

Verhalten und
Barrierewirkung
toniger Wirtsgesteine
in einem
Endlagersystem für
radioaktive Abfälle



Verhalten und
Barrierewirkung
toniger Wirtsgesteine
in einem Endlagersystem
für radioaktive Abfälle

M. Navarro

Januar 2005

Auftrags-Nr.: 835800

Anmerkung:

Dieser Bericht ist von der GRS im Auftrag des BMU im Rahmen des Vorhabens SR 2451 erstellt worden. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt werden bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

Kurzfassung

Intensive langjährige Forschungsarbeiten auf nationaler und internationaler Ebene haben die prinzipielle Eignung toniger Gesteine und Sedimente als Wirtsgesteine für die Endlagerung radioaktiver Abfälle aufgezeigt. Da in Deutschland die Möglichkeit der Endlagerung in tonigen Gesteinen erst seit kurzer Zeit betrachtet wird, besteht hier Bedarf an einer Zusammenfassung des internationalen Standes von Wissenschaft und Technik. Dies wird im vorliegenden Bericht vorgenommen. Die Darstellung erfolgt anhand von Prozessen, die bei der Entwicklung eines Endlagers erwartet werden, dessen Barrierenintegrität nicht durch disruptive Ereignisse gestört wird. Abschließend wird der derzeitige Forschungsbedarf umrissen und eine Charakterisierung und Bewertung der Barriereigenschaften toniger Wirtsgesteine durchgeführt.

Abstract

Intensive and long lasting studies both at national and international level have shown that argillaceous rocks are suitable as host rocks for the disposal of radioactive wastes in principle. Since in Germany the option of disposing of radioactive waste in argillaceous rocks has been considered for only a short time there is a need to summarise the international state of the art in science and technology, which will be undertaken in this report. The presentation will be oriented on processes which are expected to occur during the evolution of a repository whose barrier integrity is not disturbed by disruptive events. Topics of further research are outlined and barrier properties of argillaceous host rocks are characterised and evaluated.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Zielsetzung	1
1.2	Informationsquellen	2
1.3	Das FEPCAT-Projekt	6
2	Definitionen	11
2.1	Ton	11
2.2	Bergbaulich beeinflusste Zone (EDZ)	11
2.3	Selbsteilung	12
2.4	Diffusionskoeffizienten	13
2.5	Nahfeld und Fernfeld	16
3	Definition von Prozessgruppen	18
4	Folgen der Endlagerkonstruktion und Ventilation	25
4.1	Überblick	25
4.2	Bildung von hydraulisch und mechanisch gestörten Zonen	26
4.3	Oxidation durch die Bewetterungsluft	30
4.4	Salzanreicherung durch Evaporation	33
5	Folgen der thermischen Störung	35
5.1	Überblick	35
5.2	Wärmetransport	35
5.3	Thermisch induzierte hydromechanische Prozesse	38
5.4	Chemische und mineralogische Wirkung erhöhter Temperaturen	42
6	Folgen der hydromechanischen Störung	45
6.1	Überblick	45
6.2	Aufsättigung der Bentonitbarriere	45
6.3	Entwicklung der Porenwasserdrücke im Wirtsgestein	48
6.4	Selbsteilung durch hydromechanische Prozesse	51

7	Folgen der chemischen Störung	56
7.1	Überblick	56
7.2	Illitisierung von Smektit durch hochalkalische Lösungen	56
7.3	Einfluss eisenhaltiger Lösungen auf die Smektit-Stabilität	60
7.4	Alteration von Eisen- und Magnesiumoxiden	61
7.5	Mikrobiologische Aktivität	62
8	Folgen der Gasgenerierung	66
8.1	Überblick	66
8.2	Migration von gelöstem Gas	67
8.3	Migration einer Gasphase	69
9	Folgen der Radionuklidfreisetzung	77
9.1	Überblick	77
9.2	Diffusiver Radionuklidtransport	78
9.3	Advektiver Radionuklidtransport	82
9.4	Rückhalte Mechanismen	86
9.5	Radionuklidtransport durch gekoppelte Fließphänomene	92
9.6	Radionuklidtransport durch freie Konvektion	95
9.7	Radionuklidtransport an Kolloiden	96
9.8	Radionuklidtransport an gelösten organischen Stoffen	98
9.9	Gasgetriebener Transport von Radionukliden	102
10	Zusammenfassung des Forschungsbedarfs	104
11	Bewertung toniger Wirtsgesteine	106
11.1	Charakteristische Eigenschaften	106
11.2	Ableitung von Barrierefunktionen	108
11.3	Einfluss des Verfestigungsgrades auf die Barrierequalität	110
11.4	Probleme der Nachweisbarkeit	111
11.5	Folgerungen für das Multibarrierensystem	112
12	Schlussfolgerung	114

1 Einleitung

1.1 Zielsetzung

International werden Tone und Tonsteine seit Jahren als potenzielle Wirtsgesteine für radioaktive Abfälle erforscht. Bis zur Vereinbarung der Bundesregierung mit den Energieversorgungsunternehmen vom 14. Juni 2000 /BMU 00/ wurde in Deutschland lediglich eine Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle in Salzgesteinen in Betracht gezogen. In der Vereinbarung mit den Energieversorgungsunternehmen erklärte die Bundesregierung die Notwendigkeit, die Eignungskriterien für ein Endlager fortzuentwickeln und die Konzeption für die Endlagerung radioaktiver Abfälle zu überarbeiten. Dabei ist u.a. auch die Eignung von Ton als Wirtsgestein zu prüfen.

Das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU) hat die GRS Köln im Rahmen des Vertrages SR 2451 beauftragt, die Vorgehensweise bei der Nachweisführung der Sicherheit von Endlagern für radioaktive Abfälle in der Nachbetriebsphase (Langzeitsicherheitsnachweis) zu bewerten und diesbezüglich Sachverständigenkapazität zu entwickeln. Dieser Zielsetzung folgend, wird im vorliegenden Bericht der internationale Stand von Wissenschaft und Technik bezüglich der Endlagerung radioaktiver Abfälle in tonige Wirtsgesteine zusammengefasst und eine Bewertung dieses Wirtsgesteinstyps vorgenommen.

Die Darstellung des internationalen Kenntnisstandes erfolgt im Bericht anhand einer Charakterisierung und Bewertung von Prozessen, die bei der Entwicklung eines Endlagers erwartet werden, dessen Barrierenintegrität nicht durch disruptive Ereignisse gestört wird. Natürliche und anthropogene Ereignisse, die von außen auf das Barrierensystem einwirken und seine Integrität verletzen können (Vulkanismus, starke tektonische Störungsbildung, menschliches Eindringen etc.), werden demnach nicht betrachtet. Ausgeklammert werden auch Aspekte der technischen Machbarkeit von Endlagerkomponenten. Es wird davon ausgegangen, dass das Endlagerkonzept eine technische Barriere aus Bentonit vorsieht.

Zwischen den Prozessen, die in einem Endlagersystem ablaufen, bestehen vielfältige Wechselwirkungen. Um die komplexen Prozesszusammenhänge während der Ent-

wicklung eines Endlagersystems übersichtlich zu strukturieren, werden Prozesse, die zusammen gehörig erscheinen in dem Sinne, dass sie entweder stark gekoppelt sind, zeitgleich ablaufen oder ähnliche Ursachen oder Wirkungen besitzen, vereinfachend zu Prozessgruppen zusammengefasst. Es wird aufgezeigt, welche Störungen der geologischen und technischen Barriere von den jeweiligen Prozessgruppen ausgehen.

Für jeden betrachteten Prozess erfolgt

- eine Prozessbeschreibung,
- eine Zusammenstellung wichtiger Befunde,
- eine Zusammenstellung des Standes der Wissenschaft, wobei schwerpunktmäßig auf Probleme des Prozessverständnisses und der Prozessquantifizierung eingegangen wird,
- eine Diskussion der Möglichkeiten, den Prozess in Sicherheitsanalysen zu behandeln,
- und eine Auswahl relevanter Projekte (Schwerpunkt auf EC-Projekten).

Der Bericht schließt mit einer Zusammenfassung und Bewertung charakteristischer Eigenschaften toniger Wirtsgesteine.

1.2 Informationsquellen

1.2.1 Bisherige Untersuchungen im Rahmen nationaler Entsorgungsprogramme

Wichtige Informationsquellen für den vorliegenden Bericht sind die zahlreichen Berichte, wissenschaftlichen Veröffentlichungen und Reviews im Rahmen von nationalen Entsorgungsprogrammen. In Belgien, Frankreich und der Schweiz sind die Untersuchungsprogramme für tonige Wirtsgesteine bereits sehr weit fortgeschritten. Ein Großteil der Forschungsaktivitäten fand dabei in Zusammenhang mit Untertageforschungslaboratorien, im Folgenden URL (underground research laboratories) genannt, statt. Weitere Studien zu tonigen Wirtsgesteinen wurden auch in Spanien, Ungarn und Japan durchgeführt.

Belgien. Im belgischen URL HADES, nahe der Stadt Mol, werden in ca. 220 m Tiefe Experimente im plastischen Boom Clay durchgeführt, der das belgische Referenzgestein für die Endlagerung langlebiger mittelaktiver und hochaktiver Abfälle ist. Als alternatives Wirtsgestein zum Boom Clay wurden durch Ondraf/Niras und SCK•CEN anhand von Bohrungen die Tone des Ypresian am Standort Doel untersucht.

Die Arbeiten am URL HADES reichen bis ins Jahr 1975 zurück. Ziel war u.A. der Nachweis, dass die Errichtung eines Endlagers in plastischem Ton auch in größeren Tiefen möglich ist. Das URL HADES wird von internationalen Projektgruppen genutzt, vor allem jedoch von Ondraf/Niras und SCK•CEN. Eine Synthese der Untersuchungen im Boom Clay hat Ondraf/Niras mit dem Zwischenbericht SAFIR-2 /NIR 01/ vorgelegt, für den ein internationales Peer-Review durchgeführt wurde /NEA 03b/.

Schweiz. Die 1993 begonnenen Untersuchungen der tonig-mergeligen Palfris Formation bei Wellenberg als Wirtsgestein für die Endlagerung kurzlebiger radioaktiver Abfälle wurden 2002 aufgrund der Ablehnung der dortigen Bevölkerung gestoppt. Derzeitig wird von der NAGRA im Zürcher Weinland der Opalinuston, ein verfestigter Tonstein, als potenzielles Wirtsgestein für die Endlagerung hochaktiver und langlebiger mittelaktiver Abfälle betrachtet. Die Untersuchungen dienen in erster Linie der Erbringung des Entsorgungsnachweises und sind nicht Ausgangspunkt für ein Bewilligungsverfahren. Konzipiert ist ein Endlager in 600 m bis 700 m Tiefe. Die von der NAGRA durchgeführten Arbeiten umfassen seismische Messungen im Zürcher Weinland, eine Sondierungsbohrung bei Benken sowie Untersuchungen und Experimente im Felslabor Mont Terri, an denen internationale Projektgruppen mitwirken. Die NAGRA hat im Dezember 2002 den Sicherheitsbericht „Projekt Entsorgungsnachweis“ zum Opalinuston veröffentlicht /NAG 02b/, für den die OECD/NEA ein Peer-Review durchgeführt hat /NEA 04/.

Frankreich. In Frankreich wurden jurassische und kretazische Tonsteine an verschiedenen Standorten untersucht. 1990 gründete die IRSN in Südfrankreich das URL Tournemire, das durch den Ausbau eines alten Eisenbahntunnels entstand. Im URL Tournemire sind verfestigte Tonsteine und Mergel des unteren Jura (Domerian und Toarcian) aufgeschlossen. Seit 1993 wurden durch die ANDRA zunächst die kretazischen Ton- und Siltsteine („Couche silteuse“) bei Marcule (Gard) untersucht, bis die Entscheidung schließlich auf den Standort Bure fiel. Die Gesteine am Standort „Site de Bure“, der auch „Site Meuse-Haute Marne“ und „Site de l'Est“ genannt wird, sind verfestigte Tonsteine des mittleren und oberen Jura (Callovian bis unteres Oxfordian;

daher oft COx-Tone genannt). Nach umfangreichen Bohrungsanalysen werden derzeit Schächte zur Errichtung eines URL abgeteuft. Angestrebt wird eine Tiefe von ca. 500 m. Die ANDRA hat für den Standort Bure den vorläufigen Sicherheitsbericht „Dossier 2001 Argile“ /AND 01/ veröffentlicht, zu dem ein internationales Peer-Review durchgeführt wurde /NEA 03c/.

Spanien: In Spanien werden sowohl Granit als auch Ton als Wirtsgesteine in Betracht gezogen /ENR 99/. Als Referenzton wurde durch die ENRESA eine kontinentale, oligozäne bis miozäne Tonablagerung mit einer Mächtigkeit von 300 m und einer Tiefe über 80 m ausgewählt.

Ungarn: Westlich der Stadt Pécs wurde der unter oxidierenden Bedingungen abgelagerte permische Boda Ton in einer Tiefe von ca. 1050 m in einem ehemaligen Bergwerk untersucht. Die Arbeiten wurden durch Mecsec Ore Environment und Puram zwischen 1993 und 1999 durchgeführt /KOV 03/. Danach wurde die Grube geflutet.

Japan: Im Zuge der Uran-Exploration fand eine Analyse der miozänen Tone und Tonsteine der Mizunami Group von Tono statt. Die Arbeiten wurden durch JNC und Mizunami Fossil Museum durchgeführt und sind in den Sicherheitsbericht H12 eingeflossen /JNC 00/, der einem internationalen Peer-Review unterzogen wurde /NEA 99/.

1.2.2 Arbeitsgruppe „Clay Club“ der OECD/NEA

Wichtige Arbeiten zum Stand von Wissenschaft und Technik auf dem Gebiet der Endlagerung im Ton veröffentlicht die „*Working Group on the Characterisation, the Understanding and the Performance of Argillaceous Rocks as Repository Host Formations*“ der NEA (kurz „Clay Club“).

Die Veröffentlichung des Clay Clubs umfassen u.A. die Themen Transportprozesse /HOR 96/, Porenwasser-Extraktion /NEA 00/ und Selbstheilung /NEA 01/. Ende 2003 publizierte der Clay Club den „*Features, Events and Processes Evaluation Catalogue for Argillaceous Media*“ (FEP-CAT), der einen Überblick über den Stand von Wissenschaft und Technik zu einzelnen FEPs gibt und eine wichtige Informationsquelle für den vorliegenden Bericht darstellt /MAZ 03/. Aus diesem Grund wird ihm ein

gesonderter Abschnitt gewidmet (Abschnitt 1.3). Die Veröffentlichung des „Catalogue of Characteristics“ war für Anfang 2005 geplant.

Auf seinem 13. Treffen im Oktober 2003 in Paris stellte der Clay Club seine aktuellen Themenschwerpunkte vor. Diese umfassen die Gebiete

- Selbstheilung,
- Natürliche Tracer zur Untersuchung langfristiger Vorgänge,
- Organische Substanzen und mikrobiologische Aktivität.

Auf der Tagung „*Stability and Buffering Capacity of the Geosphere for Long-term Isolation of Radioactive Waste: Application to Argillaceous Media*“ im Dezember 2003 in Braunschweig gab der Clay Club einen Überblick über den Stand von Wissenschaft und Technik zum Thema Selbstheilung /NEA 03/.

1.2.3 Internationale Workshops und Tagungen

Im Jahr 2002 richtete die ANDRA in Reims eine internationale Tagung zum Thema „Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement“ aus. Für den vorliegenden Bericht erfolgte eine Auswertung des umfangreichen Abstract-Bandes /AND 02/.

Im September 2003 fand in Gyeonngju, Korea die Tagung MIGRATION '03 statt, bei der verschiedene Arbeiten mit Relevanz für die Endlagerung in tonigen Wirtsgesteinen vorgestellt wurden /KAE 03/.

Die Bedeutung der bergbaulich bedingten Auflockerungszone (EDZ) für die Endlager-sicherheit war Thema einer internationalen CLUSTER-Konferenz der Europäischen Kommission, die im November 2003 in Luxemburg abgehalten wurde /EUR 03c/.

Auf der bereits oben erwähnten internationalen Tagung „*Stability and Buffering Capacity of the Geosphere for Long-term Isolation of Radioactive Waste: Application to Argillaceous Media*“ im Dezember 2003 in Braunschweig wurden verschiedene Aspekte der Endlagerung in tonigen Wirtsgesteinen betrachtet und diskutiert /NEA 03/.

Im Januar 2004 richtete die SCK•CEN einen Workshop zu den experimentellen Programmen im URL HADES aus, bei dem aktuelle Experimente vorgestellt und Möglichkeiten für zukünftige internationale Gemeinschaftsprojekte im Rahmen des PRACLAY-Projektes diskutiert wurden /EUR 04/.

Auf der Tagung „*Euradwaste '04, Radioactive waste management Community policy and research initiatives*“, die Ende März 2004 in Luxemburg stattfand, wurde der Stand aktueller EC-Projekte u.A. zum Thema der Endlagerung im Ton vorgestellt /EUR 04/.

Im Oktober 2004 fand in Mol, Belgien, das SELFRAC Exchange Meeting statt. Es wurden die Ergebnisse des EU-SELFRAC-Projektes vorgestellt, dass sich mit Selbstheilungsprozessen in Tonen beschäftigte.

1.3 Das FEPCAT-Projekt

Das FEPCAT-Projekt stellt eine wichtige Informationsquelle für den vorliegenden Bericht dar und wird daher ausführlicher beschrieben.

Das FEPCAT-Projekt wurde 1998 initiiert und von den Organisationen Andra (FR), Enresa (ES), IRSN (FR), JNC (JA), Nagra (CH), Nirex (GB), Ondraf/Niras (BE) und SCK•CEN (BE) finanziert. Es wurde eine Lenkungsgruppe (Steering Group) aus Vertretern dieser Organisationen und eine Expertengruppe (Expert Group) aus Vertretern der Institutionen Q+S Consult (DE), Institute of Geological Sciences, University of Bern (CH), Ground-Water Geochemistry, New Bern, North Carolina (USA) und SCK•CEN (BE) für die fachlichen Arbeiten gebildet. Daneben wurden externe Experten mit speziellen Fragestellungen betraut.

