Gebirgsschlag in den Orten 19 und 20 nach Süden der 7. südlichen Abteilung nach Westen, also am südöstlichen Bruchfeldrand, aus Rissen und Spalten in der Streckensohle austretendes CO₂ festgestellt worden (vgl. Abb. F.86).

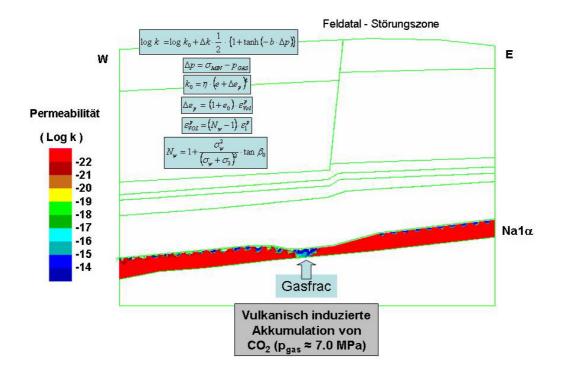


Abb. F.86 Permeabilität im Unteren Werra-Steinsalz

2 Aufschluss der Gas-Frac geschädigten Zone durch eine Bohrung

Ziel der Arbeiten war ein direkter Aufschluss der ehemaligen Gasfraczone in der liegenden Steinsalzbarriere Merker durch eine Bohrung, wobei die Bohrung so gerichtet wurde, dass sie mit einer Länge von 242,6 m bis in den mutmaßlich Gasfracgeschädigten Bereich ca. 15 m unterhalb des Orts 19 führte (Abb. F.87). Nach Errei-

chen des Zielbereichs bei ca. 243 m wurde an der abgedichteten Bohrung ein Druckanstieg beobachtet.

Das erbohrte Kernmaterial aus der mit NaCl-Laugenspülung durchgeführten Bohrung ist von hervorragender Qualität. Das mittelkörnige Steinsalz ist augenscheinlich extrem homogen ausgebildet und weist eine gut erkennbare Schichtung auf. Die Kernstücke haben eine Länge zwischen 10 bis max. 30 cm. Als Besonderheit treten nur im Bereich der letzten 10 Bohrmeter nahezu quer zur Schichtung drei Klüfte auf, von denen zwei offenbar verheilt und eine offen ist (Abb. F.87).

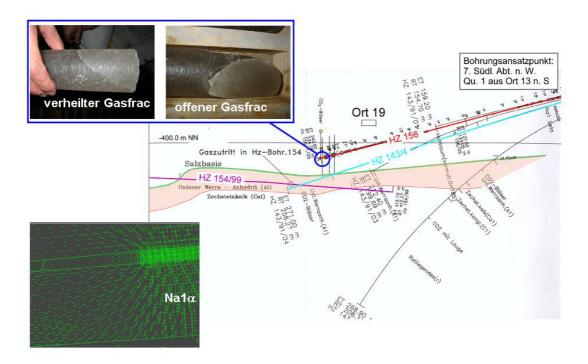


Abb. F.87 Geologischer Rahmen

Verheilt heißt hier, dass die Risse bzw. Klüfte (bergmännisch als Schnitte bezeichnet) jeweils noch erkennbar sind, dass aber die mechanische Integrität wieder vorliegt. Bei einer einzelnen, vollständig verheilten Rissfläche geht die beim Bohren und Abreißen des Kernstücks neu entstandene Bruchfläche durch sie hindurch, ohne dass es zu einem Aufreißen der ehemaligen Kluftflächen gekommen ist. Auffällig ist, dass die Rissorientierung nahezu ideal der Spannungsverteilung im Nahbereich entspricht wie sie durch die vorab diskutierten Modellrechnungen ausgewiesen werden.

Diese Ergebnisse zeigen, dass die Gasfraczone aus einem Netzwerk lokaler Klüfte besteht, die teilweise verheilt sind, dass aber auch noch gasführende Klüfte vorliegen.

2.1 Gasdruckmessungen in der Bohrung 156

Ziel der Druck- und Gaszutrittsmessungen im Bohrloch ist die Bestimmung der Reichweite des angetroffenen Kluftnetzwerkes insbesondere mit Blick auf die Integrität der vorhandenen 30 m mächtigen Liegendsteinsalzbarriere.

Die Gaszutrittsmessungen in der Bohrung umfassen verschiedene Testkonstellationen, wobei zwischen einfachen Druckaufbaumessungen infolge des nach wie vor vorhandenen CO₂-Zutritts in die komplett verschlossene Bohrung bzw. bei unterschiedlichen Packerpositionen und aktiven Drucktests, bei denen kontrolliert Gas ins Bohrloch injiziert und der Druckabfall beobachtet wurde, unterschieden werden muss. Bei Letzterem wurde jeweils vor- oder nachher der Gasdruck in dem abgepackerten Bohrlochbereich kontrolliert abgesenkt und dabei die jeweils austretende Gasmenge mit dem Ziel der Bestimmung des effektiven Gasvolumens gemessen.

Zusätzlich wurde in Abstimmung mit K+S ein Versuch durchgeführt, bei dem die Förderbohrung 143/4 verschlossen wurde. Mittels des dadurch induzierten Druckanstieges im darunter liegenden gasführenden Werra-Anhydrit sollte ein möglicher Effekt auf die ehemalige Gasfraczone überprüft werden.

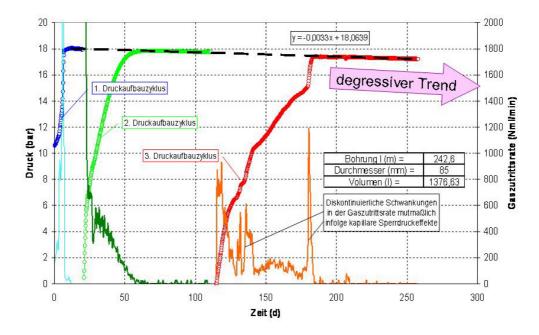


Abb. F.88 Vergleich des Druckaufbaus in drei Zyklen (HZ 156)

Während der Erstellung der Bohrung wurde nach Erreichen der Gasfraczone mit einer Bohrlochlänge von etwa 243 m eine deutliche Gasentwicklung beobachtet, die inner-

halb der verschlossenen Bohrung annähernd zu einem Gasdruckanstieg von etwa 18 bar führte. Nach Installation einer Datenaufzeichnung konnte über einen Zeitraum von etwa einem Jahr die Druckentwicklung im Bohrloch kontinuierlich beobachtet werden, wobei das Bohrloch mehrfach entspannt und die Messung wiederholt wurde. Zusätzlich wurden nach Einbringen des Hydrofracsystems in unterschiedlichen Bohrlochteufen zwei weitere Druckaufbaumessungen bei Packerposition 210 m und 230 m durchgeführt.

In die Bohrung tritt über den gesamten Untersuchungszeitraum CO₂ zu, wobei aber die Zutrittsmengen mit der Zeit abnehmen. Die Übersichtsdarstellung in Abb. F.88 der drei Messungen im verschlossen Bohrloch zeigt, dass in den drei Versuchsabschnitten nach erfolgter Entspannung des Bohrlochs der Druck mit jedem neuen Abschnitt langsamer bis auf einen Endwert in der Größenordnung von ca. 18 bar ansteigt, wobei dieser Enddruck im Bohrloch nach Erreichen eines Maximaldrucks mit einer mittleren Druckabfallrate von ca. 3 mbar/d stetig fällt.

Eine wichtige Fragestellung mit Blick auf die Reichweite von Gasfracereignissen sowie zur Phänomenologie von Gasdurchtrittszonen ist, ob ein räumlich und volumenmäßig begrenztes Reservoir oder ein interkonnektierendes Kluftnetzwerk vorliegt. Zur Begrenzung eines möglichen Gasdruckanstieges wird in einer älteren Bohrung HZ 143/4 (Endformation Werra-Anhydrit (A1 bzw. z1WA)) unterhalb der Steinsalzbarriere kontinuierlich CO₂ abgefördert.

Über einen begrenzten Zeitraum wurde die Förderbohrung 143/4 verschlossen und in den benachbarten Horizontalbohrungen (Forschungsbohrung HZ 156 sowie die Kontrollbohrung HZ 154/99) ein möglicher Gaszutritt beobachtet. Hierfür wurde an der Bohrung 156 ein Flowmeter zur Bestimmung der direkten Gasaustrittrate bei einem konstanten geringen Innendruck in der Bohrung installiert.

Die in Abb. F.89 dargestellten Messkurven zeigen keine Veränderung des Gasdurchflusses in der Bohrung 156 auftritt. Somit gibt es keine Beeinflussung des in der Steinsalzbarriere vorhandenen Gasvolumens durch die Manipulationen des primär gasführenden Werra-Anhydrits im Liegenden der Barriere. Hingegen kommt es in der im gasführenden Werra-Anhydrit liegenden Überwachungsbohrung 154 infolge des dort lokal vorhandenen Kluftnetzwerkes zu einem spontanen Druckanstieg.

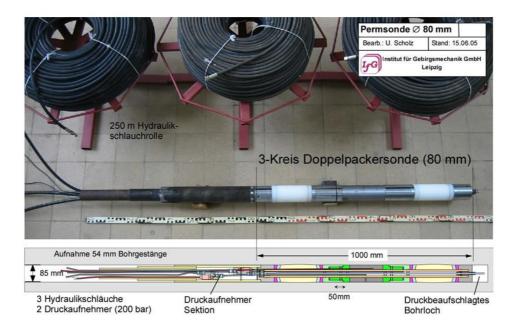


Abb. F.89 80 mm Fracsonde

2.2 Hydrofrac- und Druckaufbaumessungen in der Bohrung 156

Die von Minkley durchgeführten gebirgsmechanischen Rechnungen weisen aus, dass unmittelbar nach dem Gebirgsschlag die dynamischen Schädigungsprozesse abgeklungen sind und somit wieder die viskosen Deformationsprozesse zunehmend mit der Zeit an Bedeutung gewinnen. Im Laufe der ca. 16 Jahre nach dem Gebirgsschlag sollten kriechbedingt erhebliche Spannungsumlagerungen abgelaufen sein und der Einspannungszustand in den den Abbauhorizont umgebenden Salinarbarrieren sich in Richtung auf den Zustand vor dem Gebirgsschlag zu bewegt haben. Zum Nachweis dieser "Verheilungshypothese" in der Gasfrac-geschädigten Steinsalzbarriere wurden in der Bohrung 156 mit einem für die untertägige Situation angepasst entwickelten Hydrofracsystem Spannungs- und Druckaufbaumessungen sowie Gasinjektionsversuche durchgeführt.

2.2.1 Packerinstallation

Die für die Hydrofracmessungen in der Bohrung 156 eingesetzte 80-mm-Frac-Doppelpackersonde entspricht qualitativ den Sondensystemen, die auch in den Bohrlochdauertests an den Standorten Bernburg und Sigmundshall eingesetzt werden (Abb. F.89). Jedoch wurden von der vorliegenden Doppelpackerkonstruktion ausgehend die Durchmesser der Packer und Widerlager vergrößert, wobei der gewählte 80mm-Durchmesser gegenüber der 85-mm-Bohrung eine entsprechende Reserve für die Installation entsprechend der in der Teufenlage zu erwartende Bohrlochkonvergenz bedeutet.

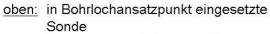
Der Packer wird über ein steifes Bohrlochgestänge bis in den zu prüfenden Bereich geschoben (Abb. F.90 und Abb. F.91).





Abb. F.90 Installation der 80-mm-Fracsonde





rechts: Schlauch-und Kabelverlauf im Gestängeinnenraum



Abb. F.91 Situation am Versuchsort

2.2.2 Aktive Gasinjektion bei Packerposition 230 m

Nachdem der Gaszutritt während der Beobachtungszeit kontinuierlich abnahm, wurde an der Packerposition 230 m über eine Stickstoffflasche stufenweise Gas ins abgepackerte Bohrlochende injiziert, wobei entsprechend dem Formationsdruck ein maximaler Gasdruck von 75 bar vorgegeben wurde. Der Druckverlauf im Bohrloch bzw. die bestimmten effektiven Gasvolumina sind in Abb. F.92 dargestellt.

Offenbar findet mit Erhöhung des Gasdruckes in der Bohrung eine Vergrößerung des gaszugänglichen Volumens statt, wobei damit ein immer größeres Rissvolumen erschlossen wird, wie die zunehmende Gasdruckbeladung des Hohlraumes ausweist, wobei es aber nicht zu einem Frac kommt.

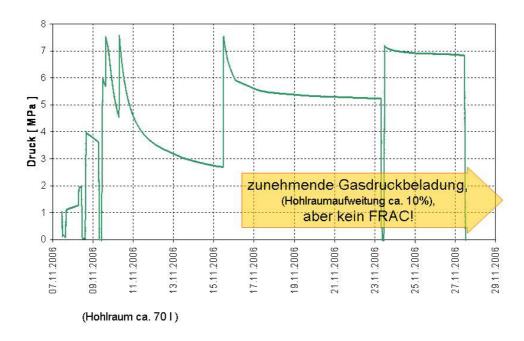


Abb. F.92 Aktive Gasinjektion in 230 Bohrlochteufe

2.2.3 Hydrofracspannungssondierungen

Entlang der Bohrung wurden an 13 Positionen Fracmessungen (jeweils mit Refrac, z.T. auch mit Wiederholungsmessungen) durchgeführt, deren Ergebnisse in Relation zur geologischen Situation am Messort Merkers als Funktion der Bohrlochteufe in Abb. F.93 zusammengefasst sind.