Die Zielsetzungen des FEPCAT-Projekts umfassen:

- Ableitung einer Liste von FEPs, die spezifisch für tonige Medien sind. Es wurden nur relevant erscheinende FEPs betrachtet.
- Überblick über vergangene, aktuelle und geplante in-situ- und Laborexperimente.
- Verknüpfung von Standortuntersuchungen mit ihrer Anwendung in Sicherheitsnachweisen. Bereitstellung einer wissenschaftlichen Grundlage zur Bewertung der Geosphärenfunktion (geosphere performance).

- Definition zukünftiger Prioritätsfelder, um ein besseres Verständnis toniger Medien zu erzielen.
- Definition von Begriffen, deren Bedeutung zwischen verschiedenen Ländern oder wissenschaftlichen Disziplinen variiert. Verbindung der Terminologie aus dem Entsorgungsbereich mit dem allgemeinen wissenschaftlichen Gebrauch.

Die Ergebnisse des FEPCAT-Projektes wurden im Jahre 2003 mit dem Bericht „*Features, Events and Processes Evaluation Catalogue for Argillaceous Media*“ vorgestellt /MAZ 03/. Ein wichtiges Ergebnis des FEPCAT-Projekts ist die Bewertung von FEPs hinsichtlich ihrer Sicherheitsrelevanz und dem derzeitigen Kenntnisstand, wodurch Prioritätsfelder für zukünftige Forschungsschwerpunkte aufgezeigt werden. Darüber hinaus werden Themenfelder identifiziert, die derzeit von internationalem Interesse sind.

Die im FEPCAT zusammengetragenen Befunde zu den einzelnen FEPs enthalten zu einem großen Anteil Forschungsergebnisse, die im Rahmen nationaler Entsorgungsprogramme erzielt wurden, und beziehen insbesondere auch aktuelle Untersuchungen zum Boom Clay im URL HADES (BE), zum Opalinuston im Zürcher Weinland und im Felslabor Mont Terri (CH) und zum Collovo-Oxfordischen Tonstein der Site de Bure (FR) mit ein. Informationen zu den einzelnen FEPs wurden mit Hilfe eines allgemeinen Fragebogens zusammengetragen, in dem u.A. folgende Themen abgefragt werden:

- Skalenproblematik,
- Grad des wissenschaftlichen Verständnisses,
- Grad des Verständnisses aus der Sicht der Sicherheitsanalyse und Behandlung in Sicherheitsanalysen,
- Gesamtbewertung.

Der Fragebogen versucht damit, der Zielsetzung entsprechend, die Befunde, die zu einzelnen FEPs vorliegen, aufzuarbeiten und in Hinsicht auf die Sicherheitsanalyse zu bewerten. Allerdings wird auch im FEPCAT-Bericht die allgemeine Schwierigkeit deutlich, die in Sicherheitsanalysen üblichen Methoden und Konzepte vor dem Hintergrund einer begrenzten Datenverfügbarkeit und Prozesskenntnis zu rechtfertigen. So wird unter dem Punkt „*Grad des Verständnisses aus der Sicht der Sicherheitsanalyse und Behandlung in Sicherheitsanalysen*“ des Fragebogens oftmals nicht diskutiert,

warum die beschriebenen Methoden der Sicherheitsanalyse adäquat bzw. konservativ sind, insbesondere hinsichtlich der Problembereiche, die unter den Punkten „Skalenproblematik“ und „*derzeitiges wissenschaftliches Verständnis*“ aufgezeigt werden.

Die im FEPCAT-Bericht dokumentierte FEP-Liste ist mit 59 Einträgen zwar kompakt, aber dennoch umfassend. Die FEP-Liste wurde in mehreren Schritten erstellt. Zunächst erfolgte eine Zusammenstellung von FEPs aus nationalen FEP-Listen (Belgien, Spanien, Schweiz), die um Beiträge verschiedener Experten ergänzt wurde. Die resultierende FEP-Liste umfasste 526 Einträge. Es erfolgte eine Reduktion der FEPs anhand folgender Anforderungen:

- FEP im Rahmen der Zielsetzung des FEPCAT-Projektes
- FEP im Zeitrahmen von 1 Ma
- FEP wird nicht durch anderen FEP abgedeckt
- FEP spezifisch für tonige Medien
- FEP bezieht sich auf Geosphäre
- FEP relevant für aktuelle Endlagerkonzeptionen
- FEP erscheint relevant

Die verbleibenden FEPs wurden thematisch geordnet. Ein zweiter Selektionsvorgang reduzierte die FEP-Liste auf 93 Elemente, wobei auf Vermeidung von Redundanzen und Überschneidungen sowie auf einen konsistenten Detaillierungsgrad der FEPs geachtet wurde. Abschließend wurde eine hierarchische Gliederung der FEPs anhand des folgenden Gliederungsschemas durchgeführt:

A. Ungestörtes System (Fernfeld)

Transportmechanismen

Retardationsmechanismen

Systemverständnis und unabhängige Methoden und Werkzeuge zur Vertrauensbildung in prädiktive Modelle

B. Endlagerbedingte Störungen (EDZ und beeinflusster Bereich)

Chemische Störungen

Thermische Störungen

Geomechanische Störungen

Hydraulische Störungen

Störungen durch gekoppelte Prozesse

Störungen durch Endlagergase

Mikrobielle Störungen

C. Externe Störungen (geologische Langzeitentwicklung im weiteren Sinne)

Diagenese

Deformationsereignisse

Erosion und Versenkung

Durch die Einordnung der FEPs in dieses Schema wurden weitere Überschneidungen sichtbar, so dass weitere 19 FEPs eliminiert werden konnten. Während der Bearbeitung der einzelnen FEPs durch die Expertengruppe ergab sich die Notwendigkeit, FEPs, die zwar relevant erschienen, zu denen aber nur wenige Informationen vorlagen, mit anderen FEPs zu verschmelzen. Hieraus resultierte die endgültige FEP-Liste mit 59 Einträgen.

Es kann als eine wichtige Leistung des FEPCAT-Projektes angesehen werden, die umfangreichen Informationen zu Ton-spezifischen FEPs in übersichtlicher Weise zusammengetragen und in Hinblick auf die Sicherheitsanalyse bewertet zu haben. Lücken lässt der FEPCAT hinsichtlich der Diskussion, welche Konsequenzen die z.T. mangelhafte Datenverfügbarkeit und Prozesskenntnis für die Durchführung der Sicherheitsanalyse haben. Dies vergrößert den Bewertungsspielraum bei der Beantwortung

der Frage, welche Methoden und Konzepte in Sicherheitsanalysen angewendet werden können oder sollten, und rechtfertigt die erneute Betrachtung Ton-spezifischer Prozesse z.B. durch den vorliegenden Bericht.

2 Definitionen

2.1 Ton

Der Begriff „Ton“ taucht in verschiedenen Gesteins- und Sedimentklassifikationen mit unterschiedlichen Bedeutungen auf. Meist gibt er Auskunft über ein Korngrößen-spektrum, einen Verfestigungsgrad oder eine mineralogische Zusammensetzung. Im Kontext der Endlagerung wird oft vom „Wirtsgestein Ton“ gesprochen. Ton als Wirtsgestein umfasst alle Sedimente und Sedimentgesteine mit einem hohen Anteil an Tonmineralen, da diese Mineralgruppe die besonderen Barriereigenschaften dieses Wirtsgesteins bedingt. In dieser Bedeutung entspricht der Begriff „Ton“ dem Begriff „argillaceous rock“ aus dem englischen Sprachraum. Im vorliegenden Bericht wird der Begriff „Ton“ in dieser Weise gebraucht, um nicht durch eine stärkere Differenzierung die Lesbarkeit zu beeinträchtigen.

2.2 Bergbaulich beeinflusste Zone (EDZ)

Die durch die bergbaulichen Tätigkeiten gestörte Gebirgszone wird üblicherweise in eine „excavation disturbed zone“ und eine „excavation damaged zone“ unterteilt, jedoch fehlt ein allgemeiner Konsens bezüglich der Definitionen. In der Regel fallen die Definitionen für kristalline, saline und tonige Wirtsgesteine unterschiedlich aus /EUR 03c, EUR 04b/. Auf dem Workshop des SELFRAC-Projektes im Oktober 2004 wurde versucht, übergeordnete Definitionen zu finden, die für alle Wirtsgesteine anwendbar und praktikabel sind, wobei folgender Vorschlag gemacht wurde /EUR 04b/:

- Die „excavation disturbed zone“ (vorgeschlagene Abkürzung „EdZ“) wird als die Zone definiert, in der hydromechanische und geochemische Modifikationen auftreten, ohne dass wesentliche Änderungen der Fließ- und Transporteigenschaften auftreten.
- Die „excavation damaged zone“ (vorgeschlagene Abkürzung „EDZ“) wird als die Zone definiert, in der hydromechanische und geochemische Modifikationen auftreten, die wesentliche Änderungen der Fließ- und Transporteigenschaften hervorrufen.

Wegen der starken hydromechanischen Kopplungen in Tonen ist eine mechanisch gestörte Zone immer auch eine hydraulisch gestörte Zone und umgekehrt. Trotzdem kann die Zone, in welcher der hydraulische Aspekt der bergbaulichen Störung sichtbar wird (z.B. durch eine Änderung der Porenwasserdrücke), sich von derjenigen Zone unterscheiden, in welcher sich der mechanische Aspekt der Störungen äußert (z.B. durch Verformung oder Rissbildung). Aus diesem Grund wird abweichend von der letztgenannten Definition oft folgende phänomenologische Unterscheidung getroffen:

- Die „hydraulically disturbed zone“ (HDZ) ist die bergbaulich gestörte Zone, die eine störungsbedingte Änderung der **hydraulischen** Eigenschaften aufweist.
- Die „excavation disturbed zone“ (EDZ) ist die bergbaulich gestörte Zone, die eine störungsbedingte Änderung der **mechanischen** Eigenschaften aufweist.
- Die „excavation damaged zone“ bezeichnet den Teil der „excavation disturbed zone“, in dem **Bruchbildung** auftritt.

Diese Definitionen für die „excavation disturbed zone“ und die „excavation damaged zone“ werden u.A. im schweizerischen und schwedischen Entsorgungsprogramm verwendet /EUR 03c/. Auch im vorliegenden Bericht sollen diese Definitionen benutzt werden, da sie sich für eine interpretationsfreie Beschreibung der Phänomene besser eignen als die oben genannten Definitionen des SELFRAC-Projektes.

2.3 Selbstheilung

Durch die Spannungsumverteilung wird während der Endlagerkonstruktion eine bruchhafte Auflockerungzone mit erhöhten Durchlässigkeiten für den Fluid- und Gastransport gebildet. Auch erhöhte Gasdrücke im Endlager können zur Ausbildung von Wegsamkeiten für Fluide und Gase führen. Als Selbstheilung bezeichnet man die allmähliche Wiederherstellung der ursprünglichen hydraulischen und/oder mechanischen Eigenschaften des Gebirges. Im englischen Sprachraum wird zwischen „self-healing“ und „self-sealing“ unterschieden. Durch den NEA-Clay Club wurden diese Begriffe wie folgt definiert /NEA 01/:

- „Self-healing“ ist die Wiederherstellung der hydraulischen Eigenschaften und der Transporteigenschaften durch **hydromechanische** und/oder **geochemische** Prozesse.

- „Self-sealing“ ist die Wiederherstellung der hydraulischen Eigenschaften und der Transporteigenschaften allein durch **hydromechanische** Prozesse.

Im Rahmen des SELFRAC-Projektes wurde eine abweichende Definition dieser beiden Begriffe vorgeschlagen:

- „Self-healing“ ist die Wiederherstellung der **hydraulischen** und **mechanischen** Eigenschaften des Tones durch hydromechanische und/oder geochemische Prozesse.
- „Self-sealing“ ist die Wiederherstellung nur der **hydraulischen** Eigenschaften des Tones durch hydromechanische und/oder geochemische Prozesse.

Die experimentellen Befunde am Boom Clay im Rahmen des SELFRAC-Projektes haben jedoch gezeigt, dass diese Definitionen nur beschränkt auf Ton anwendbar sind, da es i.d.R. nicht zu einer Wiederherstellung der mechanischen Eigenschaften kommt. Ursache hierfür ist die Orientiertheit der Tonminerale, die Informationen über den gestörten Zustand konserviert und die mechanischen Eigenschaften des Tones beeinflusst. Aus diesem Grund käme es in Ton nur zum „self-sealing“, nicht zum „self-healing“ im Sinne der Definitionen des SELFRAC-Projektes.

Im vorliegenden Bericht wird lediglich die Selbstheilung aufgrund hydromechanischer Prozesse behandelt, da dies derzeit als der wichtigste Selbstheilungsprozess angesehen wird. Der im Bericht verwendete Begriff der Selbstheilung stimmt damit mit dem englischen Begriff „self-sealing“ im Sinne der Definition des NEA-Clay Club überein.

2.4 Diffusionskoeffizienten

Diffusion gehört zu den wichtigsten Transportprozessen in tonigen Gesteinen. Zur Beschreibung der Diffusionseigenschaften sind verschiedene Diffusionskoeffizienten gebräuchlich. Ihre Bedeutungen sind zum Teil sehr unterschiedlich, weshalb sie dieser Stelle dargestellt werden sollen.

In freiem Wasser findet eine Diffusion der Lösungsbestandteile aufgrund Brownscher Molekularbewegungen statt. In porösen Medien interagieren die diffundierenden Partikel mit der Festkörpermatrix, so dass sich im makroskopischen Phänomen des

diffusiven Transports die integrale Wirkung verschiedener Prozesse äußert. Zu diesen zählen insbesondere:

- Die Sorption und Desorption der Lösungsbestandteile. (Dieser Effekt wird i.d.R. durch den Retardationsfaktor R quantifiziert).
- Die Verkleinerung des Fluidvolumens, das den gelösten diffundierenden Partikeln zur Verfügung steht, durch die Festkörpermatrix und durch elektrostatische Felder der Festkörperoberflächen. (Dieser Effekt wird durch die diffusionswirksame Porosität n_d quantifiziert). Von der Einschränkung des Porenraums durch elektrostatische Felder sind i.W. negativ geladene Spezies betroffen (sog. Anionenausschluss).
- Die Behinderung des Partikeltransports durch die räumliche Verteilung der Festkörpermatrix (Porenraumgeometrie) und abstoßender elektrostatischer Felder. Dieser Effekt zwingt diffundierende Partikel auf gewundene Pfade, was zu einer Verlangsamung des makroskopischen Partikeltransports führt. (Der Effekt wird durch den Geometriefaktor G quantifiziert. Er ist streng genommen eine tensorielle Größe, wodurch sich die Wirkung anisotroper Porenraumgeometrien berücksichtigen lässt).

Um diese Prozesse zu erfassen, werden gemäß Tab. 2-1 *effektive, scheinbare und Poren-Diffusionskoeffizienten* definiert. Hierbei wird davon ausgegangen, dass ihre Wirkung adäquat durch eine Adaption des 1. Fickschen Gesetzes für die Diffusion beschrieben werden kann (s. Fließgesetze in Tab. 2-1). Es ist anzumerken, dass diese Annahme nicht immer berechtigt ist. So beschreibt z.B. der scheinbare Diffusionskoeffizient die Wirkung der Sorption im instationären Fall nur dann korrekt, wenn lineare Gleichgewichtssorption vorliegt (Henry-Sorptionsisotherme, K_d -Konzept).

Wie die in Tab. 2-1 dargestellten postulierten Abhängigkeiten der Diffusionskoeffizienten D_e , D_a , und D_p vom Diffusionskoeffizienten in freiem Wasser D_0 zeigen, berücksichtigen erstere jeweils nur eine Auswahl der oben genannten Prozesse:

- Der *effektive Diffusionskoeffizient* D_e berücksichtigt die Behinderung des Partikeltransports durch die Geometrie des diffusiv zugänglichen Porenraums anhand des Geometriefaktors G , sowie die Einschränkung des Fluidvolumens durch die Festkörpermatrix und elektrostatische Felder anhand der diffusionswirksamen Porosität n_d .

- Der *scheinbare Diffusionskoeffizient* D_a berücksichtigt die Behinderung des Partikeltransports durch die Geometrie des diffusiv zugänglichen Porenraums anhand des Geometriefaktors G , sowie die Wirkung linearer Gleichgewichtssorption anhand des Retardationsfaktors R .
- Der *Porendiffusionskoeffizient* D_p berücksichtigt lediglich die Behinderung des Partikeltransports durch die Geometrie des diffusiv zugänglichen Porenraums anhand des Geometriefaktors G .

Geometriefaktor, diffusionswirksame Porosität und Retardationsfaktor werden von der Größe und Ladung der diffundierenden Partikel beeinflusst und sind daher speziesabhängige Größen. Die unterschiedliche Berücksichtigung der diffusionswirksamen Porosität in den verschiedenen Diffusionskoeffizienten erscheint etwas inkonsistent, erklärt sich aber möglicherweise darüber, ob das zugehörige Fließgesetz in der Praxis eher in Form des 1. oder des 2. Fickschen Gesetzes Anwendung findet (Das 1. Ficksche Gesetz erhält eine kompaktere Schreibweise, wenn die diffusionswirksame Porosität im Diffusionskoeffizienten integriert ist, während dies beim 2. Fickschen Gesetz umgekehrt ist).

Tab. 2-1: Definition und Bedeutung verschiedener Diffusionskoeffizienten.