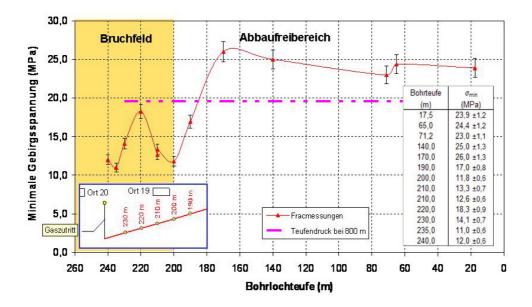


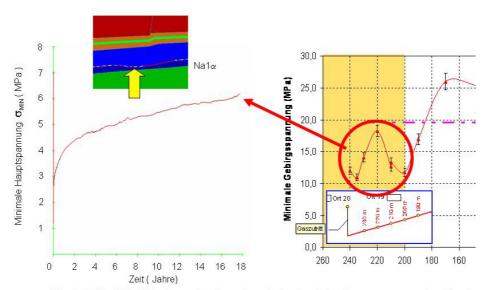
Abb. F.93 Minimalspannung entlang der Bohrung

Entscheidend für die Fragestellung ist der Spannungsverlauf zwischen dem Abschnitt 180 m und 240 m in der Bohrung, d.h. in Richtung der farblich gekennzeichneten Gebirgsschlagzone. Die Messwerte dort variieren zwischen 12 und 18 MPa, wobei jeweils eine deutliche Zuordnung zu dem darüber liegenden Kammer-Pfeiler-System besteht. Unterhalb einer Kammer ist der Spannungszustand aufgrund der Hohlraumeinwirkung deutlich reduziert und im Bereich eines Pfeilers erhöht. Unabhängig davon ergibt sich eine signifikante Abnahme in Richtung Bohrlochende, d.h. dort wo die Gasfraczone liegt, wobei aber dennoch Spannungswerte in der Größenordnung von 10 MPa ausgewiesen werden. Damit ist die Wiederherstellung der mechanischen Integrität nachgewiesen.

2.2.4 Rückrechnung Wiederherstellung der Barrierenintegrität

Etwa 10 Sekunden nach der Gebirgsschlagauslösung waren die dynamischen Erschütterungen und Schwingungen im Gebirge abgeklungen. Nach den Gesteinszerstörungen und elastischen Gebirgsreaktionen gewannen wieder zunehmend die viskosen Deformationsprozesse an Bedeutung.

Die Wirkung dieser Kriechprozesse lässt sich ebenfalls durch die visko-elastoplastische Modellierung im Nachgang des Gebirgsschlages abbilden. Die in Abb. F.94 dargestellte Rechenkurve belegt, dass innerhalb eines Zeitraumes von wenigen Jahren, die minimale Gebirgsspannung im Bereich der ehemaligen Gasfraczone von kurzfristig nur etwa 1 MPa zunächst deutlich und dann langsamer aber kontinuierlich bis heute (nach 18 Jahren) auf einen Wert in der Größenordnung von 6 MPa ansteigt. Die experimentellen Spannungssondierungen in diesem Bereich weisen Spannungswerte in der Größenordnung von σ_{min} = >10 MPa aus.



Modell Westfeld Merkers: Anstieg der minimalen Hauptspannung an der Basis des Unteren Werra – Steinsalzes nach Gebirgsschlag

Abb. F.94 Wiederherstellung der Barrierenintegrität (heute)

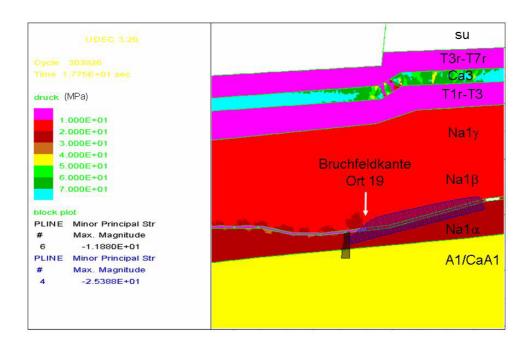


Abb. F.95 Berechnete minimale Spannungsverteilung

Die Ursache für die Abweichungen zwischen Modellrechnung und Messung resultiert mutmaßlich aus den konservativ angesetzten Randbedingungen. In den Modellrechnungen wird nur der mechanische Effekt der Spannungsumlagerung berücksichtigt, während in der Praxis feuchte-induzierte Prozesse die Effizienz möglicher Verheilungsprozesse deutlich erhöhen können. Unabhängig davon stimmt der qualitative Trend für den Verlauf der minimalen Spannungsverteilung entlang der Bohrung, wie er durch die Modellrechnung ausgewiesen wird, sehr gut mit den Messungen überein (Abb. F.95).

3 Zusammenfassung und Bewertung

Mit der im Rahmen des Forschungsvorhabens SR 2470 durchgeführten Bohrung 156 wurde erstmals die im Zusammenhang mit dem Gebirgsschlag 1989 induzierte Gasfraczone direkt erbohrt. Dabei wurde durch den Gasfrac geschädigtes Steinsalz angetroffen, wobei sowohl verheilte als auch offene und gasführende durchgehende Klüfte bzw. Schnitte nachgewiesen werden konnten. In der Gasfraczone liegt keine integral zerrüttete mechanische Störungszone vor, sondern es dominieren diskrete Wegsamkeiten.

In die Bohrung traten unmittelbar mit Erreichen der Gasfraczone signifikante CO₂-Gasmengen zu, die aber in der anschließenden Beobachtungsphase sukzessive zurückgehen. Die in der verschlossenen Bohrung durchgeführten Druckaufbaumessungen zeigen anfänglich einen maximalen Gasdruck in der Höhe von ca. 18 bar, der mit zunehmender Ausgasung im Laufe der ca. 1,5-jährigen Beobachtungszeit abnimmt, wobei auch die Zeit zum Erreichen des Druckgleichgewichts länger wird.

Als Interpretation wird davon ausgegangen, dass mit der Bohrung gasimprägnierte Bereiche, d.h. mit Akkumulation von Gas auf Klüften sowie vernetzten Hohlräumen, angetroffen worden sind, die infolge ihrer Entgasung den anfänglich schnellen Druckanstieg bewirkt haben. Da diese Bereiche während der Beobachtungszeit progressiv entgasen und weiterhin infolge des verringerten Innendrucks mechanisch die Wegsamkeiten geschlossen werden, ist der Gaszutritt aus dem noch angeschlossenen aber lokal begrenzten Reservoir deutlich reduziert.

Durch einen Verschluss der Förderbohrung 143/4, die ansonsten zur Entlastung des gasführenden Werra-Anhydrits dient, wurde nachgewiesen, dass offenbar keine hydraulische Wegsamkeit vom Liegenden zu dem mit der Forschungsbohrung 156 ange-

troffenen Gasreservoir in der Steinsalzbarriere mehr besteht. Dies wird durch den drastischen Druckanstieg in der ebenfalls überwachten Kontrollbohrung 154 belegt, die aber im klüftigen Werra-Anhydrit endet und somit an das primäre Gasreservoir im Liegenden angeschlossen ist.

Mit Hydrofracmessungen entlang der 250 m langen Bohrung wurden unmittelbar im Bereich der ehemaligen Gasfraczone Messwerte für die minimale Gebirgsspannung (σ_{min}) in der Größenordnung von \geq 10 MPa nachgewiesen.

Insgesamt wird mit den gewonnenen Ergebnissen nachgewiesen, dass es sich bei der angetroffenen Gasfraczone nur noch um ein räumlich begrenztes Kluftsystem handelt, dass sich ursprünglich als Folge der dynamischen Entlastung beim Gebirgsschlag infolge des stattfindenden Gasdurchschlags gebildet hat. Obwohl die Kerne der Bohrung nicht orientiert gewonnen worden sind, weist das Einfallen der Klüfte, wie sie in der Bohrung quer zur Bohrkernachse angetroffen wurden, in der Verlängerung genau auf den Ort 19 hin, der vermutlich druckentlastend gewirkt hat (Abb. F.87). Im Detail drehen die Klüfte, je weiter man nach Osten kommt, sogar zum Ort 19 hin. Dort finden sich in der Sohle offen stehende Klüfte, die ehemals gasführend waren. Diese Beobachtung deckt sich mit den durch die Modellrechnungen ausgewiesenen Spannungstrajektorien.

Mit den gleichzeitig durchgeführten Simulationsrechnungen wurden schlüssig die besonderen geotechnischen Rahmenbedingungen aufgezeigt, unter denen es im Nachgang des Gebirgsschlages zu einem Gasaustritt durch die geologische Barriere mit einer anschließenden Verheilungsphase kam. Dies sind die großenflächig und spontan erfolgte Absenkung der minimalen Hauptspannung und die aus hochgespannten CO₂-Akkumulationen im Liegenden unterhalb der Steinsalzbarriere resultierende Gasdrucküberbelastung. Die mutmaßlichen Ausbreitungswege des CO₂ korrespondieren im Ergebnis der berechneten Spannungsverteilung mit dem geologischen Befund in der Bohrung. Dabei ist wichtig festzuhalten, dass die gasfrac-geschädigte Zone als diskretes Kluftnetzwerk mittlerweile wieder zzumindest teilweise verheilt ist.

Der Nachweis dieser zeitlich bedingten Wiederherstellung der Barrierenintegrität aufgrund viskoplastischer Verformungsprozesse im Steinsalz ist von großer praktischer Bedeutung für den Nachweis der Langzeitsicherheit der geologischen Barrieren um Untertagedeponien und Endlager. Ebenfalls ein Beleg dafür, dass Gas-Fracrisse im Steinsalz bei minimalen Hauptspannungen, die größer als der Gasdruck sind, wieder

verheilen, ergibt sich über die vielerorts im Kalibergbau an der Werra angetroffenen gasführenden Schnitte, die über geologische Zeiträume das während des Basaltvulkanismus in Fracrissen eingeschlossene Kohlensäuregas (CO₂) bewahrt haben. Gleichzeitig liefert die Koinzidenz der Ergebnisse einen Beleg für die Güte des verfügbaren rechentechnischen Instrumentariums, das somit auch für Simulationsrechnungen für ein Endlager zur Verfügung steht.

4 Literatur

- Käding, K.-Ch. & Lukas, V., 1997. Untertageradar (EMR) als Planungsinstrument im Salzbergbau. Kali und Steinsalz, 12, 5: 151-157
- Nierste, G. & V. Bräuer, V. (2003). Natürliche Analoga im Hinblick auf ihre Verwendbarkeit bei der Verfahrens- und Kriterienentwicklung des Arbeitskreises Auswahlverfahren Endlagerstandorte. 28 S., www.akend.de/aktuell/berichte/pdf/nierste-braeuer.pdf
- Minkley, W., 2004. Back analysis rock burst Völkershausen 1989. In: Proc. 1st Int. UDEC/3DEC Symposium Bochum, 29.09.-01.10.2004, A.A. BALKEMA PUBLISH-ERS, 105-112.
- Minkley, W.; Menzel, W.; Konietzky, H.; te Kamp, L., 2001. A visco-elasto-plastic model and its application for solving static and dynamic stability problems in potash mining. In: Proc. 2nd Int. FLAC Symposium Lyon, 29.-31.10.2001, A.A. BALKEMA PUBLISHERS, 21-27.
- Minkley, W. & Brückner, D., 2003. Gutachterliche Bewertung von carnallitischen Baufeldern der Grube Merkers und Unterbreizbach: Liegendschichtversagen. Institut für Gebirgsmechanik Leipzig.

G Vorgehensweise zur Beherrschung von Gasen in einem Endlager im Salzgestein (Nina Müller-Hoeppe)

1 Zusammenfassung

Der Einfluss der Gasbildung auf die Endlagersicherheit wird immer wieder diskutiert. Dies gilt insbesondere, wenn das Wirtsgestein sehr dicht ist, wie z.B. Salzgestein. Ungeachtet einer Vielzahl phänomenologischer und sicherheitsanalytischer Untersuchungen wurden systematische Ansätze zur Beherrschung von Gasen im Endlager bisher nicht entwickelt. In diesem Beitrag wird eine systematische Vorgehensweise beschrieben, die ingenieurtechnisch angewendet wird, um unerwünschte Einwirkungen zu beherrschen. Am Beispiel Gasbildung in Folge Metallkorrosion und mikrobieller Zersetzung werden Optionen bzw. eine Kombination von Optionen zur Beherrschung von Gasen für ein Endlager im Salzgestein aufgezeigt.

2 Einleitung

Gase bzw. Gasbildung führen in einem Endlager im Salzgestein ggf. zu ungünstigen Einwirkungen auf die einschlusswirksamen, natürlichen und technischen Barrieren wie Hauptsalz, Schacht- und Streckenverschlüsse in Form erhöhter Gasdrücke. Dieser Sachverhalt wird insbesondere diskutiert, wenn die Verschlussbauwerke die an sich gewünschte hohe Dichtigkeit aufweisen und die geologische Barriere intakt und ebenfalls dicht ist. Bei höher permeablen Barrieren kann die Einwirkung Gasdruck i.d.R. vernachlässigt werden. Im Falle dichter Barrieren ist zu prüfen, ob und inwieweit erhöhte Gasdrücke auftreten können, da dichte geologische und geotechnische Barrieren zwangsläufig zu einer Begrenzung des für die Gasbildung notwendigen Feuchtigkeitsangebotes führen. Im Salinar selbst ist nur ein geringes Feuchtigkeitsangebot vorhanden. Ggf. ist Vorsorge zu treffen, dass die erhöhten Gasdrücke nicht zu einer Schädigung der dichten geologischen und geotechnischen Barrieren führen.

3 Vorkommen und Bildung von Gasen im Endlager im Salzgestein

Im Hinblick auf Gase im Endlager ist zu berücksichtigen, dass im ungestörten Salzgestein natürliche Gasvorkommen vorhanden sind. Diese Gase können grundsätzlich durch eine auffahrungsbedingte Druckentlastung mobilisiert werden. Diese auffahrungsbedingte Gasfreisetzung ist bergbaubedingt und erfolgt vor Einlagerung radioaktiver Abfälle. Die Beherrschung dieser Art von Gasfreisetzung ist Stand der Technik im Bergbau, für die Nachbetriebsphase eines Endlagers ist sie ohne Bedeutung. Es besteht durch die Erkundung die Möglichkeit, natürliche Gasvorkommen größeren Ausmaßes zu umgehen. Weiterhin kann die spätere Mobilisierung natürlicher Gase durch die thermische Einwirkung von wärmeentwickelnden, radioaktiven Abfällen erfolgen. Die Freisetzung von natürlichen Gasen durch das Einbringen von Wärme in das Salinar wurde z.B. im Rahmen des Demonstrationsversuchs zur thermischen Simulation der Streckenlagerung (TSS) festgestellt (Kernforschungszentrum Karlsruhe, 1994). Eine detaillierte Quantifizierung erfolgte nicht. Auch wurde das Verdampfen kleiner Mengen freier Salzfeuchte bei hohen Temperaturen festgestellt. Sie kondensiert jedoch in Bereichen geringerer Temperatur wieder und führt deshalb nicht zum Druckaufbau an sicherheitstechnisch relevanten Barrieren. In diesem Beitrag wird daher auf die natürlich im Salinar vorkommenden Gase nicht weiter eingegangen.