	Transport durch Brownsche Molekularbewegung	Transport als integrale Wirkung verschiedener Prozesse		
	Diffusionskoeffizient in freiem Wasser D_0	effektiver Diffusionskoeffizient D_e	scheinbarer Diffusionskoeffizient D_a	Poren-Diffusionskoeffizient D_p
Fließgesetze zur Definition der Diffusionskoeffizienten	$J = -D_0 \text{ grad } C$ (1. Ficksches Gesetz)	$J = -D_e \text{ grad } C$	$J = -n_d D_a \text{ grad } C$	$J = -n_d D_p \text{ grad } C$
Postulierte Abhängigkeiten von D_0		$D_e = n_d G D_0$	$D_a = R^{-1} G D_0$	$D_p = G D_0$
Verringerung des diffusionswirksamen Fluidvolumens (Festkörpervolumen, Anionenausschluss) berücksichtigt?		ja, anhand der Porosität n_d (lineare Verlangsamung des Transports postuliert)	nein	nein
Behinderung des Partikeltransports durch die Geometrie des diffusiv zugänglichen Porenraums berücksichtigt?		ja, anhand des Geometriefaktors G (lineare Verlangsamung des Transports postuliert)	ja, anhand des Geometriefaktors G (lineare Verlangsamung des Transports postuliert)	ja, anhand des Geometriefaktors G (lineare Verlangsamung des Transports postuliert)
Sorption berücksichtigt?		nein	ja, anhand des Retardationsfaktors R (lineare Verlangsamung des Transports durch lineare Gleichgewichtssorption postuliert)	nein

n_d : diffusionswirksame Porosität, R : Retardationsfaktor, C : Konzentration, J : Flussdichte, G : tensorieller Geometriefaktor ($G = \chi/\tau^2$ bei Isotropie mit χ : Konstriktivität, τ : Tortuosität).

2.5 Nahfeld und Fernfeld

Die Gliederung des Endlagersystems in ein Fernfeld und ein Nahfeld dient der Betrachtung von Prozessen, die in bestimmten Endlager- oder Skalenbereichen ablaufen. Wo eine sinnvolle Grenze zwischen Nahfeld und Fernfeld gezogen werden kann, hängt vom betrachteten Prozess und der Betrachtungsmethode ab. Aus diesem Grund sind verschiedene voneinander abweichende Definitionen der Begriffe „Fernfeld“ und „Nahfeld“ gebräuchlich (vgl. z.B. /IAEA 00, IAEA 03/).

Nach der Definition der IAEA im „Radioactive Waste Management Glossary, Edition 2003“ /IAEA 03/ umfasst der Begriff „Nahfeld“ zum einen die Endlagerbereiche, die sich in der Nähe oder in Kontakt zu den Abfallgebänden befinden, und zum anderen diejenigen Bereiche des Wirtsgesteins, deren Eigenschaften durch das Endlager oder seine Inhalte entweder verändert wurden oder aber verändert werden können. Das Fernfeld wird komplementär dazu als der Bereich der Geosphäre definiert, der hinter dem Nahfeld liegt und demnach durch das Endlager nicht beeinflusst wurde.

Ein Nachteil dieser Definition ist, dass die Erstreckung des Nahfeldes prozessabhängig außerordentlich variabel sein kann, je nachdem, welche Reichweite die betreffende Störung hat. Fände beispielsweise ein von Rissbildungen begleiteter Gestransport durch das tonige Wirtsgestein hindurch in die überlagernden Schichten statt, so müsste die Tonschicht über ihre gesamte Mächtigkeit zum Nahfeld gezählt werden, da sie durch den Gasinhalt des Endlagers verändert wurde.

Aufgrund dieser Problematik wird im vorliegenden Bericht der in /IAEA 00/ gegebene Definition des Fernfeldes der Vorzug geben: Prozesse, die so großräumig ablaufen, dass die räumlichen Eigenschaften des Endlagers bei ihrer Beschreibung keine wesentliche Rolle spielen, sollen im Fernfeld stattfinden, wobei das Fernfeld lediglich die Geosphäre umfassen soll. Komplementär zu dieser Definition sollen hier Prozesse, die so kleinräumig ablaufen, dass räumliche Eigenschaften des Endlagers berücksichtigt werden müssen, im Nahfeld stattfinden, wobei das Nahfeld alle technischen Bauwerke inkl. der technischen Barriere beinhalten soll (Diese Definition weicht von der in /IAEA 00/ gegebene Definition für das Nahfeld ab). Diese Definitionen der Begriffe „Nahfeld“ und „Fernfeld“ orientieren sich stärker an der Modellierung der Endlagerkomponenten und der Modellskala, eine Sichtweise, die aus dem Blickwinkel der Sicherheitsanalyse praktikabler erscheint als die in /IAEA 03/ gegebene Definitionen.

3 Definition von Prozessgruppen

Die Entwicklung eines Endlagers und die damit verbundene Freisetzung und Migration von Radionukliden ist ein komplexer Vorgang, der sich in viele Teilprozesse untergliedern lässt. Um eine Übersicht über die Prozesse, ihre gegenseitigen Beeinflussungen und ihren zeitlichen Bezug innerhalb der Endlagerentwicklung zu geben, wird im vorliegenden Bericht eine Gliederung in größere Prozessgruppen vorgenommen. Die anschließende Charakterisierung und Bewertung von Prozessen mit potenzieller Sicherheitsrelevanz wird anhand dieser Prozessgruppen durchgeführt.

Die nachfolgende Definition von Prozessgruppen orientiert sich an folgenden Punkten:

- Die Wechselwirkungen zwischen Prozessen verschiedener Prozessgruppen sollten möglichst schwach oder möglichst einfach sein. Prozesse mit starker oder komplexer Kopplung sollten in einer Prozessgruppe vereint sein.
- Die Prozessgruppen sollten wichtige Entwicklungsstadien eines Endlagers charakterisieren.
- Die Prozesse einer Prozessgruppe sollten für die gleichen Barrieren des Endlagersystems relevant sein. Hierbei wird im Folgenden zwischen der technischen und der geologischen Barriere unterschieden.
- Die Zahl der Prozessgruppen sollte aus Gründen der Überschaubarkeit klein sein.

Anhand dieser Vorgaben werden folgende 6 Prozessgruppen (PG) definiert, die sich auf eine Endlagerentwicklung beziehen, bei der die Barrierenintegrität nicht durch disruptive Ereignisse gestört wird (Vulkanismus, starke tektonische Störungsbildung, menschliches Eindringen etc.):

- Folgen der Endlagerkonstruktion und Ventilation (PG1)
- Folgen der thermischen Störung (PG2)
- Folgen der hydromechanischen Störung (PG3)
- Folgen der chemischen Störung (PG4)
- Folgen der Gasgenerierung (PG5)

- Folgen der Radionuklidfreisetzung (PG6)

Es wird davon ausgegangen, dass das Endlagerkonzept eine technische Barriere aus Bentonit vorsieht.

Die Einteilung in Prozessgruppen beruht auf Vereinfachungen, um die Übersichtlichkeit zu wahren. Es können daher von Fall zu Fall auch zwischen Prozessen verschiedener Prozessgruppen stärkere Wechselwirkungen auftreten. Im Folgenden werden die einzelnen Prozessgruppen, ihre Beziehungen und ihre Relevanz für die technische und geologische Barriere beschrieben. Abb. 3.1 illustriert diese Zusammenhänge.

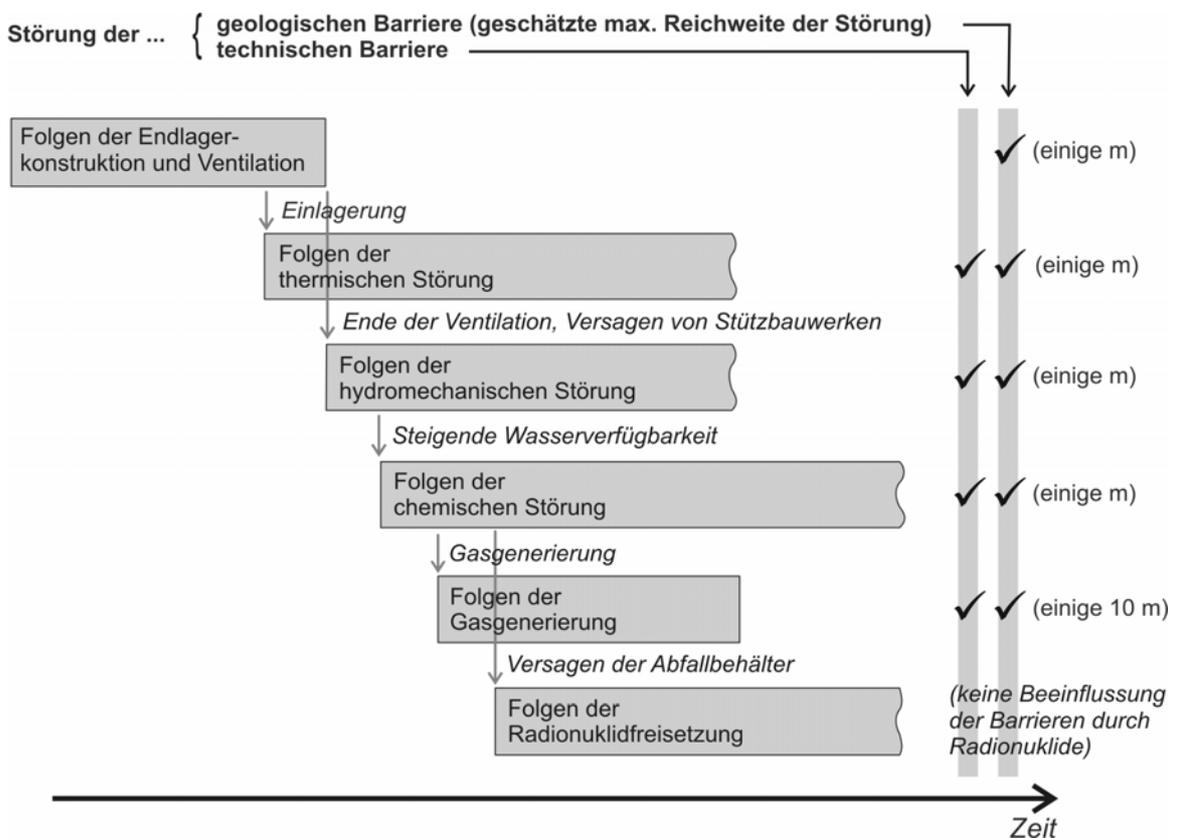


Abb. 3.1: Zeitliche und kausale Beziehung der Prozessgruppen und ihre unmittelbare Relevanz für die Funktion der technischen und geologischen Barriere.

PG 1: Folgen der Endlagerkonstruktion und Ventilation

Beschreibung: Durch die Konstruktion und Offenhaltung des Endlagers kommt es zu einer Spannungsumverteilung im Gebirge und zu einer Austrocknung durch die Bewetterungsluft. Das Gebirge reagiert auf die Spannungsumverteilung mit Konvergenz sowie mit der Bildung einer mechanisch gestörten Zone (EDZ: excavation disturbed zone) und einer hydraulisch gestörten Zone (HDZ: hydraulically disturbed zone). In den luftgefüllten Porenräumen der EDZ kommt es zu Oxidationsprozessen. Die Prozessgruppe umfasst nur Vorgänge bis zum Verschluss der Einlagerungskammern. Oft sind diese Vorgänge gut quantifizierbar, weil ihre Auswirkungen durch in-situ Messungen erfassbar und die Anfangs- und Randbedingungen sowie der anthropogene Störeinfluss gut bekannt sind.

Betrachtete Prozesse: Konvergenz, Entsättigung, EDZ-Bildung, HDZ-Bildung, Oxidation, Redox- und Säurepufferung, Salzanreicherung durch Evaporation.

Bezug zu anderen Prozessgruppen: Die Bildung der EDZ beeinflusst den Aufsättigungsvorgang (PG3) sowie die Migration von Gasen (PG5), reaktiven Fluiden (PG4) und Radionukliden (PG6). Verschiedene hydromechanische Prozesse können eine Selbstheilung der hydraulischen Eigenschaften der EDZ bewirken (PG3). Die Oxidation des Wirtsgesteins durch die Bewetterungsluft kann die Rückhaltekapazität für Radionuklide (PG6) und evtl. auch die Fähigkeit zur Selbstheilung (PG3) verändern.

Relevanz für das Barrierensystem: Insbesondere die Bildung der EDZ kann die Funktion der geologischen Barriere bis in eine Tiefe von einigen Metern stören (Axial zur Strecke gemessen). Die EDZ kann zu einer Umströmung von Abdichtungsbauwerken führen und ist somit relevant für die Wirksamkeit der technischen Barriere. Es ist anzumerken, dass sich die technische Barriere in Form von Verfüllungen und Abdichtungen der Zugangsschächte oder -strecken bis in den Bereich der Biosphäre erstreckt.

PG 2: Folgen der thermischen Störung

Beschreibung: Die Endlagerung wärmeproduzierender Abfälle stellt eine thermische Störung dar, auf die das Endlagersystem mit einem Wärmetransport reagiert. Hauptmechanismus ist die Wärmeleitung. Untergeordnet können auch Advektion und freie Konvektion in der Fluid- oder Gasphase sowie Wärmestrahlung zum Wärmetransport beitragen.

Betrachtete Prozesse: Wärmeleitung, Wärmetransport durch freie Konvektion, Wärmetransport durch Advektion, Wärmestrahlung, thermisch induzierte hydro-mechanische Prozesse (Erhöhung der Porenwasserdrücke, Entfestigung, Bruchbildung, beschleunigtes Kriechen, thermische Konsolidierung, Änderung der Durchlässigkeit), thermisch induzierte geochemische Prozesse (Änderung der Porenwasserchemie, Zementation, Illitisierung, Reifung org. Substanz und Gasentwicklung, Beschleunigung von Oxidationsreaktionen).

Bezug zu anderen Prozessgruppen: Viele hydromechanische und chemische Prozesse sowie viele Transportprozesse sind temperaturabhängig (PG3 bis PG6). Der Wärmetransport selbst wird i.W. von der Sättigung der Bentonitbarriere beeinflusst (PG3).

Relevanz für das Barrierensystem: Die Funktion der geologischen Barriere kann durch eine temperaturbedingte Erhöhung der Porenwasserdrücke beeinträchtigt werden (Rissbildung). Es ist mit einer Reichweite der Störung von einigen Metern zu rechnen.

Hohe Temperaturen beschleunigen die mikrobiellen Stoffwechselfvorgänge und können so die Gasgenerierungsrate erhöhen, was potenziell eine Schädigung des Gebirges durch erhöhte Gasdrücke zur Folge hat (Dieser Prozess wird jedoch der Prozessgruppe 5 zugeordnet).

Durch geeignete Endlagerauslegung wird i.d.R. versucht, eine Temperatur von 100°C nicht zu überschreiten, um ein Sieden des Wassers und damit verbundene Fällungsprozesse zu vermeiden. Hiervon wäre i.W. die technische Bentonitbarriere betroffen.

PG 3: Folgen der hydromechanischen Störung

Beschreibung: Diese Prozessgruppe umfasst die z. T. stark gekoppelten hydro-mechanischen Prozesse in der Nachbetriebsphase des Endlagers, die zum Ausgleich der hydromechanischen Störung durch das Endlager führen. Hierunter fällt das mechanische Versagen von Stützbauwerken, die Aufsättigung des Wirtsgesteins und der Verfüllmaterialien, das Quellen der Bentonitbarriere sowie die Konvergenz und Selbstheilung des Gebirges.

Betrachtete Prozesse: Mechanisches Versagen technischer Bauwerke, Konvergenz, Aufsättigung und Anstieg der Porenwasserdrücke im Wirtsgestein, Aufsättigung und Quellen des Bentonits, weitere EDZ-Entwicklung (Bruchbildung, Selbstheilung).

Bezug zu anderen Prozessgruppen: Die Bentonit-Aufsättigung beeinflusst den Wärmetransport (PG2), der wiederum Einfluss auf verschiedene hydromechanische Prozesse hat. Die Bentonitaufsättigung kontrolliert die Wasserverfügbarkeit und damit den Beginn von Korrosions- und Degradationsprozessen (PG4). Die hydromechanischen Eigenschaften der Tone können durch hochalkalische Fluide verändert werden, die bei der Degradation zementhaltiger Materialien entstehen (PG4).

Relevanz für das Barrierensystem: Die Entwicklung der EDZ in der Nachbetriebsphase inkl. eventueller Selbstheilungsprozesse ist wesentlich für die Wirksamkeit von Abdichtungsbauwerken und die Transporteigenschaften der geologischen Barriere. Die streckenaxiale Ausdehnung der EDZ beträgt i.d.R. einige Meter.

PG 4: Folgen der chemischen Störung

Beschreibung: Die Abfälle und die technischen Barrieren und Bauwerke stellen eine chemische Störung der Geosphäre des Endlagersystems dar. Die Prozessgruppe umfasst die chemischen Prozesse in der Nachbetriebsphase in Reaktion auf diese Störung. I.W. führen sie zu chemisch-mineralogischen Veränderungen im Wirtsgestein, zur Degradation technischer Barrieren (Bentonit, Abfallbehälter, Abfallmatrix), zur Freisetzung von Gasen, reaktiven Fluiden und Radionukliden sowie zur Veränderung der Sorptionsfähigkeit der Tone.

Betrachtete Prozesse: Degradation organischer Stoffe, Degradation zementhaltiger Materialien, Korrosion der Abfallbehälter, Wirkung hyperalkalischer Fluide, Wirkung eisenhaltiger Fluide, Mikrobiologische Aktivität, Gasfreisetzung, Radionuklidfreisetzung aus der Abfallmatrix .

Bezug zu anderen Prozessgruppen: Die Korrosion der Abfallbehälter und die Degradation der Abfallmatrix führen zur Freisetzung von Radionukliden (PG6). Durch die Korrosion metallischer Stoffe und die mikrobielle Degradation organischer Substanz werden Gase freigesetzt (PG5), die u.A. die Porenwasserchemie und damit die Speziesverteilung der Radionuklide verändern (PG6). Die chemisch-mineralogische Umwandlung des tonigen Wirtsgesteins oder der Bentonitbarriere insbesondere durch hochalkalische Fluide können deren hydromechanische Eigenschaften (PG3) und Rückhalteeigenschaften (PG6) verändern. Erhöhte Temperaturen (PG2) können Oxidationsreaktionen und die Reifung organischer Substanz (Gasentwicklung) beschleunigen, die Lage chemischer

Gleichgewichte verschieben und zur Illitisierung von Smektiten, die für das Sorptionsvermögen eines Tones wesentlich sind, führen.