Des Weiteren ist eine Gruppe von Gasen zu betrachten, die durch die Einlagerung von Behältern mit radioaktiven Abfällen erst entstehen. In Müller (2000) sind folgende Gasbildungsmechanismen aufgeführt:

- Radiolyse
- Metallkorrosion
- Mikrobielle Zersetzung
- Sonstige

Bei der Radiolyse wird die innere und die äußere Radiolyse unterschieden. Die innere Radiolyse findet im Abfallgebinde selbst statt. Sie ist bei schwach und mittelaktiven Abfällen durch die geringe Aktivität begrenzt und vernachlässigbar. Bei hochaktiven Abfällen und ausgedienten Brennelementen ist die innere Radiolyse durch die geringe Menge an Material im Behälter begrenzt, das durch Radiolyse auf gespalten werden kann. Dies gilt, solange keine Feuchtigkeit in das Abfallgebinde zutritt. Die äußere Radiolyse kann bei schwach- und mittelaktiven Abfällen ebenfalls vernachlässigt werden. Bei

G Vorgehensweise zur Beherrschung von Gasen in einem Endlager im Salzgestein (Nina Müller-Hoeppe)

hochaktiven Abfällen und ausgedienten Brennelementen ist die Radiolysegasbildung abhängig von der Abschirmung und vom vorhandenen Wasserangebot. Dabei ist zu berücksichtigen, dass im Zusammenhang mit Radiolyse auch gebundenes Wasser zu berücksichtigen ist. Dies betrifft im Salinar das in der Salzstruktur gebundene Kristallwasser. Die Menge an Radiolysegas wird jedoch im Vergleich zu den anderen o.g. Gasbildungsmechanismen als gering eingestuft und in diesem Beitrag nicht gesondert betrachtet.

Als relevante Gasbildungsmechanismen werden Metallkorrosion und mikrobielle Zersetzung betrachtet. Dabei gelten folgende, einschränkende Bedingungen für die Bildung relevanter Gasmengen:

- Die Bildung relevanter Gasmengen in Folge Metallkorrosion ist nur möglich bei Vorhandensein maßgeblicher Metallmengen sowie von freier Feuchte bzw. Salzlösung
- Mikrobielle Zersetzung setzt nur ein, wenn organische Stoffe vorhanden sind sowie Mikroorganismen bzw. alternative Zersetzungsprozesse möglich sind

Die Gasbildungsprozesse Metallkorrosion und mikrobielle Zersetzung benötigen mindestens zwei unabhängige Komponenten, um zu einer Gasbildung zu führen. Fehlt eine der Komponenten oder ist sie stark limitiert, führt dieser Sachverhalt automatisch zu einer Begrenzung der Gasbildung und wirkt einen möglichen Druckaufbau an den Barrieren entgegen.

Sonstige Gasbildungsmechanismen sind in Müller (2000) aufgeführt, werden aber hier nicht betrachtet, da sie mit Ausnahme der Hydrolyse von Aluminium als nicht relevant eingestuft werden. Aluminium kommt in größeren Mengen jedoch nur in einigen Arten schwach aktiver Abfälle vor.

4 Ingenieurmäßige Vorgehensweise zur Begegnung ungünstiger Einwirkungen

Wie bereits ausgeführt, stellt erhöhter Gasdruck auf der Innenseite von dichten Barrieren eine ingenieurmäßig ungünstige Einwirkung dar. In den Grundlagen des europäischen technischen Regelwerks für Baukonstruktionen (SIA, 1982) sind die grundsätzli-

chen Maßnahmen, mit denen ungünstigen Einwirkungen - in SIA (1982) als Gefahren bezeichnet - begegnet werden kann, wie folgt systematisiert:

- (1) Eliminieren der Gefahr am Gefahrenherd selbst
- (2) Umgehen der Gefahr durch Änderung der Absicht und/oder der Bauwerkskonzeption
- (3) Bewältigen der Gefahr durch Überwachung, Kontrollen oder Warnsysteme usw.
- (4) Überwältigen der Gefahr durch Vorhalten von Reserven
- (5) Übernehmen der Gefahr als akzeptiertes Risiko

Diese Vorgehensweise ist deshalb im Rahmen bautechnischer Nachweise akzeptiert. Sie ist sinngemäß auch auf geotechnische Barrieren anwendbar und in DIN EN 1990 (Stand Oktober 2000) und DIN EN 1997 (Stand Oktober 2005) weiter konkretisiert.

5 Konkretisierung der ingenieurmäßigen Vorgehensweise

Konkretisiert man die o.g. abstrakt formulierte Vorgehensweise im Hinblick auf Maßnahmen zur Beherrschung der Einwirkung erhöhter Gasdrücke auf natürliche oder geotechnische Barrieren, ergeben sich folgende Optionen:

- (1) Vermeidung der Gasbildung bzw. Begrenzung der Gasbildung durch geeignete technische Maßnahmen
- (2) Entwicklung eines technischen Endlagerkonzeptes, das trotz Gasbildung nicht zu erhöhten Gasdrücken führt
- (3) Bewältigen der Gase durch Kontrollen und Warnsysteme (Option ist eingeschränkt auf die Betriebsphase des Endlagers)
- (4) Auslegen der Barrieren auf erhöhte Gasdrücke
- (5) Übernahme der Gefahr Barrierenschädigung in Folge erhöhter Gasdrücke als akzeptiertes Risiko

Wie bereits aufgeführt, ist die Option (3) auf die Betriebsphase des Endlagers beschränkt. Weiterhin bietet sich an, die Betrachtung von Option (5) zu Gunsten der Prüfung von Option (1), (2) und (4) zurückzustellen.

Zuerst sollte Option (1) geprüft werden, da ein Vermeiden ungünstiger Einwirkungen i.d.R. nicht nur die sicherste sondern auch die preiswerteste Lösung ist. Die Vermeidungsstrategie zielt im betrachteten Fall Metallkorrosion und mikrobielle oder sonstige Zersetzung von Organika darauf, jeweils eine der beiden unabhängigen Komponenten

G Vorgehensweise zur Beherrschung von Gasen in einem Endlager im Salzgestein (Nina Müller-Hoeppe)

zielgerichtet zu limitieren und damit automatisch die Gasbildung gering zu halten. Die Nachweisbarkeit dieser Limitierung ist dabei zu gewährleisten.

Im Hinblick auf die Metallkorrosion ist grundsätzlich unerheblich, was begrenzt wird, die Metallmenge oder die freie Feuchte. Dabei sind in Bezug auf die Metallmenge betriebliche Sicherheitsanforderungen konkurrierend zu berücksichtigen. Deshalb ist im ersten Schritt zielführend, zu prüfen, inwieweit die Menge an freier Feuchtigkeit natürlich begrenzt ist (Müller, 2000) und - falls erforderlich - welche technischen Maßnahmen die freie Feuchte reduzieren und wie zuverlässig diese Limitierung des Feuchteangebots nachweisbar ist.

In Bezug auf die mikrobielle Zersetzung organischer Stoffe ist festzustellen, dass die Zahl der Mikroorganismen im Salz sehr gering ist. Natürliche und historische Analoga zeigen die nur sehr kleinen Umsetzungsraten, jedoch ist die Prognostizierbarkeit über lange Zeiträume ebenso wie bei sonstigen Zersetzungsprozessen nur schwer zu belegen. Wird jedoch die Menge der organischen Stoffe begrenzt, folgt daraus automatisch eine Begrenzung der Gasmenge in Folge mikrobieller Zersetzung. Dabei sollte im ersten Schritt geprüft werden, inwieweit die Menge der Organika sinnvoll begrenzt bzw. minimiert werden kann.

Allerdings sollte eine Vermeidung bzw. Limitierung der Gasbildung nur innerhalb technisch vernünftiger Grenzen durchgeführt werden und nach diesem Schritt die Gasbildungsrate und akkumuliert die potentielle Gasmenge abgeschätzt werden. Ggf. ist die verbleibende Gasmenge so gering, dass ergänzend die Einrichtung kleiner, isolierter Gassammelräume bzw. die Nutzung natürlich vorhandener Gassammelräume in Form isolierter Anhydritschollen im Sinne der Anwendung von Option (2) die zielführende Variante ist.

Unterstellt man für diesen hier hypothetisch diskutierten Fall den erfolgreichen Nachweis der Begrenzung der Gasdrucks, wäre die Einwirkung erhöhter Gasdruck auf die dichten Barrieren vermieden und Option (4) müsste nicht mehr betrachtet werden. Diese Umgehung von Option (4) ist besonders vielversprechend, da bei Anwendung von Option (4) zu berücksichtigen ist, dass bei entsprechenden Randbedingungen analog zu Speicherkavernen Gasdrücke in der Größenordnung des petrostatischen Druckes der tiefsten Teufe angesetzt werden müssen. Die nachweisliche Beherrschung dieser hohen Gasdrücke über längere Zeiträume ist nach derzeitigem Kenntnisstand schwierig.

6 Ergebnis

Der Prozess Gasbildung in Folge Metallkorrosion sowie mikrobieller und sonstiger Zersetzung von Organika und seine Auswirkung wurden im Rahmen von Langzeitsicherheitsanalysen für Endlager im Salz schon betrachtet, insbesondere für schwach- und mittelradioaktive Abfälle. Es wurde dabei von der Umsetzung eines großen Anteils bzw. der vollständigen Umsetzung der Metalle und des organischen Materials ausgegangen. Das Feuchteangebot war kein limitierender Faktor. Dabei wurde nicht systematisch betrachtet, inwieweit ein großes Feuchteangebot der gestörten Endlagerentwicklung zuzuordnen ist, bei der i.d.R. eine Schädigung der einschlusswirksamen Barrieren bereits vorliegt.

Die Fragestellung, wie sich ein ungünstig erhöhter Gasdruck auf die dichten Barrieren für ein Endlager für hochradioaktive Abfälle und ausgediente Brennelemente systematisch vermeiden lässt, wurde bisher nicht untersucht. Orientierende Ergebnisse zur Gasbildungsrate sind in Müller (2000) angegeben.

Vor dem Hintergrund neuer Erkenntnisse zu Permeations- bzw. Infiltrationsprozessen (Lux, 2005) sollte ergänzend zur akkumulierten Gasmenge auch die Gasbildungsrate ermittelt werden. Neuere Ergebnisse sowie empirische Erfahrung zeigen, dass sehr kleine Druckaufbauraten nicht zur Schädigung dichter Barrieren führen. Diese Ergebnisse müssen jedoch weitergehend abgesichert werden.

7 Literatur

DIN EN 1990, Eurocode: Grundlagen der Tragwerksplanung; Teil 1: Deutsche Fassung EN 1990:2002, Stand Oktober 2002

DIN EN 1997-1, Eurocode 7: Entwurf, Berechnung und Bemessung in der Geotechnik

– Teil 1: Allgemeine Regeln: Deutsche Fassung EN 1997-1:2004, Stand

Oktober 2005

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, PTE, Thermische Simulation der Streckenlagerung – Demonstrationsversuch zur Direkten Endlagerung durchgeführt
im Salzbergwerk Asse gefördert vom Bundesministerium für Forschung
und Technologie (BMFT), Informationsbroschüre, 1994

- G Vorgehensweise zur Beherrschung von Gasen in einem Endlager im Salzgestein (Nina Müller-Hoeppe)
- Lux, K.-H.: Zum langfristigen Tragverhalten von verschlossenen Solegefüllten Salzkavernen ein neuer Ansatz zu physikalischer Modellierung und numerischer Simulation Theoretische und laborative Grundlagen, Erdöl Erdgas Kohle 121, Heft 11, 2005
- Müller, W.: Gas Generation from Radioactive Waste Disposal in Different Host Rocks A Comparision, Proc. Int. Conf. Radioactive Waste Disposal, DISTEC 2000, Berlin, Sept.4-6, 2000
- SIA, Sicherheit und Gebrauchsfähigkeit von Tragwerken, Dokumentation 260, N 5148-11, 1982

H Vorkommen natürlicher Gase in Salz (Michael Schramm)

1 Zusammenfassung

Die Untersuchung von salzgebundenen Gasen bildet ein wichtiges Kriterium zur Beurteilung der Standortsicherheit eines Endlagers oder einer Speicherkaverne. Schwerpunkte notwendiger Arbeiten zur Bewertung ihres langzeitlichen Einflusses auf die Untertagebauwerke sind Untersuchungen zu den Bildungsbedingungen der Gaseinschlüsse, der Herkunft sowie der Verbreitung und Volumina der Gase in der Wirtsgesteinsformation. Hierzu sind von verschiedenen Arbeitsgruppen (z. B. Gerling et al. 1991) geochemische und isotopengeochemische Analysen der Gase durchgeführt worden. Im Salz eingeschlossene Gase werden in Abhängigkeit von der Art ihres Vorkommens, d. h. ihrer Bildungsform in den Gesteinen und von ihrer chemischen Zusammensetzung wie folgt gegliedert:

Nach der Art des Vorkommens können die Gase in freie (schnittgebundene) und mineralgebundene Gase eingeteilt werden. Bei den freien Gasen handelt es sich um solche, die in Klüften, Rissen oder kavernösen Hohlräumen gespeichert sind. Sie werden i. d. R. durch bergbauliche Maßnahmen aktiviert und können dabei explosionsartig ausbrechen, wobei z. T. große Mengen Gas freigesetzt werden, die ein extremes Gefahrenpotenzial darstellen. Die Gruppe der mineralgebundenen Gase gliedert sich in intraund interkristalline Gase. Die intrakristallinen Gase sind im Kristall eingeschlossen. Diese mikroskopisch kleinen Gaseinschlüsse machen bezogen auf das Gesamtgestein nur einen geringen Volumenanteil aus. Die interkristallinen Gase befinden sich an den Korngrenzen der Minerale und werden oftmals schon im Rahmen der Probenahme durch die Auflockerung des Korngefüges freigesetzt. Auch die Mengen, der an den Korngrenzen fixierten Gase, sind gering. In Salzformationen sind die freien Gase an bestimmte Gesteine und zwar überwiegend an Karbonate, Anhydrite, Salztone und Kaliflöze sowie untergeordnet an Gesteine in deren näherer Umgebung gebunden. Im Gegensatz dazu werden in massiven Steinsalzkörpern, wie z. B. dem Hauptsalz der Staßfurtfolge des Salzstocks Gorleben, keine signifikanten Gasgehalte angetroffen.

Anhand ihrer chemischen Zusammensetzung lassen sich nach Herrmann (1987) die im Salz vorkommenden Gasgemische in drei Gruppen einteilen. Die am häufigsten vorkommenden Gasgemische sind die CH₄-dominanten Gase, die außerdem auch langkettige Kohlenwasserstoffe enthalten. Untergeordnet enthalten sie H₂, N₂, CO₂, O₂,

Edelgase und H₂S. Diese Gasgemische sind in den Salzlagerstätten Mittel- und Norddeutschlands verbreitet. Als Beispiele sind Gasvorkommen im Kaliflöz Stassfurt (z2SF)
des Kaliwerks Thomas Münzer bei Bischofferode im Südharz und im Carnallitit der
Grube Leopoldshall VI zu nennen. Die zweite Gruppe besteht aus den CO₂dominanten Gasgemischen. Sie sind im Werra-Fulda-Lagerstättenbezirk verbreitet und
enthalten untergeordnet H₂, N₂, Edelgase und H₂S. Als Beispiel sind Gasvorkommen
im Sylvinit des Kaliwerks Marx-Engels zu nennen. Sehr selten kommen die N₂dominanten Gasgemische vor. Sie wurden z. B. im Südharz-Lagerstättenrevier beschrieben, beispielsweise in den Salzlagerstätten der Nordhäuser Kaliwerke.

Die Volumina der in den Salzen gespeicherten Gasmengen reichen von wenigen µl in intrakristallinen Einschlüssen bis hin zu mehrere m³ umfassenden kavernösen Hohlräumen. Ausbrüche großer Gasmengen sind sehr selten. Die größten Ereignisse dieser Art gab es 1953 im Kaliwerk Heiligenroda mit 100.000 m³ (CO₂-reiches Gasgemisch) und 1973 im Kaliwerk Bischofferode mit 10.000 m³ (N₂-Kw-Gasgemisch). Beide Kaliwerke befinden sich im Werra-Fulda-Lagerstättenbezirk mit flach gelagerten Salzen. Im Gegensatz dazu sind die nördlich gelegenen Salzvorkommen Niedersachsens durch die Halokinese tektonisch stark beansprucht und in weiten Teilen als Salzstöcke ausgebildet. Durch den Salzaufstieg und die daran gebundenen salzstockinternen Deformations- und Umkristallisationsprozesse wurde das primär in den Salzschichten vorhandene Gas zum größten Teil aus den Salzgesteinen verdrängt und sammelte sich i. d. R. in nicht miteinander kommunizierenden Klüften oder Hohlräumen bestimmter Gesteinstypen. In den niedersächsischen Lagerstätten sind daher nur geringe Mengen Gas in der Größenordnung von Litern bis einige m³ festgestellt worden.

Von großem Interesse ist in diesem Zusammenhang die Dauer der Gasaustritte. Das Spektrum reicht von explosionsartigen Ausbrüchen bis hin zu eher selten vorkommenden, Jahre andauernden Entgasungen. Eine besonders lang anhaltende Entgasung konnte in der Grube Bartensleben des Werra-Fulda-Lagerstättenbezirks in der Zeit von 1942 bis 1950 beobachtet werden.

Die Gasanreicherungen sind in Salzlagerstätten an bestimmte lithologische Einheiten und somit an bestimmte mineralogische und geologische/strukturelle Positionen gebunden. Insbesondere Gesteine mit großen Porenräumen und Klüften, wie z. B. Anhydrite, sind typische Gasspeicher. Hinzu kommen Gesteine in Störungs- und Zerrüttungszonen sowie sehr lösungs- und temperaturreaktive Gesteine, wie z. B. Kaliflöze.

Н

Im Rahmen der Endlagerforschung sind Herkunft bzw. Entstehung der Gase sowie deren Migrationswege ein Untersuchungsschwerpunkt. Der wichtigste Prozess zur Bildung der in Salzlagerstätten am häufigsten vorkommenden Methan-Gase ist die Fermentation organischen Materials. CO2-dominante Gase stellen einen Spezialfall dar, der im Werra-Revier durch tertiäre Basalt-Intrusionen hervorgerufen wurde und zur Imprägnation des Salzgesteins führte. Eine weitere Möglichkeit, wie Gase in das Salz eingelagert werden, ist in der Bildung der Salzgesteine selbst begründet. Bei der Kristallisation der Salze aus dem Meerwasser werden auch geringe Mengen des Meerwassers als so genannte Fluid Inclusions eingebaut. Dabei kann im Meerwasser gebundenes Gas mit in das Salz eingeschlossen werden. Außerdem kann es in einigen Lagerstätten im Rahmen metamorpher Reaktionen zwischen Gestein und migrierenden Lösungen zu Mineralum- oder Neubildungen kommen, wobei die in den metamorphen Salzlösungen enthaltenen Gase in die neu gebildeten Minerale eingeschlossen werden oder sich auf den Korngrenzen anreichern. Vergleicht man die absoluten Gehalte und die Mengenverhältnisse der im Meerwasser enthaltenen Gase mit denen des Salzes, so zeigt sich, dass die Gasgehalte des Meerwassers große Unterschiede zu den Konzentrationsverhältnissen der im Salz eingeschlossenen Gase aufweisen. Bezogen auf die Gesamtmenge der im Meerwasser enthaltenen Gase sind diese folgendermaßen zusammengesetzt: 62,6 Vol.-% N2, 34,3 Vol.-% O2, 1,6 Vol.-% Ar, 1,4 Vol.-% CO2 und 0,0035 Vol.-% Spurengase (darunter auch CH4).

Um die Herkunft der Gase, d. h. ihr Muttergestein sowie das Bildungsmilieu rekonstruieren zu können, wurden mit Hilfe von Isotopenuntersuchungen die $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ -Isotopenverhältnisse ($\delta^{13}\text{C}$) und die D/H-Isotopenverhältnisse (δ D) des Methans (CH₄) ermittelt. $\delta^{13}\text{C}$ -Werte von -65 bis -50 ‰ [PDB] und δ D-Werte von -400 bis -200 ‰ [SMOW] zeigen eine Methanbildung im Frischwassermilieu an, während $\delta^{13}\text{C}$ -Werten von -110 bis -60 ‰ [PDB] sowie δ D-Werte von -250 bis -170 ‰ [SMOW] besagen, dass eine Methanbildung im marinen Milieu stattgefunden hat (Whiticar et al. 1986).

Neben der Bildung von Methan entsteht im Frischwassermilieu durch Fermentation untergeordnet CO₂. Im marinen Milieu bildet sich durch die bakterielle Carbonatreduktion kein CO₂ sondern nur Methan. Durch die Kenntnis der Herkunft bzw. des Muttergesteins kann der Weg der Gase nachvollzogen werden. Die Mobilisierung des Gases aus dem Muttergestein in das Salz und dessen Fixierung erfolgte durch die im Rahmen der Halokinese geschaffenen Wegsamkeiten (gilt nicht für die Gase der Basalt-Intrusionen). Im Salzstock Gorleben stammen die meisten gasförmigen Kohlenwasser-

stoffe aus den Kalksteinschichten des Zechstein 1 (Werra-Folge). Nur die Gase in den Klüften und kavernösen Hohlräumen des Hauptanhydrits des Zechstein 3 (z3HA) stammen zu 40-45% aus dem Rotliegenden. Der Zeitraum für diesen Migrationsprozess wird für die Phase der Salzstockbildung zwischen Ende Jura und Anfang Unterkreide angenommen. Dagegen sind die CO₂-dominanten Gase des Werra-Reviers auf den tertiären Vulkanismus zurückzuführen.

Insgesamt kann festgehalten werden, dass die am häufigsten vorkommenden Gasgemische der Salzlagerstätten Nord- und Mitteldeutschlands CH₄-dominant sind, während im Werra-Fulda-Bezirk CO₂-Gasgemische überwiegen. Selten hingegen kommen N₂dominante Gasgemische vor (z. B. Südharz-Revier). Die Quantität der Gase ist in Salzstöcken aufgrund der tektonischen Bewegungen im Rahmen der Halokinese geringer als in flach gelagerten Salzvorkommen, besonders dann, wenn sie in Verbindung mit Basalt-Intrusionen stehen. Prädestiniert für Gasansammlungen sind Anhydri-Kaliflöze, Karbonate. Salztone und deren nähere Umgebung Zerrüttungszonen und Kluftbereiche. Die Gase sind intra-, interkristallin oder kluftgebunden. Eine Migration im ungestörten Steinsalzkörper kann nicht nachgewiesen werden.

2 Vortragsfolien

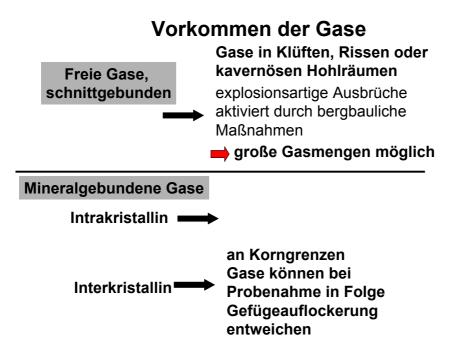


Abb. H.96 Vorkommen der Gase

Vorkommen der Gase

Gase in relevanten Mengen üblicherweise in folgenden lithologischen Einheiten:

- Karbonate
- Anhydrite
- Tone (Salzton)
- Kaliflöze

Untergeordnet:

 Steinsalz, aber nur in der Nähe der oben genannten lithologischen Einheiten

Abb. H.97: Vorkommen der Gase in lithologischen Einheiten

Zusammensetzung der Gasgemische im Salz Gliederung nach A.G. Herrmann:

Häufig vorkommend:

• Überwiegend CH₄ und höhere KW's,

untergeordnet H₂, N₂, CO₂, O₂, Edelgase und H₂S Beispiel: K2, Kaliwerk Thomas Münzer bei Bischofferode (Südharz); Carnallitit Grube Leopoldshall VI,

Verbreitung: Mittel- und Norddeutschland

• Überwiegend CO₂,

untergeordnet H₂, N₂, Edelgase und H₂S Beispiel: Sylvinit im Kaliwerk Marx-Engels bei Unterbreizbach, **Verbreitung: Werra-Fulda-Lagerstättenbezirk**

Selten vorkommend:

Fast ausschließlich N₂:

Beispiel: Nordhäuser Kaliwerke (Südharz)

Abb. H.98 Zusammensetzung der Gasgemische im Salz

Relative Zusammensetzung Luft, Meerwasser

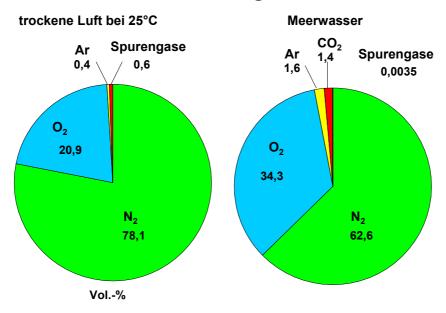


Abb. H.99 Relative Zusammensetzung von Luft und Meerwasser

Volumina der Gase

- Geringe Mengen in den Lagerstätten Niedersachsens: zwischen einigen Litern und Kubikmetern
 - Halokinetisch entstandene Salzstrukturen Salzstöcke
- größere Mengen Gas <u>sehr selten</u>, sind im Werra-Fulda-Lagerstättenbezirk vorgekommen:
 1973 im Kaliwerk Bischofferode →N₂-KW-Gemisch 10000 m³
 1953 im Kaliwerk Heiligenroda →CO₂ mit 100000 m³

Flache Lagerung

Abb. H.100 Volumina der Gase

Dauer der Gasausbrüche

Minuten

mit z.T. explosionsartigen Ausbrüchen

bis

Jahre (selten)

z.B. Grube Bartensleben (Werra-Fulda-Lagerstättenbezirk) von 1942 bis 1950

Abb. H.101 Dauer der Gasausbrüche

Genetische Zusammenhänge

Gasanreicherungen an bestimmte mineralogische und geologische Positionen gebunden:

- Material mit prinzipiell großen Porenräumen/Klüften (Anhydrite)
- Störungs- bzw. Zerrüttungszonen
- sehr lösungs- und temperaturreaktive Gesteine z.B. Kaliminerale in Kaliflözen
- Basalt-Intrusion: z.B. im Werra-Revier \rightarrow CO₂

Abb. H.102 Genetische Zusammenhänge

Herkunft der Gase

Primär aus dem Meerwasser

- → Wenn überhaupt, dann in sehr geringen Mengen Ableitung unklar:
 - Mengenverhältnisse unterschieden sich deutlich
 - · Absolutmengen einiger Gase teilweise sehr hoch

Fermentation organischen Materials im Sediment

→ Kommt am häufigsten vor

Gas im Umfeld von Basaltintrusionen



Migration

Abb. H.103 Herkunft der Gase

Migrationswege der Gase

1. Durch Halokinese

Gase migrieren aus dem Muttergestein in das Salz und werden dort fixiert

Gorleben

Die meisten gasförmige KW's sind aus dem Zechsteinkalk (z1ZK) generiert

Ausnahme:

Gase in Klüften und kavernösen Hohlräumen des z3HA stammen zu 40-45% aus dem Rotliegenden



2. Durch magmatische Intrusion

CO₂-dominante Gase des Werra-Reviers auf Tertiären Vulkanismus zurückzuführen

Abb. H.104 Migrationswege der Gase

Untersuchte Lokalitäten



Abb. H.105 Untersuchte Lokalitäten

CH₄-haltige Gase

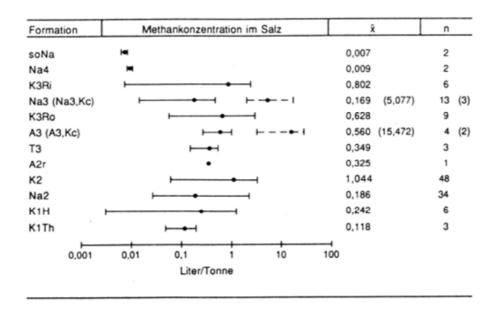


Abb. H.106 CH₄-haltige Gase

Zusammenfassung

Am häufigsten vorkommende Gasgemische

- CH₄-dominant → Nord- und Mitteldeutschland
- CO₂-dominant → Werra-Fulda-Lagerstättenbezirk

Selten vorkommende Gasgemische

N₂-dominant ⇒ z.B. im Südharz-Revier

Wenig Gas → Salzstöcke

Viel Gas → flache Lagerung

Gas hauptsächlich in:

Anhydriten, Kaliflözen, Karbonaten, Salztonen und in deren näherer Umgebung untergeordnet im Steinsalz

Gas ist intra-, interkristallin oder kluftgebunden fixiert

Salz ist gasdicht

Abb. H.107 Zusammenfassung

3 Literatur

- Herrmann, A. G. (1987): Gase in marinen Evaporiten. TU-Clausthal: 137 S.; Clausthal-Zellerfeld.
- Gerling, P., Beer, W. und Bornemann, O. (1991): Gasförmige Kohlenwasserstoffe in Evaporiten des deutschen Zechsteins. Kali und Steinsalz, Bd.10, H. 11: 376-383, 6 Abb., 3 Tab.; Essen.
- Whiticar, M. J., Faber, E. and Schoell, M. (1986): Biogenetic methane formation in marine and freshwater environments: CO₂ reduction vs. acetate fermentation Isotope evidence. Geochimica et Cosmochimica Acta, 50: 693-709, 12
 Abb., 1 Tab., Pergamon Press.