Relevanz für das Barrierensystem: Da viele tonige Gesteine über einen Säure- und einen Redox-Puffer verfügen, besitzt die chemische Störung durch das Endlager nur eine geringe Reichweite. Da geochemische Alterationsfronten in einer intakten Tonmatrix nur sehr langsam voranschreiten, ist anzunehmen, dass die Bruchnetzwerke der EDZ die Reichweite der geochemischen Störung im Wirtsgestein bestimmen (einige Meter). Die Alteration des Wirtsgesteins entlang von Brüchen der EDZ ist von Bedeutung für den streckenparallelen Transport (Selbsteilung, Sorptionsvermögen) und damit für die Wirksamkeit der Abdichtungsbauwerke.

PG 5: Folgen der Gasgenerierung

Beschreibung: Gase entstehen im Endlager i.W. durch Korrosion von Metallen und mikrobielle Degradation organischer Substanz. Es kommt zu einer Gasmigration durch die technische Barriere in das Wirtsgestein.

Betrachtete Prozesse: Migration von gelöstem Gas, Migration einer Gasphase, gasinduzierte Deformationen und mikro- oder makroskopische Brüche.

Bezug zu anderen Prozessgruppen: Der Vorgang der Gasmigration ist von der Gasbildungsrate abhängig, die durch Degradations- und Korrosionsprozesse (PG4) kontrolliert wird. Die wichtigste Bedeutung des Gastransportes liegt in der gasgetriebenen Bewegung kontaminierter Lösungen (PG6) und in der potenziellen Schaffung von Wegsamkeiten für die Migration von Radionukliden in der Fluidphase (PG6).

Relevanz für das Barrierensystem: Der Transport einer Gasphase führt zu einer (evtl. nur kurzfristigen) Störung der technischen und der geologischen Barriere. Die Reichweite der Störung im Wirtsgestein hängt von den Gasproduktionsraten und den Mechanismen der Gasmigration ab und ist nur schwer vorherzusagen. Denkbar ist eine Gasphasen-Migration über einige bis viele 10er-Meter.

PG 6: Folgen der Radionuklidfreisetzung

Beschreibung: Die Prozessgruppe umfasst Prozesse, die zum Transport oder zur Retardation von Radionukliden beitragen.

Betrachtete Prozesse: Radionuklidtransport, Diffusion, Advektion, gekoppelte Fließphänomene, freie Konvektion, Kolloidtransport, Transport mit mobilen orga-

nischen Stoffen, gasgetriebener Fluidtransport, Radionuklidretardation, Lösung und Fällung von Festphasen, Mischkristallbildung und Mitfällung, Ionenaustausch, Oberflächenkomplexierung.

Bezug zu anderen Prozessgruppen: Die Bildung einer EDZ (PG1, PG3) und ein von Dilatanz geprägter Gastransport (PG5) können die Wegsamkeit für den Radionuklidtransport erhöhen. Die vielfältigen Prozesse der chemischen Ausgleichsphase (PG4) beeinflussen wesentlich die Spezierung und Sorption von Radionukliden. Erhöhte Temperaturen (PG2) können die Sorptionsfähigkeit des Bentonits (Zementation) beeinträchtigen; auch sind manche Transportprozesse temperaturabhängig.

Relevanz für das Barrierensystem: Die Radionuklidmigration wird durch die Barrieren verlangsamt oder verzögert, beeinflusst selbst aber nicht die Erfüllung der Barrierenfunktionen, da die Radionuklidkonzentrationen sehr klein sind.

4 Folgen der Endlagerkonstruktion und Ventilation

4.1 Überblick

Die Schaffung und Offenhaltung von Grubenräumen führt zu einer Spannungs-umverteilung im Gebirge, zur Gebirgskonvergenz und zur Austrocknung und Oxidation des Wirtsgesteins durch die Bewetterungsluft. Aufgrund der starken hydromechanischen Wechselwirkungen in Tonen tragen sowohl die Austrocknung als auch die Spannungsumverteilung zur Bildung einer mechanisch und einer hydraulisch gestörten Zone bei (*excavation disturbed zone*, EDZ, bzw. *hydraulically disturbed zone*, HDZ; siehe auch Abschnitt 2.2). Die Entwicklung von EDZ und HDZ sind daher miteinander gekoppelt.

Die wichtigste Bedeutung der **EDZ** liegt in der potenziellen Schaffung von Wegsamkeiten für den Fluid-, Radionuklid- und Gastransport, insbesondere parallel zu den Strecken und Schächten. Dies führt im ungünstigsten Fall zu einer Umströmung von Abdichtungsbauwerken. Die Störung der hydraulischen Eigenschaften des Wirtsgesteins durch die EDZ kann durch verschiedene hydromechanische Prozesse, z.B. im Zuge der Gebirgskonvergenz und Quellung der Bentonitbarriere, vermindert oder sogar aufgehoben werden (Selbstheilung). Ausgehend vom luftzugänglichen Teil des Porenraums der EDZ findet eine Oxidation des Wirtsgesteins statt, die die Sorptionsfähigkeit des betroffenen Gebirgsbereiches und evtl. auch die Selbstheilungsfähigkeit beeinträchtigen kann.

Die wichtigste Bedeutung der **HDZ** liegt in ihrem Einfluss auf die Bildung der EDZ. Einerseits können durch die austrocknende Wirkung der Bewetterungsluft Trockenrisse entstehen, andererseits können durch erhöhte Porenwasserdrücke Mikrorisse gebildet werden. Die Porenwasserdrücke beeinflussen wesentlich das mechanische Verhalten des Tones und damit die Konvergenz des Gebirges sowie damit in Zusammenhang stehende Selbstheilungsmechanismen.

4.2 Bildung von hydraulisch und mechanisch gestörten Zonen

4.2.1 Prozesse

In der Konstruktionsphase des Endlagers bildet sich die EDZ in erster Linie durch die hydromechanische Reaktion des Tons auf die bergbaulich bedingte Spannungsverteilung. Die Deformation des Wirtsgesteins kann zur Veränderung der Mikro- und Makroporosität (Klüfte) führen und somit zu einer Veränderung der hydraulischen Eigenschaften. Der Charakter der EDZ hängt vom Ausbauverfahren, von der Strecken- und Schachtgeometrie, von natürlichen Anisotropien (Klüfte, Schichtflächen) und den hydromechanischen Eigenschaften des Tons ab. Im Bereich von Abdichtungsbauwerken kommen i.d.R. schonende Abbauverfahren zum Einsatz, durch die Bruchbildungen weitgehend vermieden werden können. Die Kluftorientierung in der EDZ ist hinsichtlich der eventuellen Verbindung einzelner Brüche zu einem durchströmbaren Bruchnetzwerk von Bedeutung. Sie ist ferner für die Selbstheilung von Relevanz, da sie beeinflusst, wie hoch die Normalspannungen auf den Klufflächen werden, wenn durch die Gebirgskonvergenz und die eventuelle Quellung einer Bentonitbarriere Spannungen auf das Wirtsgestein ausgeübt werden /HOR 03/ (s. Abschnitt 6.4).

Die plastische Deformation im Zuge der Gebirgskonvergenz kann zu einer Konsolidierung oder Dilatation führen und damit die Porenwasserdrücke verändern (HDZ-Bildung). Ob Konsolidierung oder Dilatation auftritt, hängt von der mittleren effektiven Spannung, der deviatorischen Spannung und der Vorkonsolidierungsspannung des Tons ab (*critical-state*-Theorie). Durch eine Erhöhung der Porenwasserdrücke kann es zur Bildung von Mikrorissen kommen.

Wenn das Gebirge infolge der Bewetterung austrocknet, verändern sich die effektiven Spannungen und es können Schrumpfrisse entstehen. Der hydromechanische Effekt der Austrocknung ist jedoch nicht so weit reichend wie derjenige, der durch die Spannungsverteilung infolge der Endlagerkonstruktion induziert wird /MAZ 03/.

4.2.2 Befunde

Systematik von Bruchstrukturen

- Untersuchungen der EDZ im Felslabor Mont Terri und im URL HADES zeigten in struktureller Hinsicht eine starke Systematik der Brüche, deren Orientierung durch das bergbaulich gestörte Spannungsfeld und natürlicherweise vorhandene Schwächezonen (Klüfte, Schichtflächen) erklärt werden konnte /NAG 02, EUR 03/.
- Modellrechnungen und Laborversuche mit Opalinuston zeigten, dass eine schichtungsbedingte Festigkeitsanisotropie zur Ausbildung einer anisotropen EDZ führt /NAG 02/.

Ausdehnung der EDZ und HDZ

- Im URL HADES wurde die Konstruktion einer Verbindungsstrecke zwischen zwei Schächten genutzt, um den Charakter der EDZ und HDZ in Abhängigkeit von der Entfernung von einer Strecke zu untersuchen (CLIPLEX-Experiment /EUR 03/). Hierzu wurde die Entfernung zwischen dem aktuellen Ort der Bergbautätigkeit und dem Zielschacht gemessen und Messungen der Porenwasserdrücke im Zielschacht vorgenommen. Bereits bei einer Entfernung von 75 m wurde eine Störung der Porenwasserdrücke festgestellt. Bei einer Entfernung von 10 m entstanden isolierte Brüche. Unterhalb von 3 m hatten diese Brüche Verbindung zur Strecke.
- Im URL Mont Terri wurden anhand von Bohrlochmessungen 3 Zonen der EDZ mit unterschiedlichem Charakter identifiziert /NAG 02/. Bis in eine Tiefe von 0,7 m (radial zur Strecke gemessen) erstreckte sich eine plastische Zone mit erhöhter Transmissivität (10^{-8} m²/s) und teilweise verbundenen Brüchen. Zwischen 0,7 m bis 2 m Tiefe lag eine plastische Zone mit erhöhter Transmissivität (10^{-12} bis 10^{-9} m²/s) und isolierten Brüchen. Im Bereich zwischen 2 m und 4 m Eindringtiefe befand sich eine elastisch deformierte Zone mit gering erhöhter Transmissivität.
- Seismische Messungen in der Tono-Grube ergaben erniedrigte P-Wellen-Geschwindigkeiten in Tiefen bis 1 m /MAZ 03/.
- Im Opalinuston von Mont Terri wurde durch Messung der Saugspannung eine Entsättigung bis in eine Tiefe von 1 m festgestellt. In Boom Clay im URL HADES besaß die ungesättigte Zone eine Ausdehnung bis zu 20 cm. Der Entsättigungsgrad im Opalinuston und im Boom Clay war generell sehr niedrig /MAZ 03/.

- In den Tonsteinen von Tournemire wurden Trockenrisse bis in eine Tiefe von einigen Dezimetern gefunden. Der Boom Clay im URL HADES ist frei von Trockenrissen /MAZ 03/.

Numerische Modellierung der Grubenkonvergenz

- Die verwendeten hydromechanischen Modelle zur Berechnung der Gebirgskonvergenz für die Tono-Grube (Kamemura et al., 1991, zit. in /MAZ 03/), das Felslabor Mont Terri /NAG 02/ und das URL HADES /EUR 03/ zeigten eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Befunden. Die Stoffgesetze und Modellparameter sind stark standortabhängig.

4.2.3 Stand der Wissenschaft

Numerische Berechnungen der HDZ im URL HADES zeigen, dass die klassischen elasto-plastischen Materialgesetze (modifizierte Cam-Clay-Modelle und Mohr-Coulomb-Modelle) die experimentell ermittelten Porenwasserdruckänderungen im Boom Clay nicht zufrieden stellend reproduzieren können. Die numerisch prognostizierte Reichweite der HDZ war geringer als die im CLIPEX-Experiment gemessene.

Hydraulische Messungen im bruchhaften Teil der EDZ sind insofern problematisch, als dass die hydraulischen Eigenschaften der Bruchnetzwerke orts- und skalenabhängig sein können. Schwer zu ermitteln ist die Klufthkonnektivität in Richtung der Streckenachse auf Skalen über 1 m /MAZ 03/.

Eine belastbare Prognose der EDZ-Entwicklung anhand von numerischen Modellen ist derzeit i.W. wegen des komplexen hydromechanischen Materialverhaltens noch nicht möglich. Es hat sich gezeigt, dass die herkömmlichen modifizierten CamClay-Modelle (MCCM) nicht in der Lage sind, die Grenzspannungen für die Entstehung von Extensionsbrüchen richtig vorherzusagen, da sie die mittleren Hauptspannungen unberücksichtigt lassen /HOR 03/. Modifizierungen des MCCM von Bardet (1990, zit. in /HOR 03/) haben hier entscheidende Verbesserungen gebracht.

4.2.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die räumliche Ausdehnung der EDZ kann durch numerische Simulation der Spannungsumverteilung und Gebirgskonvergenz abgeschätzt werden, wobei die hydromechanischen Stoffgesetze von Standort zu Standort neu zu entwickeln sind. Nach derzeitigen Erfahrungen kann zwar die Grubenkonvergenz befriedigend vorhergesagt werden, große Unsicherheiten sind jedoch noch damit verbunden, die räumliche Ausdehnung der Gesteinszone vorherzusagen, in der es zur Bruchbildung kommt /NAG 02/. Daher sind zusätzliche in-situ-Untersuchungen der EDZ erforderlich.

In eindimensionalen Transportrechnungen kann die Wirkung der EDZ konservativ durch eine Reduktion der Wirtsgesteinsmächtigkeit abgeschätzt werden. Bei expliziter Repräsentation der EDZ in Transportmodellen wird diese i.d.R. durch ein Medium erhöhter, homogener Permeabilität dargestellt. Ob eine solche Homogenisierung der hydraulischen Eigenschaften stets eine konservative Annahme ist, ist bislang wenig untersucht worden. Adäquat ist diese Annahme mit großer Sicherheit für die Zone der EDZ, in der sich die Bruchbildung lediglich auf Mikrorissbildung beschränkt, so dass von keiner wesentlichen Skalen- oder Ortsabhängigkeit der hydraulischen Eigenschaften auszugehen ist.

Der Zustand der hydraulisch gestörten Zone nach Schließung des Endlagers bildet den Anfangszustand der Aufsättigungsphase. Die numerische Berechnung dieses Zustands ist mit Unsicherheiten verbunden, da die Mechanismen des Fluidtransports komplexe hydromechanische Wechselwirkungen beinhalten, die noch nicht im Detail quantifiziert werden können.

4.2.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt PHEBUS (URL HADES): Zielsetzung: Methoden und Techniken der Standortcharakterisierung für Tone; in-situ-Tests zur Validierung von Modellen für den Stofftransport in Tonen; u.A. Ventilationsversuch. Laufzeit: 1. 1. 1992 – 31. 12. 1995.
- EC-Projekt CLIPEX (URL HADES): Zielsetzung: Untersuchung der hydro-mechanischen Reaktion der Porenwasserdrücke auf einen Streckenvortrieb. Laufzeit: 1998 – 2002.

- EC-Projekt VE (Mont Terri): Zielsetzung: Untersuchung der Entsättigung von Opalinuston durch Ventilation. Abschätzung der Ent- und Wiederaufsättigungszeiten, der hydraulischen Durchlässigkeiten und der EDZ-Entwicklung. Laufzeit: 1. 12. 2001 – 21. 5. 2004.
- EC-Projekt OMNIBUS (Site de Bure): Zielsetzung: Entwicklung von Werkzeugen und Interpretationstechniken für das zerstörungsfreie Monitoring des Wirtsgesteins durch Ultraschall. Laufzeit: 1. 10. 2001 – 30. 9. 2004.
- EC-Projekt MODEX-REP (Site de Bure): Zielsetzung: Interpretation der hydromechanischen Störung durch die Schachtabenkung und Entwicklung konzeptueller und numerischer Modelle. Laufzeit: 1. 10. 2000 – 21. 3. 2006.

4.3 Oxidation durch die Bewetterungsluft

4.3.1 Prozesse

Viele Tone werden während der Sedimentation unter reduzierenden Bedingungen abgelagert. Die unter diesen Bedingungen sich bildenden Minerale (i. w. Pyrit und Siderit) und organischen Substanzen stellen den Ton mit einem Redox-Puffer aus, der im Porenwasser des Wirtsgesteins ein reduzierendes Milieu aufrecht erhält, auch wenn es zu einem Eintrag von Sauerstoff durch die Bewetterungsluft kommt.

Der Sauerstoff der Bewetterungsluft dringt u.A. über luftgefüllte Klüfte in das Wirtsgestein ein. Die Ausdehnung der Zone, in der das Wirtsgestein oxidiert wird, hängt daher vom Charakter der EDZ ab. Die Oxidation von Pyrit ist i.d.R. der wichtigste Oxidationsprozess, zweitrangig ist die Oxidation anderer Fe²⁺-haltiger Minerale (z. B. Siderit) und organischer Substanzen. Die durch die Pyritoxidation ausgelöste Ausfällung von Ferrioxiden und Ferrihydroxiden kann die Sorptionseigenschaften des Tons für Anionen erhöhen.

Durch die Oxidation von Pyrit wird Schwefelsäure freigesetzt, welche die Korrosion von Stahlbehältern beschleunigt, die Löslichkeitsgrenzen für evtl. freigesetzte Radionuklide verändert und zur Instabilität von (sorbierenden) Tonmineralen führen kann. Neben dem Redox-Puffer ist daher auch ein durch karbonatische Minerale bereit gestellter Säurepuffer von Bedeutung.

4.3.2 Befunde

Von der Oxidation betroffene Substanzen

- In offenen Strecken im Opalinuston von Mont Terri fand hauptsächlich eine Oxidation von Pyrit statt. Die Haupt-Oxidationsprodukte sind Gips und Eisenhydroxide. Die produzierten Säuren werden durch Karbonate gepuffert. Eine signifikante Oxidation von organischer Substanz konnte nicht festgestellt werden /NAG 02/.

Eindringtiefe

- Im Tonstein des URL Tournemire wurde eine nur geringe Ausdehnung der Pyritoxidationszone festgestellt. Hinsichtlich der Oxidationsprozesse bestand kein Unterschied zwischen einer 10 Jahre und 100 Jahre alten EDZ (Charpentier 2001, Charpentier et al. 2001 zit. in /MAZ 03/).
- In einem 150 Jahre alten Tunnel im Opalinuston wurden sichtbare Oxidationsspuren nur bis in eine Eindringtiefe von 5 bis 10 mm gefunden /MAZ 03/.