Wechselwirkung Gasbildung – geochemisches Milieu im Endlager (Volker Metz)

1 Einleitung

In einem tiefen geologischen Endlager für radioaktive Abfälle können verschiedene Gase auftreten bzw. durch Reaktionen der Abfallprodukte mit umgebenden Stoffen (wie gegebenenfalls zutretende Lösungen) gebildet werden. Die Zusammensetzung der sich bildenden Gase wird durch die Zusammensetzung der Abfallprodukte bedingt. Daher wird sich die Gasbildung in einem Endlager für hochradioaktive Abfälle deutlich von derjenigen in einem Endlager für schwachradioaktive Abfälle unterscheiden. Im Hinblick auf die Auswirkungen der Gasbildung auf das langfristige geochemische Milieu und die davon abhängige Radionuklid-(im)mobilisierung ist die Bildung von Wasserstoff und Kohlendioxid von hoher Bedeutung, während die Bildung von Kohlenwasserstoffen, Schwefelwasserstoff und Spaltgasen weniger wichtig sind. Zwar übt Sauerstoff einen starken Einfluss auf das Verhalten von redoxsenstiven Radionukliden aus, jedoch wird im Fall eines Kontakts von wässrigen Lösungen mit den metallischen Abfallbehältern innerhalb relativ kurzer Zeit der Sauerstoffgehalt im Nahfeld durch aerobe Korrosion der Behältermaterialien stark verringert (Spahiu et al., 2004). Reaktionen von radiolytisch gebildeten Sauerstoffradikalen in der wenige 10 µm dünnen Kontaktzone zwischen wässriger Lösung und bestrahltem Kernbrennstoff sind entscheidend für die Stabilität der Brennstoffmatrix. Für das langfristige geochemische Milieu im Nahfeld von HAW-Glas sowie mittel- und schwachradioaktiven Abfällen ist molekularer Sauerstoff jedoch vernachlässigbar. Abb. I.108 gibt einen Überblick über die Herkunft von Gasen im Nahfeld eines Endlagers.

Neben den physikalischen Auswirkungen der Gasbildung (Druckaufbau und Versprödung metallischer Behältermaterialien) beeinflussen die entstehenden Gase chemische Prozesse bzw. das geochemische Milieu im Nahfeld eines Endlagers. Veränderungen des geochemischen Milieus durch die Gasbildung - insbesondere Veränderungen des Redoxmilieus, des pH-Werts und die Bildung komplexierender Spezies - wirken sich auf folgende Prozesse aus:

- Wechselwirkungen mit Radiolysespezies;
- Korrosion von metallischen Abfallbehältern;

- Korrosion bzw. Auflösung von Abfallmatrizes;
- Oxidation oder Reduktion von Radionuklidspezies;
- Komplexierung von Radionuklidspezies;
- Sorption von Radionuklidspezies;
- Bildung von Sekundärphasen und Mineralisierung von Radionukliden.

Die Auswirkungen einer Gasbildung auf das geochemische Milieu und auf die Freisetzung bzw. Rückhaltung von Radionukliden wird anhand der hierfür wichtigsten Gase dargelegt.

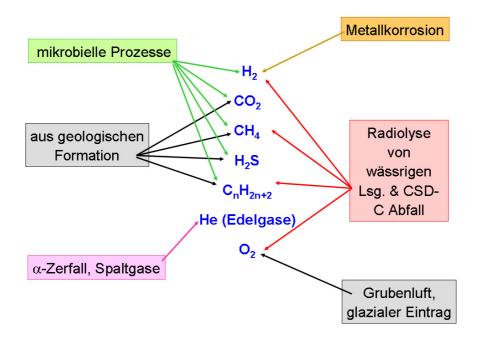


Abb. I.108 Herkunft von Gasen im Nahfeld eines Endlagers für radioaktive Abfälle.

2 Auswirkungen der Bildung von Wasserstoff

Im Endlager wird Wasserstoff hauptsächlich durch die Korrosion metallischer Werkstoffe, mikrobielle Prozesse und Radiolyse gebildet. Mit steigendem H₂-Partialdruck wird das geochemische Milieu zunehmend reduzierend. Unter diesen günstigen Redoxbedingungen werden vierwertige Festphasen der redoxsensitiven Radioelemente (bspw. Technetium, Thorium, Neptunium und Uran) stabilisiert (Abb. I.109), die relativ niedrige

I

Löslichkeiten aufweisen (Neck & Kim, 2001). Bei Plutonium sind die Verhältnisse kompliziert, da für Pu ist die Möglichkeit einer Koexistenz der Oxidationsstufen III, IV, V und VI in wässriger Lösung gegeben ist (Cleveland, 1970, Cleveland 1980 und Choppin, 2003). Mit Ausnahme von stark oxidierenden Bedingungen dominieren im sauren pH-Bereich Pu(III)-Lösungsspezies und Pu(III)-Festphasen. Im neutralen bis alkalischen pH-Bereich, der für das Nahfeld eines Endlagers relevant ist, dominieren Pu(IV), Pu(V) und Pu(VI)-Lösungsspezies unter reduzierenden Bedingungen bei Normaldruck. Dieser Sachverhalt wird in Abb. I.110 angedeutet, die für eine konstante Pu-Konzentration die dominierenden Lösungsspezies zeigt. Bei reduzierenden Bedingungen wird eine relativ geringe Löslichkeit durch die Bildung von Pu(IV)-Oxyhydroxid begrenzt (Neck et al., 2006). Selbst in einem neutral bis schwach alkalischen pH-Bereich kann bei Bildung eines erhöhten H₂-Partialdrucks das geochemische Milieu so stark reduzierend werden, dass Pu(III) die dominierende Oxidationsstufe der aquatischen Spezies ist. Die gelösten Pu(III)-Spezies stehen jedoch über eine reversible Redoxreaktion im Gleichgewicht mit aquatischen Pu(IV)-Spezies, die beim Überschreiten der Löslichkeit von Pu(IV)-Oxyhydroxid ausfallen.

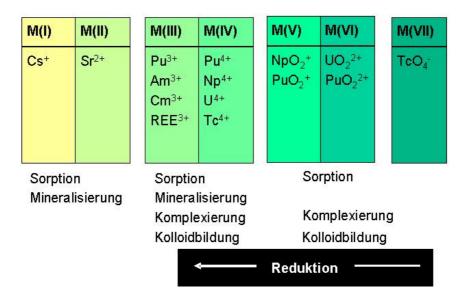


Abb. I.109 Redoxstufen von Actiniden, Cäsium, Strontium, Technetium und Seltenerdelementen (REE) in wässrigen Lösungen sowie relevante (Im)Mobilisierungsprozesse.

Neben der günstigen Beeinflussung des Redoxpotentials im Nahfeld der Abfälle, verursacht H₂ im Fall von abgebrannten Kernbrennstoff einen weiteren positiven Effekt. Die oxidative Korrosion der UO₂-Matrix führt zur Freisetzung des Urans und der in der Matrix enthaltenen Actiniden und Spaltprodukte. Durch die Reaktion von korrosiv oder mikrobiell gebildetem Wasserstoff mit radiolytischen Oxidantien, kann die UO₂-Korrosionsrate bei realistischen H₂-Partialdrücken im Endlager um mehrere Größenordnungen im Vergleich zur Rate bei oxidischen Bedingungen verlangsamt werden. Abb. I.111 zeigt die Rate der Sr-Freisetzung aus der Matrix von bestrahltem Kernbrennstoff in Abhängigkeit des H₂-Partialdrucks. In ihrem Übersichtsartikel zur Stabilität von bestrahltem Kernbrennstoff folgerten Bruno und Ewing (2006), dass Wasserstoffüberdruck die Radiolyseprozesse ausschalten und dadurch keinerlei Brennstoffkorrosion auftrete.

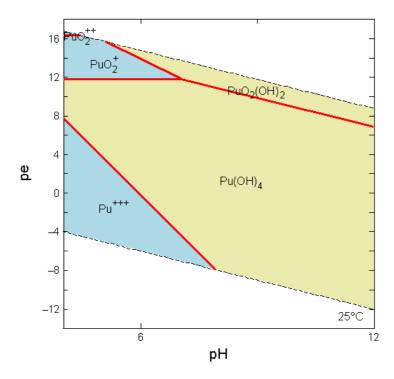


Abb. I.110 Orientierendes Pourbaix-Diagramm der dominanten aquatischen Pu-Lösungsspezies im CO₂-freien System berechnet für eine konstante Pu-Konzentration von 10⁻⁶ mol (kg H₂O)⁻¹, einen Gesamtdruck von 1 bar und eine Temperatur von 25°C.

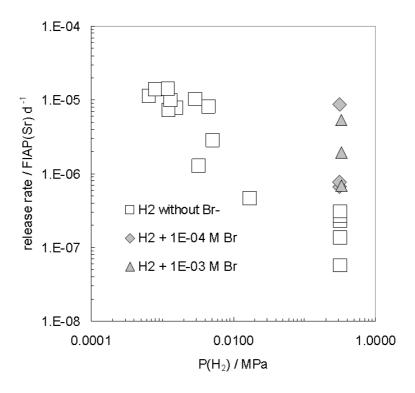


Abb. I.111 Rate der Sr-Freisetzung (FIAP(Sr) d⁻¹) aus der Matrix von bestrahlten Kernbrennstoff-pellets in Abhängigkeit des H₂-Partialdrucks und der Bromid-Konzentration (Metz et al., 2008)

An dieser Stelle ist darauf hinzuweisen, dass die Inhibition der Radiolyse sowie der Brennstoffkorrosion durch Wasserstoff weder für Systeme mit verdünnten Grundwässern noch für Systeme mit Salzlösungen ausreichend verstanden ist. Neuere Untersuchungen zum Einfluss von Wasserstoff auf die Radiolyse und die Brennstoffkorrosion zeigen, dass Halogenide dem "Wasserstoffeffekt" entgegenwirken und die Freisetzung von Radionukliden aus der Brennstoffmatrix auch bei H₂-Überdruck fortgesetzt wird (Metz et al., 2008, Loida et al., 2007 und Kelm & Bohnert, 2005). In Abb. I.111 ist ersichtlich, dass bei Anwesenheit von Spurenkonzentrationen an Bromid die Radionuklidfreisetzungsrate um bis zu einer Größenordnung gegenüber einer Bromid-freien Lösung erhöht wird.

3 Auswirkungen der mikrobiellen Gasbildung

Organische Abfallprodukte unterliegen der Biodegradation. Bei Anwesenheit von Luftsauerstoff können durch die sogenannte "aerobe Atmung" organische Abfallkomponenten über metastabile Zwischenprodukte zu anorganischem Kohlenstoff, u.a. $CO_2(g)$, abgebaut werden. Selbst in hochkonzentrierten Salzlösungen können auch unter anaeroben Bedingungen organische Abfallkomponenten durch Mikroorganismen zu anorganischen Kohlenstoffspezies sowie zu Methan $(CH_4(g))$ abgebaut werden. Im Folgenden werden die wichtigsten biotischen Prozesse stellvertretend für die organische Hauptkomponente Zellulose $(C6H_{12}O6)$ bzw. $C6H_{10}O5 + H_2O)$ dargestellt. Gleichung (1) beschreibt die aerobe Atmung, Gleichungen (2) – (5) stehen beispielhaft für eine Umsetzung von Nitrat zu reduzierten Stickstoffverbindungen, Gleichung (6) steht beispielhaft für eine Reduktion von Fe(III) zu Fe(II), Gleichung (7) für eine Reduktion von Sulfat zu Hydrogensulfid (bzw. zu Sulfid bei einem höheren pH-Wert) und Gleichung (8) beschreibt die unmittelbare Umsetzung organischer Abfallkomponenten zu Methan:

$$C_{6}H_{12}O_{6} + 6O_{2} <=> 6CO_{2} + 6H_{2}O$$
 (1)

$$5C_{6}H_{12}O_{6} + 24H^{+} + 24NO_{3}^{-} <=>30 CO_{2}(g) + 42H_{2}O + 12N_{2}$$
 (2)

$$C_{6}H_{12}O_{6} + 6H^{+} + 6NO_{3} <=> 6CO_{2} + 9H_{2}O + 3N_{2}O$$
 (3)

$$C_{6}H_{12}O_{6} + 12NO_{3} <=> 6CO_{2} + 6H_{2}O + 12NO_{2}$$
 (4)

$$C_{6}H_{12}O_{6} + 3NO_{3}^{-} + 6H^{+} <=> 6CO_{2} + 3H_{2}O + 3NH_{4}^{+}$$
 (5)

$$C_{6}H_{12}O_{6} + 48H^{+} + 24Fe(OH)_{3}(s) \le 6CO_{2}(g) + 24Fe^{2+} + 66H_{2}O$$
 (6)

$$C_{6}H_{12}O_{6} + 3H^{+} + 3SO_{4}^{2} <=>6CO_{2}(g) + 3HS^{-} + 6H_{2}O$$
 (7)

$$C6H_{12}O_{6} <=> 3CO_{2} + 3CH_{4}$$
 (8)

Die biotisch-kontrollierten Redoxreaktionen sind weitaus komplexer als die o.g. Reaktionsgleichungen andeuten. In verschiedenen natürlichen Systemen wird beobachtet, dass die teilweise simultan ablaufenden Redoxprozesse nacheinander durch aerobe

1

Atmung, Denitrifizierungsprozesse, Fe(III)-Reduktion, Sulfat-Reduktion und Methanogenese dominiert werden (Remmler & Schulte-Ebbert, 2003).