Redox-Pufferkapazität

- Aufschlüsse im Opalinuston und in der Palfris-Formation wiesen i.W. eine Oxidation von Pyrit auf (Mäder, 2002a, unveröff., zit. in /NAG 02/). Die effektive Reduktionskapazität des Opalinustones aufgrund der Pyritoxidation liegt bei 0,1 bis 0,2 meq/g. Die totale Reduktionskapazität des Opalinustones beträgt dagegen 2,3 bis 4,9 meq/g (Titrationsversuche an Bohrkernen). Die Differenz rührt von der Reduktionskapazität von Siderit und organischem Material her. Laut /MAZ 03/ könnte deren Reduktionskapazität auf den Zeitskalen, die in Sicherheitsanalysen betrachtet werden, irrelevant sein.
- Nach Johnson & Smith (2000, zit. in /MAZ 03/) könnten der im Bentonit auftretende Pyrit und Siderit sowie Produkte der Behälterkorrosion einen starken Redox-Puffer bilden. Dies widerspricht der oben wiedergegebenen Einschätzung, dass Siderit nicht zur Redox-Pufferung beiträgt.

4.3.3 Stand der Wissenschaft

Die Kinetik vieler Oxidationsprozesse ist derzeit wegen der Langsamkeit der Reaktionen nicht genau ermittelbar. Dies erschwert die Abschätzung der effektiven Redox-Puffer-Kapazität, die für den betrachteten Oxidationszeitraum anzusetzen ist.

4.3.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Anhand von Massenbilanzen und der Sauerstoff-Diffusionsrate können obere Grenzen für die Ausdehnung der oxidierten Wirtsgesteinszone abgeschätzt werden. In Sicherheitsanalysen kann, um eine konservative Abschätzung für das sorptionsfähige Wirtsgestein zu erhalten, dessen Mächtigkeit um die Dicke der oxidierten Wirtsgesteinszone reduziert werden. Wie die Untersuchungen in Mont Terri und Tournemire zeigen, ist jedoch nur mit geringen Eindringtiefen von einigen mm bis cm zu rechnen.

Durch die Oxidation können sich auch die hydromechanischen Toneigenschaften verändern. Der Einfluss dieser Effekte auf die Selbstheilungsfähigkeit ist bislang wenig untersucht.

Für die effektive Redox-Pufferkapazität des Systems sind diejenigen Substanzen verantwortlich, die im betrachteten Redoxpotenzialbereich und über die betrachtete Zeitskala oxidieren /MAZ 03/. Da die Kenntnis der Oxidationskinetik für viele Substanzen oft unzureichend ist, sollten anthropogene Analoga (offene Grubenbaue) herangezogen werden, da sie Auskunft über die relevanten Mineralphasen geben und zur Abschätzung der Eindringtiefe der Oxidation beitragen.

Um eine Versauerung des Porenwassers in Folge der Pyritoxidation auszuschließen, ist der Nachweis eines ausreichenden Karbonatpuffers erforderlich.

4.3.5 Auswahl relevanter Projekte

Es liegen derzeit keine Informationen über aktuelle Arbeiten vor.

4.4 Salzanreicherung durch Evaporation

4.4.1 Prozesse

Die Evaporation des Porenwassers während der Bewetterung erhöht die Ionenkonzentration im Bereich der Streckenwände und kann zur Ausfällung und Anreicherung von Salzen führen, welche die chemische Zusammensetzung der Porenwässer beeinflussen kann.

4.4.2 Befunde

- Im Whiteshell Underground Research Laboratory der AECL (Kanada), einem Untertagelabor in einem Granitpluton, konnte eine Salzakkumulation festgestellt werden, jedoch keine Salzanreicherung an den Tunnelwänden. Dies wurde durch eine Salzabfuhr in den Sommermonaten durch ablaufendes Kondenswasser erklärt (Gascoyne et al. 1996, zit. in /NAG 02/). Dieser Effekt ist auch in einem Endlager in tonigem Wirtsgestein möglich.
- Überschlagsrechnungen für ein Endlager im Opalinuston ergaben eine maximale Jahresmenge von 660 g Salz pro Laufmeter eines Lagertunnels für niedrig- und mittelaktive Abfälle und von 240 g pro Laufmeter eines Lagertunnels für hochaktive Abfälle. Bei einer Wiederaufsättigung würde dies eine nur 0,5-%-ige Erhöhung der Porenwasser-Salinität im Zement und eine 1,8-%-ige Erhöhung im Bentonit bedeuten, was als vernachlässigbar eingestuft wurde /NAG 02/.

4.4.3 Stand der Wissenschaft

Eine obere Grenze der Salzanreicherung durch Evaporation ist relativ gut abschätzbar.

4.4.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die maximale Salzanreicherung lässt sich gut abschätzen. Die bisherigen Untersuchungen legen nahe, dass auch bei maximaler Salzanreicherung keine nennenswerte Auswirkung auf die Porenwasserzusammensetzung zu erwarten ist.

4.4.5 Auswahl relevanter Projekte

Es liegen derzeit keine Informationen zu aktuellen Projekten vor.

5 Folgen der thermischen Störung

5.1 Überblick

Verschiedene hydromechanische und chemische Prozesse sowie viele Transportprozesse werden durch erhöhte Temperaturen und Temperaturgradienten initiiert oder beeinflusst. Viele Endlagerkonzepte sehen daher Abfallbehälter mit Lebenszeiten vor, die eine Isolation von Radionukliden über den Zeitraum der Temperaturstörung gewährleisten. Die Dauer und Intensität dieser Störung hängt wesentlich von der Wärmeproduktionsrate der Abfallbehälter, von der Dichte der Abfallbehälter im Endlager, von den verwendeten Materialien und dem Sättigungszustand ab. Insbesondere die Bentonitbarriere weist starke Änderungen der Sättigung und damit auch des Wärmetransportes auf.

Die durch wärmeerzeugende Abfälle hervorgerufene Temperaturerhöhung kann verschiedene hydromechanische Prozesse in Gang setzen, die Lage geochemischer Gleichgewichte verschieben und Oxidationsreaktionen sowie die Gasentwicklung aufgrund der Reifung organischer Substanz beschleunigen.

5.2 Wärmetransport

5.2.1 Prozesse

Im **tonigen Wirtsgestein** wird Wärme überwiegend durch Wärmeleitung transportiert, weil die geringen hydraulischen Durchlässigkeiten einen konvektiven und advektiven Wärmetransport behindern. Weil die Entsättigung des Wirtsgesteines durch die Bewetterung gering ist, ist mit keinem nennenswerten Wärmetransport in der Gasphase zu rechnen. Der Wärmetransport im Wirtsgestein könnte durch die z.T. luftgefüllten Klüfte der EDZ modifiziert werden.

Wärmeleitung ist auch in **hoch verdichtetem Bentonit** der Hauptmechanismus des Wärmetransportes und steigt im Laufe der Bentonitaufsättigung stark an (Der Wassergehalt von hochverdichtetem Bentonit beträgt meist nur einige Prozent). Bei sehr

geringen Wassergehalten wird Wasser auch über freie Konvektion der Gasphase befördert. Abschätzungen ergaben, dass in einem gering gesättigten Bentonit mit einer Gaspermeabilität von 10^{-12} m^2 etwa ein Viertel des Wärmetransportes durch Gas-konvektion erbracht wird /JOH 02/.

Zwischen Abfallbehälter und Bentonit, sowie zwischen Bentonit und Wirtsgestein können **Lücken** auftreten. Lücken zwischen den Abfallbehältern und dem Bentonit sind in den meisten Endlagerkonzepten ca. 1 cm breit und luftgefüllt /IKO 03, HÖK 03/. Der Wärmetransport in luftgefüllten Lücken findet überwiegend durch Wärmeleitung und Wärmestrahlung statt. Freie Gaskonvektion spielt wegen der Rauigkeit und Enge der Lücken dagegen nur eine geringe Rolle /IKO 03/. Bei wassergefüllten Lücken findet hauptsächlich Wärmeleitung statt.

Welche maximalen Temperaturen im Bentonitversatz und im Wirtsgestein erreicht werden, hängt von der Güte des Wärmetransportes und von der Charakteristik und Anordnung der wärmeproduzierenden Abfallbehälter ab. Durch entsprechende Auslegung des Endlagers und der Abfallbehälter wird versucht, bestimmte Maximaltemperaturen nicht zu überschreiten. Die Begrenzung der maximalen Temperatur dient dem Schutz der Bentonitbarriere und des Behältermaterials. Ein Sieden des Wassers im anfänglich gering gesättigten Bentonit kann zur unerwünschten Ausfällung von Salzen im Porenraum des Bentonits und an der Oberfläche der Behälter führen, was die Behälterkorrosion fördert und die Quelleigenschaften des Bentonits beeinträchtigt (Pusch 1992, Couture 1985, zit. in /JOH 02/). Dies legt nahe, maximale Temperaturen von 100 °C für die Behälteroberfläche festzulegen, um ein Sieden des Wassers zu verhindern. Im Gegensatz zu unkomprimiertem Bentonit, der ab 100 °C bereits eine Beeinträchtigung der Quelleigenschaften zeigt (Couture 1985, zit. in /JOH 02/) tritt diese bei hochkomprimiertem Bentonit nicht unter 110 °C auf (Pusch 2000, zit. in /JOH 02/). Bei Bentonit-Pellets ist unter 125 °C kein Einfluss auf die Quell- und hydraulischen Eigenschaften zu bemerken (Pusch et al. 2002, zit. in /JOH 02/).

5.2.2 Befunde

Wärmetransport im tonigen Wirtsgestein

- Die thermischen Parameter gesättigter Tone (Wärmeleitfähigkeit, Wärmekapazität, thermischer Expansionskoeffizient) weisen meist eine geringe Streuung auf /MAZ 03/.

Wärmetransport im Bentonit

- Die *Wärmeleitfähigkeit* von Bentonit hängt stark vom Wassergehalt ab. Unter trockenen Bedingungen werden Wärmeleitfähigkeiten zwischen $0,3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ und $0,4 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ gemessen, unter gesättigten Bedingungen Werte zwischen $1,3 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ und $1,4 \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ /IKO 03, JOH 02/.
- Auch die *Wärmekapazität* von Bentonit ist sättigungsabhängig. Für trockenen Bentonit werden Werte zwischen $1,1 \text{ MJm}^{-3}\text{K}^{-1}$ und $1,8 \text{ MJm}^{-3}\text{K}^{-1}$ gemessen, für gesättigten Bentonit Werte zwischen $2,1 \text{ MJm}^{-3}\text{K}^{-1}$ und $2,4 \text{ MJm}^{-3}\text{K}^{-1}$ /JOH 02/.
- Abschätzungen der konduktiven und konvektiven Anteile des Wärmetransportes ergaben, dass in einem gering gesättigten Bentonit mit einer Gaspermeabilität von 10^{-12} m^2 etwa ein Viertel des Wärmetransportes durch Gaskonvektion erbracht wird /JOH 02/.

Wärmetransport in Lücken

- Für das Schwedische Endlagerkonzept KBS-3V wurde ein Temperaturabfall von bis zu 13° K in der luftgefüllten Lücke zwischen Behälter und Bentonit berechnet /IKO 03/.

Berechnung des Wärmetransportes

- Für das schwedische Endlagerkonzept KBS-3V wurde demonstriert, dass die Temperaturentwicklung in einem Endlager mit effizienten analytischen Methoden berechnet werden kann, wenn zuvor eine Kalibrierung mit einem numerischen Modell erfolgt ist. Die analytischen Lösungen des Wärmetransportes einzelner Abfallbehälter können überlagert werden /IKO 03/.

5.2.3 Stand der Wissenschaft

Die Mechanismen des Wärmetransports in einem Endlagersystem sind gut verstanden und wegen des geringen Einflusses der freien Konvektion gut modellierbar.

5.2.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die Berechnung des Wärmetransports in einem Endlager ist unproblematisch, allerdings ist die Wirkung von Lücken und möglicherweise vorhandenen luftgefüllten Brüchen in der EDZ zu berücksichtigen. Numerische und analytische Ansätze zur Berechnung des Wärmetransportes sind verfügbar.

5.2.5 Auswahl relevanter Projekte

- OPHELIE (URL HADES): Zielsetzung: Simulation des PRACLAY-Projektes übertage. Laufzeit: Deinstallation im Oktober 2002.
- EC-Projekt HE (Felslabor Mont Terri): Zielsetzung: Identifizierung und Modellierung thermohydrmechanischer Prozesse durch ein Heizer-Experiment in gesättigtem Bentonit und Opalinuston. Laufzeit: 1. 11. 2001 – 31. 10. 2004.
- EC-Projekt FEBEX II (Felslabor Grimsel): Zielsetzung: Heizer-Experiment und Aufsättigungsversuch in Bentonit und numerische Analysen. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 21. 12. 2004.
- PRACLAY (URL HADES): Zielsetzung: Einbringen eines Versatzes und eines Abdichtungsbauwerkes und Heizer-Experiments in einer zu errichtenden Teststrecke im URL HADES. Laufzeit: steht noch nicht fest.

5.3 Thermisch induzierte hydromechanische Prozesse

5.3.1 Prozesse

Die durch wärmeproduzierende Abfälle erzeugte Temperaturerhöhung wirkt sowohl auf das Porenwasser als auch auf die Gesteinsmatrix ein und löst dort reversible und irreversible hydromechanische und physikochemische Prozesse aus. Zu den reversiblen Prozessen gehören die thermische Expansion des Wassers, die bedeutend schwächere thermische Expansion der Gesteinspartikel sowie die physiko-chemische Änderung der Tonstruktur aufgrund der Temperaturabhängigkeit der diffusiven Doppelschichten der Tonminerale. Durch die hierdurch ausgelösten Volumenänderungen werden thermische Spannungen aufgebaut. Die erhöhten Temperaturen beeinflussen

auch die Durchlässigkeit des Tones, da sich die Viskosität des Wassers mit steigender Temperatur erniedrigt.

Ob infolge der thermischen Expansion des Wassers und der Gesteinsmatrix kritische Spannungszustände für die Bruchbildung oder plastische Deformation erreicht werden, hängt stark von der Entwicklung der effektiven Spannungen ab. Verändert sich die Temperatur so langsam, dass die Änderung der Porenwasserdrücke durch advective Flüsse abgemildert werden kann, spricht man von „drainierten“ Bedingungen, im gegenteiligen Fall von „undrainierten“ Bedingungen. Unter undrainierten Bedingungen (schneller Temperaturanstieg) ist die Erhöhung des Porenwasserdruckes der dominante Mechanismus, was zu einer Absenkung der effektiven Spannungen führt. Hingegen steigen unter drainierten Bedingungen (langsamer Temperaturanstieg) die effektiven Spannungen, weil die thermische Expansion lediglich die Matrixspannung erhöht. Dies kann zu einer Konsolidierung des Tones führen /ZHA 04/.

Die thermische Expansion lockert das Gefüge der Tonmatrix. Die Kriechgeschwindigkeiten erhöhen sich und die Grenzzustände für die Bruchbildung, die plastische Deformation und das Kriechen werden verschoben.

Kommt es zu plastischer Deformation, so ist diese wegen der reduzierten effektiven Spannungen meist dilatant (Der Spannungszustand befindet sich im Sinne der *critical state*-Theorie auf der dilatanten oder „trockenen“ Seite der kritischen Zustandslinie). Die Deformation ist dabei desto stärker lokalisiert (Scherbänder, Scherbrüche), je niedriger die effektive Spannung ist. Durch die Dilatanz kann sich die hydraulische Eigenschaft des Tones verändern (Bruchbildung). Sie erniedrigt jedoch auch die Porenwasserdrücke, was einer weiteren Bruchbildung entgegenwirkt.

Eine irreversible Konsolidierung des Tones kann sowohl durch volumetrische viskoplastische Deformation (sekundäre Konsolidierung) als auch aufgrund thermischer Spannungen (thermische Konsolidierung) erfolgen. Eine Konsolidierung ändert neben den mechanischen Eigenschaften des Tones auch die Porosität und Permeabilität.

5.3.2 Befunde

Identifizierung dominanter Effekte

- Analytische und numerische Abschätzungen im Rahmen des schweizerischen Entsorgungsprogrammes für den Opalinuston ergaben, dass die Erhöhung des Porenwasserdrucks und der totalen Spannung (= effektive Spannung + Poren-druck) die wichtigsten hydromechanischen Effekte einer Temperaturerhöhung sind /NAG 02/. Die numerischen Rechnungen prognostizierten für das Wirtsgestein (exklusive der EDZ) einen schnelleren Anstieg der totalen Spannung gegenüber den Porenwasserdrücken und somit eine Erhöhung der effektiven Spannung. Damit sind – auch auf den Schichtflächen – keine Festigkeitsüberschreitungen zu erwarten. Eine thermische Konsolidierung wurde nicht festgestellt, vermutlich weil der Opalinuston in seiner Versenkungsgeschichte bereits Temperaturen von 85 °C ausgesetzt war. Im unmittelbaren Stollenumfeld (inklusive der EDZ) spielt eine Erhöhung der Porenwasserdrücke wegen der geringeren Sättigung keine Rolle. Hier ist eher mit einer Festigkeitsreduktion und daher mit einer erhöhten Zerschierung der Auflockerungszone zu rechnen.
- Im Rahmen des CERBERUS-Experimentes wurde der Boom Clay unter drainierten Bedingungen auf 50 °C und 80 °C erhitzt. Es wurde eine nur geringe thermische Konsolidierung festgestellt /NIR 01, MAZ 03/. Ebenso zeigte der Boda-Ton in in-situ-Tests keine irreversible Konsolidierung /MAZ 03/. Bei einer Erhitzung des Opalinus Tons und des COx-Tons unter ungesättigten und drainierten Bedingungen wurde eine Konsolidierung beobachtet /ZHA 04/.
- Im Rahmen des CERBERUS-Experimentes wurde eine Erhöhung der hydraulischen Permeabilität mit steigender Temperatur festgestellt.

5.3.3 Stand der Wissenschaft

Die Entwicklung der Porenwasserdrücke in Reaktion auf eine Temperaturerhöhung hängt von den hydraulischen Eigenschaften des Tones ab, die sich wiederum im Zuge von Rissbildungen durch die erhöhten Porenwasserdrücke verändern können. Der komplexe Zusammenhang zwischen den Porenwasserdrücken und der hydraulischen Permeabilität kann derzeit nur auf empirischem Wege ermittelt werden.

5.3.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Numerische Analysen des Spannungs- und Deformationspfades geben Auskunft, ob kritische Zustände für die plastische Deformation oder die Bruchbildung erreicht werden. Die hierzu erforderlichen thermo-hydro-mechanischen Materialgesetze und Parameter sind gesteinspezifisch zu ermitteln. Unsicherheiten bezüglich der hydromechanischen Modellierung bestehen hinsichtlich des Einflusses dilatanter Scherung auf die Permeabilität, eventueller Selbstheilungsmechanismen und einer möglichen nicht-linearen Beziehung zwischen advektiven Flüssen und hydraulischen Potenzialgradienten bei niedrigen Porenwasserdrücken (s. Abschnitt 9.3). Die numerischen Ergebnisse müssen daher zusätzlich durch großskalige in-situ-Experimente gestützt werden. Die in der Versenkungsgeschichte des Wirtsgesteins aufgetretene maximale Temperatur kann Auskunft darüber geben, ob bei erneuter Erhitzung irreversible Konsolidierungseffekte zu erwarten sind.

5.3.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt CACTUS I + II (URL HADES): Zielsetzung: In-situ-Experiment zur Demonstration der Wärmewirkung eines COGEMA-Kanisters nach 50-jähriger Abkühlung. Laufzeit: 1. 9. 1990 – 31. 3. 1993.
- EC-Projekt CERBERUS (URL HADES): Zielsetzung: Großskaliges Experiment zur Demonstration des kombinierten Effektes von Strahlung, Wärme und Bohrtätigkeit auf das Nahfeld. Laufzeit: 1. 1. 1996 – 31. 12. 1998.
- EC-Projekt ATLAS (URL HADES): Zielsetzung: Großskaliges Experiment zu thermo-hydro-mechanischen Prozessen ohne Verfüllmaterial zwischen Heizer und Tonstein. Laufzeit: 1. 1. 1996 – 31. 12. 1998.
- EC-Projekt BENCHPAR: Zielsetzung: Verbesserung der Anwendung von thermohydromechanischen Modellen in Sicherheitsanalysen. Laufzeit: 1. 10. 2000 – 31. 10. 2003.
- EC-Projekt HE (Felslabor Mont Terri): Zielsetzung: Identifizierung und Modellierung thermohydromechanischer Prozesse durch ein Heizer-Experiment in gesättigtem Bentonit und Opalinuston. Laufzeit: 1. 11. 2001 – 31. 10. 2004.
- EC-Projekt FEBEX II (URL Grimsel): Zielsetzung: Heizer-Experiment und Aufsättigungsversuch in Bentonit. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 21. 12. 2004.

- OPHELIE (URL HADES): Zielsetzung: Simulation des PRACLAY-Projektes übertage. Laufzeit: Deinstallation im Oktober 2002.
- EC-Projekt PRACLAY (URL HADES): Zielsetzung: Einbringen eines Versatzes und eines Abdichtungsbauwerkes und Heizer-Experiments in einer zu errichtenden Teststrecke im URL HADES. Laufzeit: steht noch nicht fest.

5.4 Chemische und mineralogische Wirkung erhöhter Temperaturen

5.4.1 Prozesse

Erhöhte Temperaturen, die durch Einlagerung hochaktiver radioaktiver Abfälle entstehen, beeinflussen verschiedene chemische und mineralogische Vorgänge. Prozesse, die derzeit im Rahmen von Sicherheitsanalysen diskutiert werden, sind die Beschleunigung von Oxidationsreaktionen (insbesondere der Oxidation von Pyrit und organischer Substanzen durch den verbliebenen Sauerstoff), die Änderung der Porenwasserchemie und Mineralogie aufgrund der Verschiebung geochemischer Gleichgewichte (insbesondere die Illitisierung von Smektit), die Reifung organischer Substanz sowie Zementationsprozesse.

5.4.2 Befunde und Erfahrungen

Beschleunigung von Oxidationsreaktionen

- Für den Opalinuston wurde aus der Annahme, dass die Oxidationsraten maßgeblich durch die Verfügbarkeit von Sauerstoff abhängen, eine vernachlässigbare Beschleunigung der Oxidationsraten abgeleitet /NAG 02/. Da bei 95°C der diffusive Nachschub von Sauerstoff ca. 4-mal größer als bei 20°C ist, ergibt sich eine Vervierfachung der Oxidationsraten bei entsprechender Temperaturerhöhung. Oxidationsprozesse, die durch die Bewetterungsluft verursacht werden, sind im Opalinuston ohnehin schwach ausgeprägt, so dass auch eine 4-fach erhöhte Oxidationsrate als unkritisch eingestuft wurde.

Änderung hydrochemischer und mineralogischer Gleichgewichte

- Nach /NAG 02/ beeinflusst eine Temperaturerhöhung im Opalinuston i.W. Karbonatsysteme und den Kationenaustausch. Geochemische Modelle ergaben

bei einer Temperaturerhöhung von 38°C auf 95 °C eine Erhöhung des CO₂-Partialdruckes um den Faktor 2 und eine Absenkung des pH-Wertes um 0,6 (Versauerung). Ansonsten war der Einfluss auf die Porenwasserzusammensetzung gering (schwache Calcit-Lösung und schwache Dolomit-Ausfällung).

- Beim spanischen Referenzton wird mit einer Dehydrierung von Gips aufgrund der Temperaturerhöhung durch hochaktive Abfälle gerechnet /MAZ 03/.

Reifung (Maturation) organischer Substanz

- Bei der Reifung organischer Substanz spielt die Stärke und Dauer der Temperatureinwirkung eine maßgebliche Rolle. Bei der geplanten Endlagerung hochaktiver Abfälle im Opalinuston des Zürcher Weinlandes ist mit einer Temperaturerhöhung auf 95 °C zu rechnen, was lediglich 10 °C über der maximalen Temperatur liegt, die der dortige Opalinuston während seiner Versenkungsgeschichte erfahren hat. Da die Zeitdauer der abfallbedingten Temperaturstörung relativ zur Versenkungsdauer sehr kurz ist (um 4 Größenordnungen kleiner), wird mit keiner nennenswerten Maturation aufgrund der thermischen Wirkung der Abfälle gerechnet /NAG 02/.
- Messungen der Gasfreisetzungen im Opalinuston des Felslabors Mont Terri /JOC 02/ zeigten, dass bei 100°C ein Druckanstieg von ca. 0,02 MPa zu erwarten ist. Die Variation der Gasfreisetzung zwischen verschiedenen Bohrlöchern um den Faktor 15 weist auf eine Inhomogenität der chemisch-mineralogen Zusammensetzung hin.

Illitisierung von Smektiten

- Geochemische numerische Modelle mit verschiedenen thermodynamischen Datensätzen ergaben, dass im Opalinuston bei 95 °C eine merkliche Illitisierung erst nach 1 Million Jahren im Kontakt mit dem Referenzwasser auftritt /NAG 02/.
- Im Rahmen des CERBERUS-Experiments wurde keine mineralogische Veränderung des Boom-Tones bei Erhitzung auf 50 °C und 80 °C festgestellt.
- Eine 16-wöchige thermische Belastung von Tonstein der Site de Bure bei 200 °C und verschiedenen Wasser-Feststoff-Verhältnissen zeigte nur eine leichte Veränderung der Illit/Smektit-Wechselagerungsminerale zu Gunsten eines höheren Illit-Anteils (Mosser-Ruck et al. in /AND 02/, Beitrag P-AA-29). Damit blieben die Quell- und Austauschigenschaften des Tones i.W. erhalten.

5.4.3 Stand der Wissenschaft

Die lückenhafte Kenntnis der Reaktionskinetik macht die Berechnung von Oxidationsreaktionen, Mineralumwandlungen und der Reifung organischer Substanz problematisch. Große Unsicherheiten bestehen insbesondere hinsichtlich der Umwandlungskinetik von Tonmineralen. Als günstig ist die relativ kurze Dauer der Temperaturerhöhung durch wärmeproduzierende Abfälle zu werten, weil hierdurch die Unsicherheit bezüglich der Kinetik langsamer Umwandlungsprozesse an Bedeutung verliert.

5.4.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Bisherige Abschätzungen ergaben insbesondere für ein Endlager im Opalinuston, dass die chemischen und mineralogischen Effekte erhöhter Temperaturen von untergeordneter Bedeutung für die Langzeitsicherheit sind, sofern die Temperaturen durch geeignete Auslegung des Endlagers und der Abfallgebinde unter 100 °C gehalten werden können. Hieraus kann jedoch keine generelle Vernachlässigbarkeit dieser Effekte geschlossen werden. Ihre Relevanz bleibt standortabhängig zu prüfen.

5.4.5 Auswahl relevanter Projekte

Es liegen keine Informationen zu aktuellen Projekten vor.

6 Folgen der hydromechanischen Störung

6.1 Überblick

Diese Prozessgruppe umfasst die (thermo-)hydromechanischen Prozesse in der Nachbetriebsphase, die zum Ausgleich der hydromechanischen Störung durch das Endlager führen (Spannungsumverteilung und Entwässerung). Hierunter fallen das mechanische Versagen der Stützbauwerke und die Konvergenz des Gebirges. Der Aufbau eines Quelldruckes zwischen dem sich aufsättigenden Bentonit und dem konvergierenden Wirtsgestein führt zur Kompression der EDZ und zur Selbstheilung.

Die Aufsättigung der Bentonitbarriere und der Wiederanstieg der Porenwasserdrücke im Wirtsgestein erzeugen Fluss zum Endlager hin, der einem potenziellen Austrag von Radionukliden entgegenwirkt. Mit der Bentonitaufsättigung steigt die Verfügbarkeit von Wasser für die Korrosion der Abfallbehälter und die Degradation der Abfallmatrix.

6.2 Aufsättigung der Bentonitbarriere

6.2.1 Prozesse

Bentonit wird meist in lufttrockenem Zustand eingebracht und besitzt daher hohe Saugspannungen mit entwässernder Wirkung auf das Wirtsgestein. Zu Beginn der Aufsättigungsphase wird die Wassermenge, die aus dem Wirtsgestein zutritt, von den hohen Saugspannungen des Bentonits bestimmt, weil die Permeabilität des Wirtsgesteins sehr gering ist. Kernfragen bezüglich der Bentonitaufsättigung betreffen die Dauer des Aufsättigungsvorganges und die hydraulischen und diffusiven Eigenschaften des Bentonits nach erfolgter Aufsättigung /KRÖ 04/.

Der Aufsättigungsvorgang beinhaltet eine Wanderung von Wasser von den Makroporen in die Mikroporen des Tons und schließlich in die Zwischenschichten der Tonminerale, wo eine Hydratation der austauschbaren Ionen stattfindet. Der Hydratationsvorgang lässt Tonminerale quellen, weil sich die Zwischenschichtabstände durch die Hydratationshüllen der Ionen vergrößern. Der Bentonit geht dabei allmählich in den

Gel-Zustand über. Durch die Wasseraufnahme wird der weitere Aufsättigungsvorgang behindert: Ein großer Anteil des Porenwassers ist adsorptiv an Tonmineraloberflächen gebunden und deshalb immobil, zusätzlich verringert der Quellvorgang den Porenraum. Wichtig für die Aufsättigung ist daher der Wassertransport in der Gasphase.

Neben diesen hydromechanischen Vorgängen spielt auch die chemische Zusammensetzung des Porenwassers eine Rolle, da sie das Quellverhalten der Tonminerale beeinflusst. Darüber hinaus haben wärmeerzeugende Abfälle wegen der Temperaturabhängigkeit des Fluid- und Gastransports Einfluss auf den Aufsättigungsvorgang.

6.2.2 Befunde

- Die Wasseraufnahme durch Bentonit kann durch Anwendung hydraulischer Drücke nicht signifikant erhöht werden (Jockwer et al., 2000; Pusch and Kasbohm, 2001, zit. in /KRÖ 04/).
- Es besteht tendenziell eine lineare Abhängigkeit zwischen der Trockendichte und der Permeabilität von Bentonit /KRÖ 04/. Bei einer Trockendichte von 1000 kg/m^3 liegen die Permeabilitäten zwischen 10^{-19} m^2 und 10^{-18} m^2 , bei einer Trockendichte von 1700 kg/m^3 zwischen 10^{-20} m^2 und 10^{-21} m^2 .

6.2.3 Stand der Wissenschaft

- Ein messtechnisches Problem stellt die räumliche und zeitliche Erfassung der Wassergehalte im Bentonit während der Aufsättigung dar.
- Wegen der Langsamkeit der Aufsättigung kann deren Dauer nur durch numerische Modelle abgeschätzt werden. Nach Kröhn /KRÖ 04/ gibt es derzeit jedoch keinen etablierten Ansatz zur Modellierung der Bentonitaufsättigung. Gebräuchliche numerische Modelle (wie z.B. FRACON, ROCMAS, ABAQUS, CODE-BRIGHT, COMPASS, ROCKMECH und THAMES) nutzen den konventionellen Ansatz des Zweiphasen-Flusses und vernachlässigen damit den Hydrationsprozess, sowie seinen Einfluss auf die Porosität, die Saugspannung und die Wassermenge im Porenraum. Kröhn /KRÖ 04/ schlägt zwei Alternativmodelle vor (Advektionsmodell und Gasdiffusionsmodell), um das Hydrationswasser explizit zu berücksichtigen.

6.2.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die Möglichkeiten zur Modellierung der Bentonitaufsättigung sind derzeit begrenzt, weshalb sich zur Abschätzung der Aufsättigungsdauer die Verwendung verschiedener Modellansätze empfiehlt. Das sog. Diffusionsmodell bietet eine einfache empirische Beschreibung des Aufsättigungsvorganges. Modelle für die Zweiphasen-Strömung, die den Einfluss des Quellvorgangs auf die Porosität und Permeabilität nicht berücksichtigen, können für Abschätzungen der Mindestaufsättigungsdauer genutzt werden. Modellansätze, die den Einfluss der Hydratation berücksichtigen, befinden sich derzeit in der Testphase /KRÖ 04/.

6.2.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt BENIPA: Zielsetzung: Bewertung der Behandlung von Bentonitbarrieren in granitischen und tonigen Wirtsgesteinen in Sicherheitsanalysen. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 31. 8. 2003.
- EC-Projekt EB (URL Mont Terri): Zielsetzung: Test neuer technischer Konzepte bei der Realisation einer Bentonitbarriere in einer horizontalen Strecke. Anschließender Hydrationsversuch mit numerischer Modellierung der hydromechanischen Prozesse. Laufzeit: 1. 10. 2002 – 30. 11. 2003.
- EC-Projekt FEBEX II (Felslabor Grimsel): Zielsetzung: Heizer-Experiment und Aufsättigungsversuch in Bentonit mit numerischen Analysen. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 21. 12. 2004.
- EC-Projekt PROTOTYPE REPOSITORY (Äspö Hard Rock Laboratory): Zielsetzung: Demonstration des KBS 3-Endlagerkonzepts in kristallinem Gestein. Untersuchung des langfristigen Verhaltens einer Bentonitbarriere anhand eines großskaligen in-situ-Tests und numerischer Analysen. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 29. 2. 2004.
- Entwicklung konzeptioneller Modelle zur Bentonit-Aufsättigung /KRÖ 04/. Die Modelle werden derzeit an Messungen des Wassergehaltes getestet.

6.3 Entwicklung der Porenwasserdrücke im Wirtsgestein

6.3.1 Prozesse

Die Bewetterung, die Konvergenz des Gebirges und die hohen Saugspannungen des hochverdichteten Bentonits verändern die Porenwasserdrücke im Wirtsgestein. Wegen der geringen Permeabilität von Ton stellen sich die ursprünglichen Porenwasserdrücke nur langsam wieder ein. Materialien mit hoher Porosität, die in das Endlager eingebracht werden, verlängern die Dauer dieses Vorgangs.

Wärmeerzeugende Abfälle beeinflussen die Entwicklung der Porenwasserdrücke. So erniedrigen hohe Temperaturen die Viskosität des Wassers und beschleunigen damit den Aufsättigungsvorgang. Die thermische Expansion des Wassers erhöht die Porenwasserdrücke und kann damit einerseits eine Fluidbewegung und andererseits eine Bildung von Mikrorissen herbeiführen. Dabei kann ein signifikanter Einfluss der Mikrorissbildung auf die hydraulischen und mechanischen Eigenschaften des Tones nicht ausgeschlossen werden.

Ein Zweiphasenfluss im Wirtsgestein ist nur in unmittelbarer Nachbarschaft zum Endlager zu erwarten, da die entsättigte Zone nur einige Meter tief ist (s. auch Abschnitt 4.2). In diesem Bereich ist der Fluidtransport im Wirtsgestein an einen Gasaustausch mit den mit Restgasen gefüllten Hohl- und Porenräumen des Endlagers gekoppelt.

6.3.2 Befunde

- Im Felslabor Mont Terri konnte eine Veränderung der Porenwasserdrücke bis in eine Tiefe von 20 m aufgrund einer 10-jährigen Offenhaltung nachgewiesen werden. Die ungesättigte Zone war etwa 2 m tief /NAG 02/.
- Im Projekt Entsorgungsnachweis wurde die Aufsättigung der Einlagerungskammern und des Wirtsgesteins auf der Grundlage der klassischen Zweiphasenströmung (inerte Gesteinsmatrix) für ein Endlager im Opalinuston berechnet /NAG 02/. Demnach sind wichtige Einflussfaktoren für die Aufsättigung:
 - die Viskosität des Wassers: Bei erhöhten Temperaturen verringert sich die Viskosität und damit die Aufsättigungsdauer.