Während Methan sich relativ inert verhält und das chemische Milieu nicht signifikant beeinflusst, reagiert CO₂ mit der wässrigen Lösung und den Festphasen in Umgebung der radioaktiven Abfälle. In ungepufferten Lösungen kann es mit zunehmenden CO₂-Partialdruck zu einer Versauerung des geochemischen Milieus kommen. Durch die pH-Erniedrigung werden die Auflösungsraten der technischen und geologischen Barriere erhöht, die Radionuklidlöslichkeiten steigen an und die Sorption von Radionukliden an Feststoffen wird verringert. In alkalischen Lösungen wird mit zunehmenden CO₂-Partialdruck die CO₃-Konzentration erhöht, was zu einer Carbonatkomplexierung und einer damit verbundenen Löslichkeitserhöhung von Actiniden führt. Durch die Carbonatkomplexierung wird außerdem die Sorption der Radionuklide beeinträchtigt. Andererseits bilden einige Radioelemente, wie Radium oder Americium, bei erhöhter CO₃-Konzentration carbonathaltige Festphasen, deren Löslichkeit je nach pH unterhalb derjenigen der carbonatfreien Radionuklidfestphase liegt.

Neben der CO₂- und CH₄-Bildung werden durch mikrobielle Denitrifizierung und Sulfatreduktion N₂ und H₂S bzw. Sulfide gebildet. Ähnlich wie Methan verhält sich Stickstoff chemisch inert. Sulfide sind schwache Komplexbildner, die als reduzierend wirkende Spezies einen günstigen Einfluss auf das chemische Milieu ausüben.

4 Maßnahmen zur günstigen Beeinflussung der Gasbildung und des geochemischen Milieus

Als Möglichkeiten zur günstigen Beeinflussung der Gasbildung und deren Folgeprozesse bieten sich technischen Maßnahmen an, die das geochemische Milieu bei einem reduzierenden Redoxpotential und schwach alkalischen pH-Werten puffern. Unter diesen Bedingungen erreichen die Auflösungsraten der (geo)technischen Barrieren und die Löslichkeiten der Radionuklide minimale Werte sowie die Sorption der Radionuklide an Feststoffoberflächen optimale Werte. Beispielsweise werden für die Endlagerung von radioaktiven Abfällen in der Wirtsformation Salz ein Versatz mit MgO- und Mg(OH)2-haltigen Puffermaterialien durchgeführt bzw. geplant (Brush et al.,2002 und Metz et al., 2004. Mehr noch als MgO sind die Mg(OH)2-haltigen Materialien dazu ge-

eignet, den CO₂–Partialdruck durch Bildung von carbonatischen Festphasen zu begrenzen und den pH im schwach alkalischen Bereich zu puffern.

Außer Versatzmaßnahmen bietet sich an, die Mengen an mikrobiell-abbaubaren Abfallkomponenten, wie Organika in LAW/MAW oder CSD-C Abfällen, möglichst gering zu halten. Da die meisten Gasbildungsprozesse vom Vorhandensein einer wässrigen Lösungen abhängig sind, wird durch Abdichtungen gegen Lösungszutritt auch die Gasbildung eingeschränkt.

5 Literatur

- Bruno, J. and R.C. Ewing, Spent nuclear fuel. Elements, 2006. 2: p. 343-349.
- Brush, L.H., et al. The use of magnesium oxide as an engineered barrier in the WIPP. in 6th International Workshop on Design and Construction of Final Repositories "Backfilling in Radioactive Waste Disposal". 2002. Brussels, Belgium.
- Choppin, G.R., Actinide speciation in the environment. Radiochimica Acta, 2003. 91: p. 645-549.
- Cleveland, J.M., The chemistry of plutonium. 1970, New York: Gordon and Breach Science Publishers.
- Cleveland, J.M., Solution chemistry of plutonium., in Plutonium handbook a guide to the technology., O.J. Wick, Editor. 1980, American Nuclear Society: La Grange Park.
- Kelm, M. and E. Bohnert, Gamma radiolysis of NaCl brine: Effect of dissolved radiolysis gases on the radiolytic yield of long-lived products. Journal of Nuclear Materials, 2005. 346: p. 1-4.
- Loida, A., B. Kienzler, and V. Metz, Alteration behavior of high burnup spent fuel in salt brine under hydrogen overpressure and in presence of bromide. Materials Research Society, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXX, 2007. 985: p. 14-20.

- 1
- Metz, V., et al., Effects of hydrogen and bromide on corrosion of spent nuclear fuel and gamma-irradiated UO2(s) in NaCl brine. Radiochimica Acta (accepted for publication), 2008.
- Metz, V., et al., Geochemically derived non-gaseous radionuclide source term for the Asse salt mine assessment for the use of a Mg(OH)2-based backfill material. Radiochimica Acta, 2004. 92: p. 819-825.
- Neck, V., M. Altmaier, and T. Fanghanel, Solubility and redox reactions of plutonium(IV) hydrous oxide in the presence of oxygen. Recent Advances in Actinide Science, The Royal Society of Chemistry, 2006.
- Neck, V. and J.I. Kim, Solubility and hydrolysis of tetravalent actinides. Radiochimica Acta, 2001. 89: p. 1-16.
- Remmler, F. and U. Schulte-Ebbert, Entwicklung des Systemverständnisses zur natürlichen Selbstreinigung des Grundwassers. Development of the understanding of natural self-purification processes in groundwater. Vom Wasser, 2003. 101: p. 77-90.
- Spahiu, K., et al., The reduction of U(VI) by near field hydrogen in the presence of UO2(s). Radiochimica Acta, 2004. 92: p. 597-601.

J Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition durch den Eintrag von C-14 in Böden und Oberflächengewässer (Gerhard Pröhl)

1 Einleitung

Abgebrannte Kernbrennstoffe enthalten ¹⁴C, das in Kernreaktoren durch Reaktion von Neutronen mit ¹⁴N entsteht. In Endlagern für radioaktive Abfälle können ¹⁴C-haltige Verbindungen, beispielsweise unter mikrobieller Beteiligung, zu gasförmigen ¹⁴C-Verbindungen umgesetzt werden. Dabei handelt es sich im Wesentlichen um ¹⁴CO₂ und ¹⁴CH₄, die nach Freisetzung aus dem Endlager und der Migration durch das Deckgebirge in die Biosphäre gelangen können.

Mögliche Schnittstellen für den Eintritt in die Biosphäre sind Böden und Oberflächengewässer. Die Nutzung dieser Umweltkompartimente zur Erzeugung von Nahrungsmitteln verursacht Strahlenexpositionen für den Menschen. Dieser Beitrag beschreibt Modelle und Parameter zur Abschätzung von Expositionen des Menschen durch den Eintrag von ¹⁴C in die Biosphäre.

2 Exposition durch ¹⁴C in Böden

2.1 Kohlendioxid im Boden

Im Boden vorliegendes CO₂ entweicht dem Boden und vermischt sich mit der bodennahen Luft. Dort kann es während der Photosynthese von den Pflanzen assimiliert werden.

2.2 Methan im Boden

Methan kommt in Böden als Abbauprodukt von organischer Substanz nur unter anaeroben Bedingungen vor. Derartige Bedingungen sind in natürlichen Feuchtgebieten oder in Nassreisfeldern anzutreffen, d.h. in Böden, deren Porenraum mit Wasser gefüllt und daher der Zutritt von Sauerstoff behindert oder vollständig unterbunden ist. Derartige Störungen des Lufthaushaltes können sich in landwirtschaftlich genutzten Böden

bei Überflutung oder durch den Einfluss von Grund- und Stauwasser einstellen. Anaerobe Bedingungen, die über längere Zeit andauern, haben Ertragsdepressionen zur Folge. In anaeroben Böden entstehendes Methan kann in die Atmosphäre freigesetzt werden. Beim anaeroben Abbau organischer Substanz steigt der Druck im Boden an, da gemäß der folgenden Reaktionsgleichung sowohl Kohlendioxid als auch Methan entstehen, was den Übergang von Methan in die bodennahe Luft fördert.

$$C_6H_{12}O_6 \rightarrow 3 CO_2 + 3 CH_4$$

Die Lebensdauer von Methan in der Atmosphäre ist relativ lang; sie beträgt etwa 10 Jahre (Wild, 1995). Durch ¹⁴CH₄ in Luft ergibt sich im Prinzip eine Exposition durch Inhalation, die jedoch wegen der raschen Verteilung mit dem Wind nur sehr gering und damit zu vernachlässigen ist. Eine nennenswerte lokale Umwandlung in der bodennahen Luft von Methan zu Kohlendioxid, das während der Photosynthese von Pflanzen in organische Substanz eingebaut wird und zu einer Strahlenexposition durch Ingestion führen könnte, ist aufgrund der langen Lebensdauer in der Atmosphäre nicht zu erwarten.

Methan, das aus tiefen Boden- oder Gesteinsschichten aufsteigt und in die ungesättigte Zone gelangt, kann im Boden von Bakterien unter Verbrauch von Sauerstoff zu Kohlendioxid und Wasser oxidiert werden. Dieser Prozess kann z.B. im Bereich undichter unterirdischer Gasleitungen beobachtet werden, in deren unmittelbarer Umgebung durch die Oxidation von Methan herrührende hohe CO₂-Konzentrationen auftreten (Scheffer und Schachtschabel, 1992). Nach Boeckx und van Cleemput (1996) wird Methan in Mengen von 0-5 mg m⁻²d⁻¹ von aeroben Böden aus der Atmosphäre aufgenommen und oxidiert.

Wenn der Lufthaushalt des Bodens durch Bodenverdichtungen, wasser- und luftundurchlässige Schichten oder den Einfluss von Grund- und Stauwasser gestört ist, so ist kein Aufstieg von Methan aus tieferen Boden- und Gesteinsschichten möglich.

Es ist davon auszugehen, dass aus größeren Bodentiefen aufsteigendes ¹⁴CH₄ nur dort dem Boden entweichen kann, wo der Austausch der Bodenluft mit der bodennahen Luftschicht durch eine entsprechende Porosität des Bodens möglich ist. Unter derartigen Bedingungen ist eine Oxidation von ¹⁴CH₄ zu ¹⁴CO₂ und H₂O wahrscheinlich, was im folgenden zur Abschätzung der Strahlenexposition durch aufsteigendes ¹⁴CH₄ angenommen wird.

2.3 Berechnung der Exposition durch aus dem Boden freigesetztes ¹⁴CO₂

Die Strahlenexposition durch aus dem Boden freigesetztes ¹⁴CO₂ kann mit Hilfe eines modifizierten spezifischen Aktivitätsmodells berechnet werden. Dazu wird das mittlere ¹⁴CO₂/¹²CO₂-Verhältnis in der bodennahen Luft abgeschätzt. Da CO₂ die einzige Kohlenstoffquelle der Pflanze ist, findet sich das ¹⁴C/¹²C-Verhältnis der Luft in der Pflanze wieder. Die Pflanzen werden entweder direkt verzehrt oder dienen als Tierfutter zur Erzeugung von Milch und Fleisch.

Während der Photosynthese wird CO₂ von der Pflanze aufgenommen, mit Hilfe der Energie der Sonnenstrahlung werden Kohlenhydrate synthetisiert, und Sauerstoff wird an die Atmosphäre abgegeben. In Tabelle 1 sind Netto-Assimilationsraten für verschiedene Ökosysteme angegeben. Unter Bruttoassimilation versteht man die gesamten während der Photosynthese erzeugten Kohlenhydrate. Ein Teil der gebildeten Kohlenhydrate wird jedoch zur Energiegewinnung von den Pflanzen benötigt, wobei wiederum CO₂ entsteht. Die Differenz aus Bruttoassimilation und Atmung der Pflanze wird als Nettoassimilation bezeichnet. Die für die Bruttoassimilation verbrauchten CO₂-Mengen liegen im Bereich von 3-4 g h⁻¹ m⁻² (Geisler, 1980); dies ist etwa um einen Faktor 10 mehr CO₂ als bei der Bodenatmung anfällt.

Der CO₂-Gehalt der Luft beträgt etwa 0,035 Volumen-%, dies entspricht bei einer Dichte des Kohlendioxids von 1,85 kg m⁻³ einem Kohlenstoffgehalt der Luft von 0,175 g ¹²C m⁻³, d.h., ein Pflanzenbestand verbraucht pro Stunde das CO₂ aus 4-5 m³ Luft. Berücksichtigt man, dass durch die Energiegewinnung der Pflanzen und durch die Bodenatmung wiederum CO₂ entsteht, so entspricht der Netto-CO₂-Bedarf dem CO₂-Inventar aus 2-3 m³ Luft. Bei einer täglichen Assimilationsdauer von etwa 10 h bedeutet dies, dass Pflanzenbestände das CO₂-Inventar aus einer 20 m hohen Luftschicht verbrauchen. Durch die Turbulenz der unteren Atmosphäre wird jedoch immer wieder CO₂ aus höheren Luftschichten herangeführt. Dennoch lässt sich eine Abnahme der CO₂-Konzentration in der untersten Luftschicht im Laufe des Tages beobachten. Das Konzentrationsmaximum ergibt sich am Morgen kurz vor dem Einsetzen der Photosynthese, ein Minimum am Abend vor deren Ende (Geisler, 1980).

Tab J.1 Nettoassimilation (g m⁻² a⁻¹) und Trockenmasse-Inventare (kg m⁻²) für verschiedene Ökosysteme

Ökosystem	Nettoassimilation (g Biomasse m ⁻² a ⁻¹) a		Biomasse (kg m ⁻²) ^a		Umsatz (a ⁻¹)
	Typischer	Bereich	Typischer	Bereich	
	Wert		Wert		
Tropischer Regenwald	2200	1000-3500	45	6-80	0.020
Regengrüne Monsun-	1600	1000-2500	35	6-60	
wälder					0.022
Gemäßigter Regen-	1300	600-2500	35	6-200	
wald					0.027
Sommergrüner Laub-	1200	600-2500	30	6-60	
wald					0.025
Boreale Nadelwälder	800	400-2000	20	6-40	0.025
Savanne	900	200-2000	4	0.2-15	0.0044
Gemäßigte Steppen	600	200-1500	1.6	0.2-5	0.0027
Tundra	140	10-400	0.6	0.1-3	0.0043
Halbwüste	90	10-250	0.7	0.1-4	0.0078
Extreme Wüste	3	0-10	0.02	0-0.2	0.0067
Ackerland	650	100-3500	1	0.4-12	0.0015
Sümpfe und Marschen	2000	80-3500	15	3-50	0.0075
Flüsse und Seen	250	100-1500	0.02	0-0.1	8,0E-05
Flussmündungsgebie-	1500	200-3500	1	0.01-6	
te					6,7E-04
Randmeere	360	200-600	0.01	0.001-0.04	2,8E-05
Offener Ozean	125	2-400	0.003	0.005	2,4E-05

^a Der C-Gehalt der Biomasse bezogen auf die Trockenmasse Substanz beträgt etwa 50 %

Die Berechnung der Exposition durch aus dem Boden austretendes ¹⁴C ist in Abb. J.112 dargestellt.

- Methan oder Kohlendioxid gelangen von der Geosphäre in den Boden. Dort wird Methan zu Kohlendioxid oxidiert.
- Das ¹⁴CO₂ tritt aus dem Boden aus und wird durch die Photosynthese gebunden.
 Ein Teil des CO₂ entweicht in die Luftschicht über dem Pflanzenbestand und vermischt sich mit der Luft. Das resultierende ¹⁴C/¹²C-Verhältnis kann durch folgende Annahmen abgeschätzt werden:
 - Das Gebiet, in dem ¹⁴CO₂ aus dem Boden austritt, sei von begrenzter Ausdehnung. Es wird eine kreisrunde Fläche von 1 ha angenommen, dies entspricht einem Radius von etwa 56 m.
 - Die Windgeschwindigkeit in 10 m Höhe betrage im j\u00e4hrlichen Mittel etwa 4 m s¹
 (Troen und Erik, 1991). Daraus ergibt sich unter Annahme einer neutralen Ausbreitungsklasse (Ausbreitungsklasse D) und eines exponentiellen Windpro-

J Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition durch den Eintrag von C-14 in Böden und Oberflächengewässer (Gerhard Pröhl)

fils eine mittlere Windgeschwindigkeit in Vegetationshöhe von ca. 1,5 m s⁻¹. Der Wind verursacht einen ständigen Austausch der bodennahen Luft. Die Austauschrate λ_{ex} ergibt aus dem Verhältnis der Windgeschwindigkeit v und dem Radius des von der Freisetzung von ¹⁴CO₂ betroffenen Gebietes.

Die Mischungsschichthöhe betrage 20 m; d.h., das aus dem Boden austretende ¹⁴CO₂ vermischt sich aufgrund der Turbulenz der bodennahen Luft gleichmäßig in der untersten 20 m dicken Luftschicht. Das in dieser Luftschicht enthaltene CO₂ wird während eines Tages von den Pflanzen während der Photosynthese aufgenommen (siehe oben).

$$R_{^{14}C/^{12}C} = \frac{E}{h \cdot \lambda_{ex} \cdot C_{^{12}C}}$$
 (18)

 $R_{14C/12C}$ = Erhöhung des $^{14}C/^{12}C$ -Verhältnis in Luft (Bq ^{14}C g⁻¹ ^{12}C)

E = Freisetzungsrate von ¹⁴C aus dem Boden (Bq m⁻² s⁻¹)

h = Mischungsschichthöhe (m)

 λ_{ex} = Austauschrate des CO_2 (s⁻¹)

 C_{12C} = 12 C-Gehalt der Luft (g m⁻³)

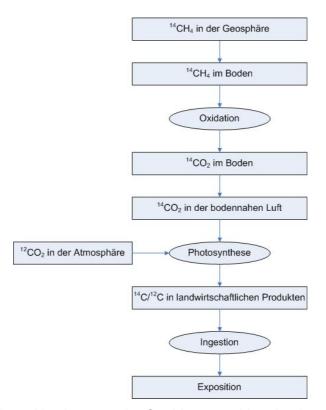


Abb. J.112 Modell zur Abschätzung der Strahlenexposition durch aus dem Boden austretendes ¹⁴C

Für eine ¹⁴C-Freisetzungsrate von 10¹⁰ ha⁻¹ a⁻¹ (0,0317 Bq m⁻² s⁻¹) und die oben beschriebenen Werte für die Größe des Freisetzungsgebietes, der Austauschrate und der Mischungsschichthöhe ergibt sich eine Erhöhung der spezifischen Aktivität der bodennahen Luft von 0,17 Bq ¹⁴C/ g ¹²C. Dieses Verhältnis lässt sich mit dem natürlichen radioaktiven ¹⁴C/¹²C-Verhältnis vergleichen:

- Die spezifische Aktivität von natürlichem biogenem Kohlenstoff beträgt 0,23 Bq ¹⁴C/g¹²C; daraus resultiert eine effektive Dosis von 12 μSv a⁻¹ (UNSCEAR, 1993). Dies entspricht einem Konversionsfaktor von 52 μSv a⁻¹ pro Bg¹⁴C/g¹²C.
- Diesem Wert liegt ein ubiquitäres ¹⁴C/¹²C-Verhältnis zugrunde und setzt voraus, dass sich die exponierte Person ständig an einem Ort mit diesem ¹⁴C/¹²C-Verhältnis aufhält und ausschließlich die dort erzeugte Nahrung verzehrt.

Dies ist jedoch auf einer Fläche von 1 ha überhaupt nicht möglich. Etwas mehr als die Hälfte des mit der Nahrung aufgenommenen organischen Kohlenstoffs ist pflanzlichen Ursprungs. Der Flächenbedarf zur Erzeugung der pflanzlichen Nahrungsmittel ist zwar relativ gering, aber ein großer Teil der Grundnahrungsmittel wird aus Rentabilitätsgründen und arbeitswirtschaftlichen Erwägungen auf Feldern produziert, die in Vielfachen eines Hektars zu messen sind. Um eine gleichmäßige Produktion von Milch und Fleisch zu erzielen, benötigt man eine ganze Herde von Tieren. Bereits eine nach heutigen Maßstäben kleine Herde von 50 Tieren beansprucht bei ausschließlicher Nutzung lokal erzeugter Futtermittel eine Fläche von etwa 25 ha. Aus diesen Gründen ist die o.g. spezifische Aktivität um mindestens einen Faktor 10 zu reduzieren, so dass sich eine Erhöhung der spezifischen Aktivität der bodennahen Luft von 0,017 Bq 14 C/ g 12 C ergibt. Aus der Verknüpfung mit dem Konversionsfaktor von 52 μ Sv a-1 pro Bq 14 C/g 12 C ergibt sich ein Dosiskonversionsfaktor für die effektive Dosis von 9 E-17 Sv a-1 pro Bq 14 C.

Daraus ergibt sich für eine ¹⁴CO₂-Freisetzungsrate von 1 GBq a⁻¹ eine effektive Dosis von 0,076 μSv a⁻¹. Die Exposition erfolgt zu mehr als 99 % durch Ingestion. Der Beitrag der Inhalation ist zu vernachlässigen, da die Verweilzeit im Körper von inhaliertem CO₂ um Größenordnungen geringer ist als die Verweilzeit von mit der Nahrung aufgenommenem organisch gebundenem Kohlenstoff.

J Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition durch den Eintrag von C-14 in Böden und Oberflächengewässer (Gerhard Pröhl)

3 Exposition durch Freisetzung von ¹⁴C in einen See

Dieses Szenario geht von einer Freisetzung von gasförmigem ¹⁴CH₄ in einen See aus. Das Modell ist in Abb. J.113 schematisiert.

Die Berechnung erfolgt unter folgenden Annahmen:

- Das ¹⁴CH₄ wird am Grunde eines Sees freigesetzt. Über den konkreten Freisetzungsmechanismus werden an dieser Stelle keine weiteren Annahmen getroffen.
- Ein Teil des Methans wird zu CO₂ oxidiert. Über die Oxidation von Methan wird in zahlreichen Publikationen berichtet (z.B. Venkiteswaran und Schiff, 2005 Casper et al, 2003; Heilmann und Carlton, 2001).
 Die Umsetzung zu CO₂ hängt von den Redoxbedingungen des Sees ab, die wiederum auch jahreszeitlichen Schwankungen unterliegen. In einem eutrophen See beobachtete Utsumi et al. (1988) die höchsten Methanoxidation von Januar bis April und im Herbst. Insgesamt wurden 74 % des Methans zu CO₂ oxidiert. Dabei ist festzuhalten, dass während des ganzen Jahres ein hohes Redoxpotential zu beobachten war. Rudd and Hamilton (1978) berichten ebenfalls über eine ausgeprägte jahreszeitliche Abhängigkeit der Methanoxidation in einem eutrophen kanadischen See, wobei die höchsten Umsetzungsraten im Herbst gemessen wurden.
- Das entstehende ¹⁴CO₂ wird mit dem ¹²CO₂ während der Photosynthese zu Kohlehydraten assimiliert.

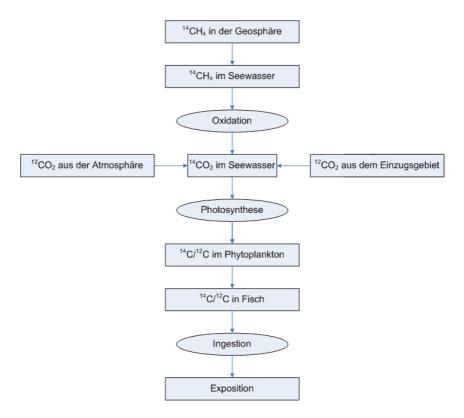


Abb. J.113 Modell zur Abschätzung der Kontamination von Fisch nach Eintrag von ¹⁴CH₄ in einen See.

Das resultierende ¹⁴C/¹²C-Verhältnis in Fisch ergibt sich aus folgenden Überlegungen:

- Der ¹⁴CH₄ Eintrag zum See ist konstant.
- An zwei Dritteln der Tage eines Jahres kommt es zu einer relevanten Photosynthese. Im Winter ist die Assimilation von CO₂ wegen der niedrigen Temperaturen sehr gering.
- Die Photosynthese findet nur während des Tages statt, daraus ergibt sich, dass nur etwa 50 % des eingetragenen ¹⁴C an der Photosynthese beteiligt werden.
- Die Nettoassimilation des Sees beträgt etwa 250 g Biomasse m⁻² a⁻¹ (siehe Tabelle 1). Die Bruttoassimilation ist höher, da etwa ein Drittel bis die Hälfte des assimilierten Kohlenstoffs während der Atmung wieder verloren geht. Die Bruttoassimilation beträgt daher etwa 200 g ¹²C m⁻² a⁻¹.
- Bei stattfindender Photosynthese während des Tages ergibt sich ein CO₂Nettofluss von der Luft zum Wasser. In Zeiten ohne Photosynthese wird von Sheppard (2006) für CO₂ in der obersten 1 m dicken Wasserschicht eine mittlere Verweilzeit von 0.5 d angegeben. Daraus folgt, dass der gesamte jährliche CO₂-Fluss

J Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition durch den Eintrag von C-14 in Böden und Oberflächengewässer (Gerhard Pröhl)

Luft-Wasser um wenigstens einen Faktor 2 höher sein muss als die jährliche Bruttoassimilation.

- Die resultierenden ¹⁴C-Aktivitäten in Fisch sind in guter Übereinstimmung mit Experimenten, die in einem kanadischen See durchgeführt wurden, sofern man die unterschiedliche Größe des Sees und dessen Produktivität berücksichtigt. Dabei wurde in einen See eine Einzelgabe von ¹⁴C appliziert. Nach einem Jahr ergaben sich ¹⁴C-Aktivitäten in Fisch von 70-140 kBq kg-¹ (BIOMOVS, 1996; Bird, 1999). Wendet man den hier beschriebenen Ansatz auf die Bedingungen in Bird (1999) an, so ergeben sich nach deterministischer Berechnung ¹⁴C-Gehalte von 140 kBq kg-¹ in Fisch.
- Darüberhinaus wird ¹²CO₂ aus dem Einzugsgebiet eingetragen:
 - Dabei wird angenommen, dass 20 % des Niederschlags des Einzugsgebietes mit dem Oberflächenabfluss in den See transportiert werden. Dieser Wert hängt natürlich von den lokalen Gegebenheiten wie Niederschlag, Niederschlagsintensität, Neigung des Geländes, Bodenart sowie der Vegetation ab.
 - Im Niederschlagswasser ist ¹²CO₂ entsprechend dem atmosphärischen Partialdruck (0,8 g ¹²CO₂ bei 10°C) enthalten.
 - Für die Größe des Einzugsgebietes wird angenommen, dass diese 10-mal so groß ist wie die Fläche des Sees. Daraus ergibt sich bei einem Niederschlag von 600 mm a⁻¹ und einem Oberflächenabfluss von 20 % ein ¹²CO₂-Eintrag zum See von wenigen g m⁻² a⁻¹. Dieser Eintrag ist gering im Vergleich zum CO₂-Fluss Luft-See.