- die Porosität der eingebrachten Materialien: Poröse Materialien, die besonders in Zugangs- und Betriebsstollen zum Einsatz kommen, erhöhen die Aufsättigungsdauer.
- die Porenwasserdrücke des Wirtsgesteins: Die Dauer der Aufsättigung der Einlagerungsstollen wird überwiegend von den hydraulischen Eigenschaften des Wirtsgesteins bestimmt, weniger durch die des Versatzmaterials.
- die Auflockerungszone: Durch eine Auflockerungszone erhöht sich der zuflusswirksame Radius eines Stollens, was die Aufsättigung beschleunigt. Die (gesättigte) Auflockerungszone bewirkt, dass tiefer gelegene Endlagerbereiche schneller aufgesättigt werden.

Ohne signifikanten Einfluss sind dagegen erhöhte Porenwasserdrücke im Wirtsgestein und eine verlängerte Offenhaltung des Endlagers. Die berechnete Dauer der Aufsättigungsphase belief sich auf einige 1000 bis 10000 Jahre.

- Verschiedene Beiträge der Tagung „Clays in natural and engineered barriers for radioactive waste confinement“ /AND 02/ beschäftigen sich mit den z.T. irreversiblen Änderungen der hydraulischen und mechanischen Eigenschaften des Wirtsgesteins durch Dehydrations/Hydrations-Zyklen:
 - Montes et al. (Beitrag P-GGET-25) beobachten im ESEM (electron scanning environmental microscope) die Entwicklung von Mikrorissen nach verschiedenen Hydrations-Dehydrations-Zyklen. Gebildete Mikrorisse können offenbar bei erneuter Hydratation teilweise wieder geschlossen werden (Selbstheilung). Zu ähnlichen Ergebnissen kommen Robinet et al. (Beitrag O-5b-1), die eine Bildung von Mesoporen (Durchmesser ~30 µm für FoCa-Ton) bei Erhöhung der Wassersättigung feststellen, was mit einer Erniedrigung der Saugspannung einhergeht.
 - Einen bedeutenden Einfluss auf die Mikrorissbildung hat die mineralogische Zusammensetzung des Tones, da sich an den Grenzflächen zwischen Tonmineralen und nicht-quellfähigen Mineralen, wie Quarz, bevorzugt Spannungskonzentrationen aufbauen. Mikrorissbildung infolge Hydratation spielt nur eine geringe Rolle, wenn der Tonmineralanteil gegenüber dem Quarzanteil sehr hoch oder aber sehr niedrig ist.
 - Sowohl Villar (Beitrag O-5b-3) als auch Bemer et al. (Beitrag P-GGET-12) berichten über eine Verminderung der Vorkonsolidierungsspannung und eine

Erhöhung der Kompressibilität bei Wasseraufnahme. Beide Effekte dürften mit einer Auflockerung des Mineralgefüges infolge der Quellung zusammenhängen.

6.3.3 Stand der Wissenschaft

Die Prozesse in Verbindung mit der Aufsättigung und Wiedereinstellung der hydrostatischen Porenwasserdrücke im Wirtsgestein sind noch nicht in allen Aspekten verstanden. Die Aufsättigungsphase wird oft unter Annahme der klassischen Zweiphasen-Strömung mit inerter Festkörpermatrix modelliert. Nicht genügend geklärt ist, in welchen Fällen eine solche Vernachlässigung des Hydrationswassers und des Quellverhaltens adäquat ist. Die Existenz eines Schwellwertes für den hydraulischen Gradienten zur Erzeugung advektiver Flüsse dürfte Einfluss auf die Entwicklung der Porenwasserdrücke haben und zu stabilen Porenüberdrücken oder –unterdrücken führen. Dies dürfte insbesondere die hydromechanischen Eigenschaften des Tones beeinflussen. Das Fließverhalten bei niedrigen Druckgradienten entzieht sich jedoch weitgehend der Messbarkeit.

6.3.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die vielfältigen thermo-hydro-mechanischen Prozesse, die für die Veränderung der Porenwasserdrücke verantwortlich sind, und ihre komplexen Wechselwirkungen können durch ein einzelnes numerisches Modell nicht umfassend behandelt werden. Es muss daher auf vereinfachte konzeptuelle Modelle zurückgegriffen werden, wobei zu prüfen ist, ob die Vereinfachungen zulässig sind. Einflüsse einer Erhöhung des Wassergehaltes (Quellung, Mikrorissbildung), der thermischen Expansion des Wassers (Mikrorissbildung), der Konvergenz (deformationsbedingte Porositätsänderung) und der Selbstheilung auf die Permeabilität sind abzuschätzen. Ferner ist das Vorhandensein eines Schwellwertes für den hydraulischen Gradienten zur Erzeugung advektiver Flüsse zu prüfen.

Der Zustand der hydraulisch gestörten Zone nach Schließung des Endlagers bildet den Anfangszustand der Aufsättigungsphase. Dieser Zustand kann jedoch nur numerisch ermittelt werden, was aufgrund der komplexen hydromechanischen Prozesse, die zur Bildung und Entwicklung der hydraulisch gestörten Zone beitragen, mit großen Unsicherheiten verbunden ist. In-situ-Messungen der Porenwasserdrücke während der

Konstruktions- und Betriebsphase des Endlagers liefern wichtige Daten, um die benötigten hydromechanischen Stoffgesetze zu entwickeln und numerische Modelle zu kalibrieren.

6.3.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt VE (URL Mont Terri): Zielsetzung: Untersuchung der Entsättigung von Opalinuston durch Ventilation. Abschätzung der Ent- und Wiederaufsättigungszeiten, der hydraulischen Durchlässigkeiten und der EDZ-Entwicklung. Laufzeit: 1. 12. 2001 – 21. 5. 2004.

6.4 Selbstheilung durch hydromechanische Prozesse

6.4.1 Prozesse

Die Fähigkeit zur Selbstheilung ist besonders in gering verfestigten Tonen stark ausgeprägt. Auch in stark verfestigten Tonen kommt es zu einer Selbstheilung, jedoch ist dieser Vorgang auf den relativ kurzen Zeitskalen von Labor- und in-situ-Experimenten nicht leicht zu erfassen. Entscheidend für die Endlagersicherheit ist, ob zum Zeitpunkt der Radionuklidfreisetzung eine ausreichende Selbstheilung stattgefunden hat oder nicht. Dies kann trotz der relativ langsamen Selbstheilung auch bei stark verfestigten Tonen der Fall sein.

Es treten verschiedene Mechanismen der Selbstheilung auf:

- Durch die Aufsättigung und das Quellen der Bentonitbarriere wird ein Quelldruck auf das konvergente Gebirge ausgeübt. Dieser Druck verengt oder verschließt die Klüfte der EDZ, insbesondere wenn diese parallel zu den Stollenwänden orientiert sind. Ein ähnlicher Effekt wird erzielt, wenn das konvergente Gebirge Druck auf nicht-quellende Stützbauwerke oder Versätze ausübt.
- Makroskopische Porenräume der EDZ können unter den gegebenen Spannungszuständen instabil sein und sich durch viskoses Kriechen verengen. Dies ist besonders in schwach verfestigten Tonen zu beobachten. (Bei stärker verfestigten Tonen tritt dieser Mechanismus auf der betrachteten Zeitskala vorwiegend nur makroskopisch in Form der Gebirgskonvergenz auf). Hohe Porenwasserdrücke beschleunigen diesen Vorgang.

- Durch die Quellung des Wirtsgesteines in der entsättigten Zone können Trennfugen verschlossen werden.
- Zu einer Selbstheilung kann es infolge der Gebirgskonvergenz kommen, wenn diese durch kontrahierende plastische Deformation zustande kommt. Dieser Mechanismus kann vorhandene Brüche schließen und der Bildung weiterer Scherbrüche vorbeugen.
- Die langsame Temperaturabnahme infolge der abnehmenden Wärmeproduktion von Abfällen erniedrigt die Porenwasserdrücke, wodurch die Matrixspannungen ansteigen und eine Selbstheilung durch Konsolidierung eintreten könnte.

6.4.2 Befunde

Selbstheilung durch Kompression der EDZ

- Durch die NAGRA wurde im Rahmen des SELFRAC-Projektes die Transmissivitätsänderung der EDZ im Opalinuston unter langfristiger Kompression der Stollenwände untersucht /EUR 04b/. Mit steigender Belastung zeigte sich eine deutliche, wenn auch nicht vollständige Abnahme der Transmissivität. Dieser Selbstheilungsvorgang besitzt offenbar irreversible Anteile, da sich nach der Entlastung der EDZ die ursprüngliche Transmissivität der EDZ nicht wieder einstellte /HOR 03/.
- An zylindrischen Proben des Boom Clays und des Opalinustons wurde die Permeabilität eines künstlich erzeugten, senkrecht zur Zylinderachse verlaufenden Risses untersucht /EUR 04b/. Hierzu wurde ein Loch in die Zylinderachse gebohrt und der Fluss von der Außenseite des Zylinders in das Bohrloch hinein gemessen. Die Probenzylinder wurden mit einem hydrostatischen Druck von 4,5 MPa komprimiert, was in der Größenordnung des Bentonit-Quelldrucks liegt. Die Proben des Boom Clay hatten bereits nach einigen Tagen ihre ursprüngliche Permeabilität wiedererlangt. Der Opalinuston zeigte auch nach 180 Tagen nur eine sehr geringe Selbstheilung (Permeabilitätsanstieg um 4 bis 5 Größenordnungen durch die künstliche Bruchbildung und Absenkung der Permeabilität um weniger als eine Größenordnung nach 180 Tagen).

Instabilität von Hohl- und Porenräumen

- Im Boom Clay zeigte sich die Fähigkeit zur Selbstheilung durch das vollständige Schließen eines Bohrloches (Mertens et al. in /AND 02/, Beitrag O-3-3). Hydraulische Tests in einem Bohrloch, die vier Monate nach einem Gas-Injektions-Test durchgeführt wurden, zeigten eine hydraulische Durchlässigkeit, die der des ungestörten Gesteins entsprach (Ortiz et al., 1997, in /MAZ 03/).
- Gasinjektionstests im Boom Clay zeigten einen pulsierenden Gasfluss, was durch ein Kollabieren von Gasmigrationspfaden erklärt werden kann /MAZ 03/.

Selbstheilung durch Quellung

- Im Opalinuston des Felslabors Mont Terri sank die Permeabilität der EDZ, die einige Größenordnungen über der des ungestörten Gebirges lag, innerhalb eines Jahres um eine Größenordnung (Bossart et al. in /AND 02/, Beitrag O-3-2). Dies wurde durch die Aufsättigung und die daraus folgende Quellung des Tonsteins in der EDZ erklärt.
- Im URL Tournemire veränderten sich die Kluftöffnungsweiten um 0,1 – 3 mm in Abhängigkeit von der jahreszeitlichen Luftfeuchtigkeits- (40 – 100 %) und Temperaturschwankung (6 – 16 °C) aufgrund von Quellung und thermischer Dilatation (Rejeb, in /AND 02/, Beitrag P-LE-07).

Quantifizierung der Selbstheilungsfähigkeit

- Im Rahmen des EU SELFRAC Projektes wurde eine Methode zur Quantifizierung der Selbstheilungsfähigkeit auf der Mikroskala vorgestellt (Vanbrabant et al. in /AND 02/, Beitrag O-3-4; /EUR 04b/): Bei mechanischer Belastung von Tonproben werden aufgrund der Mikrorissbildung akustische Emissionen ausgesendet, sobald die Spannung diejenige vergangener Belastungszyklen überschreitet (Kaiser-Effekt). Durch Selbstheilungseffekte setzen die akustischen Emissionen beim nächsten Belastungszyklus schon bei niedrigeren Spannungen ein. Als Beschreibungsgröße für die Selbstheilung kann deshalb das Verhältnis zwischen der Spannung, bei dem akustische Emissionen einsetzen, und der maximal angewendeten Spannung dienen (Felicity ratio Fr). Die Prozesse, die für die in den Experimenten beobachtete Selbstheilung verantwortlich waren, konnten bislang nicht identifiziert werden.

- Die Methode der Mikro-Computertomographie (μ CT) wurde erfolgreich zum zerstörungsfreien, 3-dimensionalen Monitoring von Rissöffnungsweiten und Materialdichten in zylindrischen Proben von Boom Clay genutzt /EUR 04b/. Der Durchmesser der Probenzylinder betrug 38 mm.

Wiedereinstellung der mechanischen Eigenschaften

- Laborexperimente mit Boom Clay zeigen zwar eine schnelle Selbstheilung, d.h. eine schnelle Wiedereinstellung der hydraulischen Eigenschaften, die verheilten Brüche bildeten jedoch weiterhin mechanische Schwächezonen /EUR 04b/.

6.4.3 Stand der Wissenschaft

- Die experimentelle Bestimmung der Selbstheilungsfähigkeit stark verfestigter Tone ist problematisch, da die Selbstheilung über sehr lange Zeiträume abläuft. Signifikante Effekte zeigen nur Experimente, die länger als 1 Jahr andauern.
- Die Kompression der EDZ durch die Quellung des Bentonits und die Konvergenz des Gebirges ist vor allem in stark verfestigten Tonen ein wichtiger Selbstheilungsmechanismus, dessen Quantifizierung jedoch mit größeren Unsicherheiten behaftet ist. Wegen der Komplexität der hydromechanischen Prozesse ist die belastbare Prognose der Konvergenzverformung und der Aufsättigung und Quellung des Bentonits problematisch. Dies erhöht die Unsicherheit bezüglich der Zeitskala des Selbstheilungsprozesses.
- Für die Beschreibung des Deformationsverhaltens von Tonen sind herkömmliche spröd-elasto-plastische Materialgesetze (mit oder ohne Verformungserweichung) ungeeignet, da die Spannungen stark von der Verformungsrate abhängen (viskoses Verhalten) /HOR 03/. Zusätzlich spielen hydromechanische Wechselwirkungen eine große Rolle beim mechanischen Verhalten von Ton. Wichtige Fragen, die bezüglich der visko-plastischen Deformation von Ton geklärt werden müssen, betreffen nach Horseman et al. /HOR 03/:
 - Die Rolle der Nichtlinearität in der Abhängigkeit der Deformationsrate von den deviatorischen Spannungen (ist im Vergleich zu Salz gering).
 - Das Vorhandensein eines Schwellwertes für das Kriechen.

- Der Einfluss volumetrischen Kriechens, welches Dilatanz oder Kontraktion verursacht und die Porenwasserdrücke beeinflusst (gebräuchliche Materialgesetze berücksichtigen Scherkriechen, aber kein volumetrisches Kriechen).
- Die Übertragbarkeit von Labordaten auf größere Raum- und Zeitskalen.
- Relativ wenig untersucht ist die eventuelle Beeinträchtigung der Selbstheilungsfähigkeit durch geochemische Alterationsprozesse entlang von Klüften, z.B. aufgrund oxidierender Bedingungen oder hochalkalischer Fluide. Es ist zu erwarten, dass in gering verfestigten Tonen die Geschwindigkeit der Selbstheilung hoch genug ist, um eine solche Beeinträchtigung zu verhindern.

6.4.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die EDZ stellt ein wichtiges Element des Endlagersystems dar, da sie Wegsamkeiten in streckenparalleler Richtung eröffnet. Abdichtungsbauwerke durch die EDZ an Wirksamkeit verlieren, so dass ein Transportpfad zur Biosphäre bzw. zu Aquifersystemen entsteht, der die geologische Barriere umgeht. Durch schonende Abbauverfahren im Bereich der Abdichtungsbauwerke kann die hydraulische Wirkung der EDZ stark verringert werden.

Eine Demonstration der Selbstheilung in der EDZ ist für gering verfestigte Tone relativ gut möglich, für stark verfestigte Tone aber mit erheblich größerem experimentellem Aufwand verbunden, da sehr lange Versuchszeiten benötigt werden. Auch besteht durch die längere Lebensdauer der Klüfte die Gefahr einer Beeinträchtigung der Selbstheilungsfähigkeit durch geochemische Alteration des Tons entlang der Klüftflächen. Ist der Nachweis der Selbstheilungsfähigkeit problematisch, muss eventuell auf die in der Konstruktions- und Betriebsphase des Endlagers gemessenen Transmissivitäten der EDZ zurück gegriffen und die beobachteten Selbstheilungsphänomene als Sicherheitsreserve angesehen werden.

6.4.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt SELFRAC (URL HADES und Felslabor Mont Terri): Zielsetzung: Untersuchung von Selbstheilungsprozessen. Laufzeit: 1. 12. 2001 – 30. 11. 2004.

7 Folgen der chemischen Störung

7.1 Überblick

Die in ein Endlager anthropogen eingebrachten Materialien und die Bewetterungsluft stellen eine geochemische Störung des betroffenen Geosphärensystems dar. Die vielfältigen Degradations- und Korrosionsprozesse, die als Reaktion auf diese Störung eintreten, erzeugen Gase und führen zur Freisetzung der Radionuklide aus der Abfallmatrix. Degradations- und Korrosionsprozesse sind an die Verfügbarkeit von Wasser gebunden. Ihr Einsetzen wird daher durch den Aufsättigungsvorgang bestimmt.

Zementhaltige Stütz-, Versatz- und Abdichtungsbauwerke, sowie eisenhaltige technische Einrichtungen, Abfallcontainer und Abfälle können Lösungen generieren, die die Rückhaltefähigkeit des tonigen Wirtsgesteines und der Bentonit-Barriere beeinträchtigen. So wird die Stabilität von Smektiten, deren hohe Quellfähigkeit und Kationenaustausch-Kapazität für das Rückhaltevermögen von Tonen von hoher Bedeutung ist, durch hochalkalische (insbesondere K-haltige) und eisenhaltige Lösungen gefährdet. Ferner erhöhen hochalkalische Lösungen die Löslichkeit organischer Substanz, die eine Komplexierung von Radionukliden bewirkt.

Den im Grundwasser vorhandenen oder durch die Bergbautätigkeit eingebrachten Mikroorganismen kommt eine wichtige Bedeutung bei der geochemischen Entwicklung des Endlagersystems zu. Sie beschleunigen die Degradation der technischen Barriere und der Abfälle, tragen zur Gasbildung durch Zersetzung organischer Abfälle bei und können so die Zusammensetzung des Grundwassers verändern.