Die Parameter sind in Tabelle 2 zusammengefasst. Nach den oben beschriebenen Randbedingungen ergibt sich dann das ¹⁴C/¹²C-Verhältnis in Fisch aus:

$$R_{^{14}CI^{12}C,Fi} = \frac{\frac{f_{CO_2} \cdot I_{^{14}C} \cdot E_{CO_2}}{A_{See}}}{\frac{P_{^{12}C}}{E_{CO_2}} + \frac{RF \cdot S_{CO_2} \cdot (A_{See} + A_{Einz} \cdot RO)}{A_{See}}}$$
(2)

wobei

$$R_{^{14}\mathrm{C}/^{12}\mathrm{C.Fi}}$$
 = $^{14}\mathrm{C}/^{12}\mathrm{C}\text{-Verhältnis}$ in Fisch (Bq $^{14}\mathrm{C}$ g- 1 $^{12}\mathrm{C})$

```
f_{CO_2} = ^{14} \mathrm{CH_4-Anteil}, \ \mathrm{der} \ \mathrm{zu} \ ^{14} \mathrm{CO_2} \ \mathrm{oxidiert} \ \mathrm{wird} \ \mathrm{und} \ \mathrm{während} \ \mathrm{der} \ \mathrm{Photosynthese} \ \mathrm{assimiliert} \ \mathrm{wird} \ I_{^{14}C} = ^{14} \mathrm{CH_4-Eintrag} \ \mathrm{des} \ \mathrm{Sees} \ (\mathrm{Bq} \ \mathrm{a^{-1}}) \ P_{^{12}C} = \mathrm{Bruttoassimilation} \ (\mathrm{g} \ ^{12} \mathrm{C} \ \mathrm{m^{-2}} \ \mathrm{a^{-1}}) \ E_{CO_2} = \mathrm{Anteil} \ \mathrm{des} \ \mathrm{gesamten} \ \mathrm{CO_2-Flusses} \ \mathrm{Atmosphäre-Wasser}, \ \mathrm{der} \ \mathrm{während} \ \mathrm{der} \ \mathrm{Photosynthese} \ \mathrm{assimiliert} \ \mathrm{wird} \ A_{\mathrm{See}} = \mathrm{Seefläche} \ (\mathrm{m^2}) \ A_{\mathrm{Einz}} = \mathrm{Fläche} \ \mathrm{des} \ \mathrm{Einzugsgebietes} \ (\mathrm{m^2}) \ \mathrm{RF} = \mathrm{Jährlicher} \ \mathrm{Niederschlag} \ (\mathrm{mm} \ \mathrm{a^{-1}}) \ \mathrm{RO} = \mathrm{Anteil} \ \mathrm{des} \ \mathrm{Oberflächenabflusses} \ \mathrm{am} \ \mathrm{Niederschlag} \ S_{CO_3} = \mathrm{L\"{o}slichkeit} \ \mathrm{von} \ \mathrm{CO_2} \ \mathrm{in} \ \mathrm{Wasser} \ (\mathrm{g} \ \mathrm{m^{-3}}) \ \mathrm{value} \ \mathrm{value}
```

Die Exposition durch den Verzehr von Fisch ergibt sich dann aus:

$$C_{^{14}C,fi} = R_{^{14}Cf^{12}C,Fi} \cdot C_{^{12}C,fi} \cdot I_{fi} \cdot DC_{ing,^{14}C}$$
(3)

wobei

Doel
$$C_{^{14}C,fi} = ^{14}\text{C}$$
 in Fisch (Bq kg $^{-1}$)
 $C_{^{14}C,fi} = ^{12}\text{C}$ —Gehalt von Fisch (g kg $^{-1}$)

 $I_{\text{fi}} = \text{J\"{a}}$ hrlicher Fischverzehr (kg a $^{-1}$)
 $DC_{\text{ing},^{14}C} = \text{Dosiskoeffizient f\"{u}r} ^{14}\text{C} \text{ (Sv Bq}^{-1})$

Zusätzlich zum Verzehr von 10 kg a⁻¹ Fisch wird die Aufnahme von Trinkwasser (700 I a⁻¹) betrachtet. Für Fisch wird der Dosiskoeffizient nach ICRP (2003) für organischen Kohlenstoff zugrunde gelegt, während für die Aufnahme von Trinkwasser der Dosiskoeffizient für anorganischen Kohlenstoff von Leggett (2004) verwendet wird.

Die resultierenden Dosiskonversionsfaktoren sind ebenfalls in Tabelle 2 zusammengefasst. Aus den hier zugrunde gelegten Randbedingungen ergeben sich Werte von 3,6E-14 Sv a⁻¹ pro Bq/a für den kleinen und 3,6E-17 Sv a⁻¹ pro Bq a⁻¹ für den großen See.

Tab. J.2 Parameter zur Berechnung der Strahlenexposition nach Eintrag von gasförmigem ¹⁴C in einen See

	Best-				
Parameter	estimate	Bemerkung			
Seefläche See (km²)					
Kleiner See	0,01	Vordefiniert			
Großer See	10				
¹⁴ CH ₄ -Anteil, der zu ¹⁴ CO ₂ oxidiert	Abhängig von Temperatur und Licht				
wird		Abriangig von Temperatar and Elent			
Einzugsgebiet (Vielfaches der Seeflä-	Vordefiniert				
che)					
Großer und kleiner See	10.0	Vordefiniert			
Niederschlag (m a ⁻¹)	0.6	Typischer Wert für Norddeutschland			
Anteil des Oberflächenabflusses	0.2				
Produktivität des Sees(g C m ⁻² a ⁻¹)	200				
CO ₂ -Löslichkeit in Wasser bei 10°C 0.8					
$(g m^{-3})$					
Ausnutzung des CO ₂	0.5	Durch Lichteinfluss hervorgerufene			
-		Schwankungen des CO ₂ -Flusses			
		Atmosphäre-Wasser			
Fischverzehr (kg a ⁻¹)	10				
¹² C-Gehalt von Fisch (g kg ⁻¹)	100	Typischer Wert			
Dosiskoeffizient für ¹⁴ C (org.) (Sv Bq ⁻¹)	5.7E-10	ICRP (1993)			
Trinkwasseraufnahme (I a ⁻¹)	700	Physiologisch notwendige Wasserauf-			
		nahme			
Dosiskoeffizient für ¹⁴ C (anorg.) (Sv	2.0⊑.11	Leggett (2004)			
Bq ⁻¹)	2,96-11				
Dosiskonversionsfaktor (Sv a ⁻¹ pro Bq					
a^{-1})					
Kleiner See	3,6E-14				
Großer See	3,6E-17				

4 Zusammenfassung und Schlussfolgerungen

In diesem Beitrag wird die potentielle Strahlenexposition des Menschen durch Einträge von gasförmigen Kohlenstoffverbindungen in landwirtschaftlich genutzte Böden und Seen abgeschätzt. Aus den Arbeiten können folgende Schlussfolgerungen gezogen werden:

- Von zentraler Bedeutung für die resultierende Exposition ist die chemische Form, in der ¹⁴C freigesetzt wird. Da Methan nicht während der Photosynthese assimiliert wird, ist dessen radiologische Bedeutung gering. Demgegenüber wird ¹⁴CO₂ durch die Photosynthese sehr effektiv in die Nahrungskette eingeschleust.
- ¹⁴CH₄ kann allerdings sowohl im Boden als auch im Wasser zu ¹⁴CO₂ oxidiert werden. Die Konversion h\u00e4ngt von der Temperatur, der mikrobiellen Aktivit\u00e4t und ins-

besondere dem Redoxpotential ab. Über die Existenz dieser Prozesse gibt es keinen Zweifel, deren Quantifizierung ist jedoch schwierig. Wegen des langen Zeitraums wurde in dieser Abschätzung angenommen, dass das gesamte eingetragene ¹⁴CH₄ zu ¹⁴CO₂ oxidiert wird. Dies ist eine pessimistische Annahme.

- Es wird angenommen, dass der ¹⁴C-Eintrag kontinuierlich erfolgt; für die Exposition ist nur der Anteil von Bedeutung, der während der Zeiten der Photosynthese eingetragen wird. Im Winter ist die Assimilation wegen der niedrigen Temperaturen nur gering, außerdem findet nachts keine Assimilation statt. Daraus ergibt sich, dass deutlich weniger als 50 % des eingetragenen ¹⁴C während der Photosynthese assimiliert werden sollte. Wegen der Unsicherheiten werden jedoch 50 % angenommen.
- Nach dem Eintrag von ¹⁴CH₄ in den Boden wird angenommen, dass dieses dort zu ¹⁴CO₂ oxidiert wird und in die bodennahe Luftschicht entweicht, wo es zusammen mit dem atmosphärischem ¹²CO₂ assimiliert wird. Das ¹⁴C/¹²C-Verhältnis in der Pflanze ergibt sich aus dem ¹⁴C/¹²C-Verhältnis der bodennahen Luft. Dieses wird aus der Größe des betroffenen Gebietes, der mittleren Windgeschwindigkeit und der Mischungsschichthöhe berechnet.
- Die ¹⁴C-Aktivität in Fisch ergibt sich aus dem ¹⁴C-Input und der Produktivität des Sees, wobei der CO₂-Austausch zwischen Wasser und Atmosphäre berücksichtigt wird. Dieser Austausch ist stark von der Tageszeit abhängig. Wenn Photosynthese stattfindet, ist der CO₂-Fluss Atmosphäre-Wasser bestimmend, in Zeiten ohne oder mit sehr geringer Photosynthese kehrt sich die Flussrichtung um.
- Der Vergleich des Modells mit Ergebnissen eines Freilandexperiments ergibt eine gute Übereinstimmung.
- Im Vergleich zur Exposition durch den Verzehr von Fisch ist die Aufnahme von Trinkwasser bedeutungslos.
- Sensitive Parameter in der terrestrischen Umwelt sind die Methanoxidation, die Windgeschwindigkeit und die Mischungsschichthöhe. Im aquatischen Bereich gehen insbesondere die Methankonversion, die hydraulischen Parameter des Sees, dessen Produktivität und der Gasaustausch zwischen Atmosphäre und Wasser sensitiv ins Ergebnis ein.

Die hier beschriebenen Modelle berücksichtigen die wesentlichen Prozesse, die zu einer Strahlenexposition durch ¹⁴CH₄ und ¹⁴CO₂ führen. Die berücksichtigten Prozesse sind jedoch mit zum Teil erheblichen Unsicherheiten behaftet, auf die in diesem Beitrag nur ansatzweise eingegangen wurde. Wegen der ausgeprägten Abhängigkeit von tages- und jahreszeitlichen Einflüssen der Photosynthese ergeben sich für die Modellparameter erhebliche Variabilitäten und Unsicherheiten, die noch einer detaillierten Analyse bedürfen.

5 Literatur

- BIOMOVS: Validation test for carbon-14 migration and accumulation in a Canadian Shield Lake; BIOMOVS II, Technical Report 14, 1996.
- Bird, G.A, Bergström, U., Nordlinder, S., Neal, S.L., Smith, G.M.: Model simulation of the fate of ¹⁴C added to a Canadian shield lake, Journal Environm. Radioactivity, 42, 209-223, 2003.
- Boeckx, P, van Cleemput, O.: Influence of chemical and physical soil properties on CH₄ oxidation in soils. In: P. Borrell, P. Borell, T. Cvitas, K. Kelly, W. Seiler (ed).:
 Transport and Transformation of Pollutants in the Troposphere; Vol. 2, 409-413, Computational Mechanics Publications, Southampton, 1996.
- Casper, P., Chan, C.O. Furtado, A.L.S., Adams, D.D.: Methane in an acidic bog lake:

 The influence of peat in the catchment on biogeochemistry of methane;

 Aquat. Science; 65, 36-46, 2003.
- Geisler. G.: Pflanzenbau; Verlag Paul Parey. Berlin und Hamburg. 1980.
- Heilmann, M.A., Carlton, R.G.: Methane oxidation associated with submersed vascular macrophytes and its impact on plant diffusive processes, Biogeochemistry, 52, 207-224, 2001.
- ICRP: Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: ICRP Publication 71 and 72. 1996.

- ICRP: Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP Publication 66. 1995.
- Leggett, R.W.: A biokinetic model for carbon dioxide and bicarbonate; Radiation Protection Dosimetry, 108, 203-213, 2004.
- Rudd, W.M.; Hamilton, R.D.: Methane cycling in an eutrophic shield lake and its effects on whole lake metabolism; Limnology and Oceanography, 23, 337, 1978.
- Scheffer, F.; Schachtschabel, P.: Lehrbuch der Bodenkunde, Ferdinand Enke Verlag Stuttgart, 1992.
- Sheppard, S.C., Ciffroy, P., Siclet, F., Damois, C., Sheppard, M.I., Stephenson, M.: Conceptual approaches for the development of dynamic specific activity models of ¹⁴C transfer from surface water to humans, J. Environmental Radioactivity, 87, 32-51, 2006.
- Sheppard, S.C., Sheppard, M.I., Siclet, F.: Parameterization of a dynamic specific activity model of ¹⁴C transfer from surface water-to-humans, J. Environmental Radioactivity, 87, 15-31, 2006.
- Strasburger, E.: Lehrbuch der Botanik, Spektrum Akademischer Verlag, 2002.
- Troen & Erik Lundtang Petersen: European Wind Atlas, Risoe National Laboratory, Risoe, Denmark, 1991, ISBN 87-550-1482-8
- UNSCEAR (United Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation): Report to the General Assembly 1988; United Nations, New York, 1993.
- Utsumi, M., Nojiri, Y., Nakamura, T., Nozawa, T., Otsuki, A., Seki, H.: Oxidation of dissolved methane in eutrophic, shallow lake: Lake Kasumigaura, Japan; Limnology and Oceanography, 43, 471-480, 1998.
- Venkiteswaran, J.J., Schiff, S.L.: Methane oxidation, isotopic enrichment factors in freshwater boreal reservoirs; Applied Geochemistry; 20, 683-690, 2005.

- J Abschätzung der potentiellen Strahlenexposition durch den Eintrag von C-14 in Böden und Oberflächengewässer (Gerhard Pröhl)
- Wild, A.: Umweltorientierte Bodenkunde; Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg, Berlin, Oxford, 1995.

Gesellschaft für Anlagenund 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