7.2 Illitisierung von Smektit durch hochalkalische Lösungen

7.2.1 Prozesse

Smektit wird durch hochalkalische Lösungen, die beim Kontakt des Grundwassers mit zementhaltigen Materialien generiert werden, illitisiert (Bildung von Illit-Smektit-Wechselagerungskristallen) und schließlich gelöst. Als Hauptprodukte entstehen

Zeolithe und Ca-Silikat-Hydrate (CSH-Phasen). Der Transformationsprozess kann je nach Lösungszusammensetzung ab pH 10 einsetzen (Mosser-Ruck et al. in /AND 02/, Beitrag O-1a-2). Eine Illitisierung wird durch eine hohe Kaliumkonzentration begünstigt.

Unter dem Einfluss hochalkalischer Lösungen (pH-Werte um 13 und 14) verändern sich die Mineralogie, Porosität, Sorptions- und Quelleigenschaft der Tone. In geklüfteten Tonen betrifft die Illitisierung die Klüftwände und hat somit Einfluss auf die Klüftpermeabilität, die Matrixdiffusion und die Sorptionseigenschaften der Klüftwände.

7.2.2 Befunde und Erfahrungen

Alterationsvorgänge im Ton-Zement-Kontakt

- In einem 18-monatigen in-situ-Experiment im URL HADES wurden die chemischen und mineralogischen Umwandlungen im Kontakt zwischen Ton und Portlandzement untersucht /REA 01/. In einer 0,2 – 0,5 mm breiten Zone, die sich zu gleichen Anteilen in den Ton und den Zement erstreckte, wurde ein Transfer von Ca, Mg, Al, Fe, Si und S beobachtet. Im Ton bildete sich ein Mg-Al-Si-reiches Band aus, in dem ein zweiphasiges Gel mit geringer Kristallinität und einer Zusammensetzung ähnlich Hydrotalkit und Sepiolit gebildet wurde.

Einfluss hochalkalischer Lösungen

- Reaktivität und Reaktionsprodukte hängen stark von der Zusammensetzung der hochalkalischen Lösung ab. Mosser-Ruck et al. (in /AND 02/, Beitrag O-1a-2) stellten für Bentonit eine zunehmende Reaktivität in der Reihenfolge

NaOH-Lösung (nur Kationenaustausch) →

KCl+NaOH-Lösung (Bildung von Wechsellagerungs-Tonmineralen) →

KOH-Lösung (Bildung von Illit-reichen Tonmineralen und Zeolithen) →

K₂CO₃-Lösung (hohe Smektit-Lösungsrate, intensive Zeolithbildung)

fest. Eine Illitisierung wird also durch eine hohe Kaliumkonzentration begünstigt. In den Langzeitexperimenten (700 Tage) von Herbert et al. (in /AND 02/, Beitrag O-1a-1) findet allerdings auch bei Kontakt mit NaCl-Lösung eine Illitisierung statt. Demnach ist Bentonit langfristig nicht nur im Kontakt mit Zementlösung, sondern auch im Kontakt mit Salzlauge instabil.

Verschiedene Faktoren können die Stabilität des Bentonits gegenüber hochalkalischen Lösungen erhöhen:

- Experimente mit CO_x-Tonen (Site de Bure) zeigten, dass die Stabilität von Tonmineralen durch organische Überzüge drastisch erhöht wird. Langfristig gehen in hochalkalischem Milieu jedoch auch Teile der organischen Überzüge in Lösung, besonders an den Basalflächen der Tonminerale (Schäfer et al. in /AND 02/, Beitrag O-2a-4; Bauer et al. in /AND 02/, Beitrag P-AA-12).
- Anwesenheit von Cl und Abwesenheit von K behindert die Zeolithbildung (Mosser-Ruck et al. in /AND 02/, Beitrag O-1a-2).

Permeabilitätserhöhung (Boom Clay)

- Die hydraulischen Auswirkungen der Alteration durch hochalkalische Lösungen können beträchtlich sein. Ein zweijähriger Perkolationsversuch mit Boom Clay im Rahmen des ECOCLAY II-Projektes zeigte eine Erhöhung der hydraulischen Leitfähigkeit um 85 % für Zementwässer mit pH 13.5 und um 15 % für Zementwässer mit pH 12.5 (Cannière et al. in /AND 02/, Beitrag P-AA-08). Erste numerische Simulationen des reaktiven Transportes ergaben jedoch, dass die Reichweite der Umwandlungszone mit ca. 1 m innerhalb von 100.000 Jahren gering ausfällt.

Pufferung und Bildung sekundärer Minerale (Opalinuston und natürliches Analogon Maqarin)

- Perkolationsversuche mit Opalinuston zeigten, dass eine bei 30 °C injizierte K-Na-Ca-OH-Lösung (pH=13,2) noch nach 14 Monaten auf einen pH-Wert von 9,6 gepuffert wurde. Die Pufferung erfolgte durch das Entfernen von Mg von den Austauschplätzen, durch Dolomit-Lösung und Ausfällung von Mg-Hydroxiden. Es konnte eine Verminderung der Permeabilität aufgrund einer Ausfällung von Calcit und illitischen Tonmineralen festgestellt werden. Reaktive Primärminerale waren Kaolinit, Quarz und Dolomit /NAG 02/.
- Am Standort des natürlichen Analogons Maqarin (hochalkalische Quellen in Jordanien /MIL 00/) fand an Kluftwänden eine Alteration von Tonmineralen aufgrund perkolierender hochalkalischer Lösungen statt. Durch Ausfällung von Ca-Si-Hydraten fand eine Pufferung des pH-Wertes auf 12,5 bis 12,8 über Strecken von mehreren 10 m bis 100 m statt. Die Klüfte wurden durch die Ausfällung der

sekundären Phasen verschlossen, da die Lösungsrate der Gesteinsmatrix geringer als die Ausfällungsrate war /MAZ 03/.

7.2.3 Stand der Wissenschaft

Wegen der geringen Reaktionsgeschwindigkeiten ist die Alteration von Tonen durch hochalkalische Fluide experimentell nicht gut erfassbar. Die numerische Modellierung der Prozesse ist derzeit wegen der Vielzahl der beteiligten Festphasen und der oft unbekanntem Reaktionskinetik und thermodynamischen Konstanten mit großen Unsicherheiten behaftet.

7.2.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Von Interesse für den Sicherheitsnachweis sind die Ausdehnung der durch hochalkalische Fluide veränderten Zone sowie der Einfluss der sekundären Mineralbildungen auf die Sorptionseigenschaft, Permeabilität und Diffusivität des Wirtsgesteins und der Bentonitbarriere.

Die Wirkung hochalkalischer Lösungen auf die Barriereigenschaften von Bentonit und Wirtsgestein lässt sich derzeit nicht befriedigend durch numerische Modelle vorhersagen. Deshalb bieten natürliche Analoga wichtige Informationen über die langfristige Entwicklung des Alterationsprozesses und seine Auswirkung auf die Gebirgspermeabilität.

Eine Alteration durch hochalkalische Fluide kann implizit durch modifizierte Retardationseigenschaften der Gesteinsmatrix oder der Klüfte berücksichtigt werden; ebenso kann das Volumen der betroffenen Wirtsgesteinszone abgeschätzt und die sicherheitswirksame Mächtigkeit der Tonschicht bei Transportrechnungen entsprechend reduziert werden /MAZ 03/. Letzteres ist generell schwierig, wenn ein Transport auf Klüften stattfindet und nicht die gesamte Gesteinsmatrix von der Alteration betroffen ist.

7.2.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt ECOCLAY II: Zielsetzung: Untersuchung der Wirkung hyperalkalischer Fluide aus der Zement-Degradation auf die Rückhalteeigenschaften von Tonbarrieren. Laufzeit: 1. 10. 2000 – 30. 9. 2003.

7.3 Einfluss eisenhaltiger Lösungen auf die Smektit-Stabilität

7.3.1 Prozesse

Das bei der Korrosion von Stahlbehältern frei werdende Eisen kann unter erhöhten Temperaturen zu mineralogischen Veränderungen des Tones führen. Die Umwandlungsprozesse hängen stark von der Verfügbarkeit von Eisen in Form von Eisenoxiden oder metallischem Eisen ab. In der Nähe der Container, wo Temperatur und Eisen-gehalt am höchsten sind, kommt es zur Umwandlung von Smektit zu Chlorit und Saponit /AND 02/ (Beiträge O-10b-2 und O-10b-5). Die Saponit-Bildung ist bezüglich des Rückhaltevermögens des Tones positiv zu bewerten (Saponit ist ein trioktaedrischer Smektit), die Chloritbildung negativ. Die Umwandlung von Smektit zu Chlorit erfordert hohe Temperaturen.

7.3.2 Befunde und Erfahrungen

Saponit- und Chloritbildung bei hohen Temperaturen

- Die Umwandlung von Smektit zu Chlorit und Saponit wurde durch experimentelle Langzeituntersuchungen bei 300 °C (Guillaume et al. in /AND 02/, Beitrag O-10b-2) als auch durch geochemische Modellrechnungen für 180 °C (Kluska in /AND 02/, Beitrag O-10b-5) bestätigt.
- Chloritbildung bei hohen Temperaturen und Eisen-Verfügbarkeit wurde ebenfalls am natürlichen Analogon Morrón de Mateo des *ENRESA natural analogue programme* nachgewiesen (Villar et al. in /AND 02/, Beitrag P-AA-32).

Fehlende Saponitbildung bei niedrigen Temperaturen

- In einem vierjährigen Versuch bei niedrigen Temperaturen (80 °C), aeroben Bedingungen und in Kontakt mit Meerwasser und Carbonstahl zeigten die Smektite

lediglich eine Aufnahme von Fe^{2+} in die Zwischenschichten (Shibata et al. in /AND 02/, Beitrag O-10b-4). Die Quelleigenschaften blieben erhalten.

7.3.3 Stand der Wissenschaft

Die oben genannten Experimente deuten an, dass bei Temperaturen unter 80 °C die Stabilität von Smektit im mehrjährigen Kontakt mit eisenhaltigen Lösungen recht hoch ist (/AND 02/, Beiträge O-10b-2 und O-10b-4). Es ist jedoch relativ wenig über die längerfristige Kinetik der Umwandlungsprozesse bekannt. Miller et al. /MIL 00/ weisen darauf hin, dass eventuell natürliche oder anthropogene Analogie für diesen Prozess gefunden werden können, wie etwa Erzkörper mit Tonkontakt oder anthropogene Metallgegenstände in Tonen mit reduzierenden, neutralen bis alkalischen Grundwässern.

7.3.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Es zeichnet sich ab, dass bei Temperaturen unter 80° C keine signifikante Alteration von Smektiten durch eisenhaltige Lösungen stattfindet. Wegen der Unsicherheit bezüglich der geringen Umwandlungskinetik bei diesen Temperaturen ist das Auffinden natürlicher Analogie für diesen Prozess wünschenswert.

7.3.5 Auswahl relevanter Projekte

Es liegen keine Informationen über relevante Projekte vor.

7.4 Alteration von Eisen- und Magnesiumoxiden

7.4.1 Prozesse

Eisen- und Magnesiumoxide besitzen in neutralem bis saurem Milieu eine positive Oberflächenladung und sind damit zur Sorption anionischer Radionuklid-Spezies befähigt.

7.4.2 Befunde und Erfahrungen

Houben (in /AND 02/, Beitrag P-AA-31) weist darauf hin, dass die zeitabhängige Umwandlung niedrigkristalliner Oxide (z. B. Mn- und Fe-Oxihydrate) in hochkristalline Oxide (Goethit, Hämatit) die Sorption erheblich verringert.

7.4.3 Stand der Wissenschaft

Über die Kinetik der Umwandlungsprozesse ist bislang wenig bekannt.

7.4.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Wegen der bisherigen Unkenntnis der Umwandlungskinetik ist eine Vernachlässigung der Retardation anionischer Radionuklidspezies durch Eisen- und Magnesiumoxide i.d.R. eine konservative Annahme.

7.4.5 Auswahl relevanter Projekte

Es liegen keine Informationen über relevante Projekte vor.

7.5 Mikrobiologische Aktivität

7.5.1 Prozesse

Mikroorganismen in einem Endlagersystem können Bestandteil des Grundwassers sein oder beim Bau des Endlagers eingebracht werden. Ein Eintrag kann über die Bewetterungsluft, über eingebrachte Materialien und Geräte und über den Menschen geschehen. Ferner können Mikroorganismen durch organische Abfälle in das Endlager gelangen.

Mikroorganismen beeinflussen das Endlagersystem auf mehrere Weisen. Sie beschleunigen die Degradation der technischen Barriere und der Abfälle, tragen zur Gasbildung durch Zersetzung organischer Abfälle bei und können die chemische Zusammensetzung des Grundwassers erheblich verändern (insbesondere den CO₂-

Gehalt). Mikroorganismen können als Kolloide Radionuklide binden und transportieren. Damit hat die mikrobiologische Aktivität sowohl Einfluss auf den Zeitpunkt der Radionuklidfreisetzung als auch auf die Löslichkeit, die Sorption und den Transport von Radionukliden.

Nach der Schließung des Endlagers wird der verbliebene Sauerstoff verbraucht und CO₂ gebildet bis schließlich anaerobe Bedingungen eintreten. Die mikrobielle Gasbildung unter anaeroben Bedingungen umfasst die Reduktion von Nitrat zu Stickstoff (beispielsweise bei einer Nitrat-haltigen Bitumenmatrix der Abfälle) und die Reduktion von Sulfat zu H₂S. Durch die Zersetzung organischer Stoffe werden Methan und CO₂ gebildet. CO₂ beschleunigt die Degradation von Zement (Umwandlung von Portlandit zu Calcit) und H₂S die Korrosion von Metallen (Ausfällung von Sulfiden) /NIR 01/.

Nährstoffangebot und Energieverfügbarkeit können begrenzt sein und die Vermehrung von Mikroorganismen behindern. Die Hauptnährstoffe sind Kohlenstoff, Stickstoff, Schwefel und Phosphor. Als Energielieferanten kommen u.A. Wasserstoff aus der Korrosion von Metallen und Methan aus der Aufspaltung organischer Abfälle in Frage. Hieraus ergibt sich, dass sowohl Nährstoffangebot als auch Energieverfügbarkeit bei niedrig- und mittelaktiven Abfällen sehr viel höher ausfallen als bei hochaktiven Abfällen /MIL 00/.

In Tonen sind die Lebensbedingungen für Mikroorganismen ungünstiger als in gröberporigen Medien /MAZ 03/. Ein großer Teil des Porenwassers ist im Ton adhäsiv gebunden und für Mikroorganismen nicht zugänglich. Die geringen Porenradien behindern die Mobilität und Vermehrung, da Mikroorganismen Durchmesser von über 0,1 µm haben /MAZ 03/

7.5.2 Befunde und Erfahrungen

Gesteinsspezifische Befunde

- Im Boom Clay wurden Sulfat- und Thiosulfat-reduzierende Bakterien gefunden /NIR 01/. Bevorzugt findet die Reduktion von Thiosulfat statt, da sie thermodynamisch günstiger ist. Reaktionsprodukt ist lediglich Sulfat in gelöster oder ausgefällter Form. Zu einem späteren Stadium findet die mikrobielle Bildung von Methan unter Verbrauch von Wasserstoff und Kohlenstoff statt.

- Im Boda-Ton wurden aerobe und anaerobe Mikroorganismen identifiziert, darunter Sulfat-reduzierende Bakterien /MAZ 03/.
- In den hochalkalischen Grundwässern von Oman wurden Sulfat-reduzierende Bakterien gefunden, von denen bekannt ist, dass sie hohe Drücke, Temperaturen und Strahlendosen aushalten /MIL 00/. Die Bakterienkulturen konnten noch bei pH 10.2 kultiviert werden.

7.5.3 Stand der Wissenschaft

Wegen der geringen Porenradien von Tonen ist von einer begrenzten Mobilität und biologischen Aktivität der Mikroorganismen auszugehen. Viele Einzelheiten mikrobieller Prozesse sind unbekannt. Aufgrund der Möglichkeit der Entstehung neuer Spezies und des anthropogenen Eintrages von Mikroben ist unsicher, welche Populationen zu erwarten sind und welche Nährstoffe diese Populationen benötigen werden. Vor dem Hintergrund der geringen Mikrobenmobilität in Tonen ist unklar, wie sich die Mikrobiologie eines Endlagers verändert, wenn sich die hydrochemischen Bedingungen ändern.

7.5.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die mikrobielle Aktivität hat bedeutenden Einfluss auf die Degradation organischer Abfälle, auf die Korrosion von Behältern und auf die Hydrochemie. Anhand der verfügbaren Nährstoffe und Energiequellen können maximale Populationsgrößen errechnet werden /MIL 00/. Es ist zu prüfen, ob die Porenradienverteilung im Wirtsgestein die Mobilität der Mikroorganismen behindert und wie sehr die Adsorption des Porenwassers an die Mineraloberflächen die Menge des für Stoffwechselprozesse verfügbaren Wasser einschränkt. In der Regel dürften Mikroorganismen in Ton immobil sein und damit nicht zum kolloidgebundenen Transport von Radionukliden beitragen. Die Wirkung der mikrobiellen Aktivität geht indirekt in die Sicherheitsanalyse in Form der Arten und Raten der generierten Gase, der erwarteten geochemischen Entwicklung (Redoxverhältnisse, CO₂-Konzentrationen) und der Isolationsdauer der Abfallbehälter ein. Wegen der schlechten Prognostizierbarkeit mikrobieller Aktivität ist dies mit entsprechenden Unsicherheiten verbunden.

7.5.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt ARCHIMEDES (URL HADES). Zielsetzung: Extraktion von Porenwasser aus dem Boom Clay. U.a. mikrobiologische Analysen. Laufzeit: 1991 – 1995.
- Im Zeitraum 2003-2004 sind im Felslabor Mont Terri mikrobiologische Untersuchungen geplant /MAZ 03/.

8 Folgen der Gasgenerierung

8.1 Überblick

Gase können in einem Endlager sowohl unter aeroben als auch unter anaeroben Bedingungen gebildet werden. Solange im Endlager nach der Schließung noch Sauerstoff verblieben ist, entstehen Gase durch die aerobe Korrosion von Metallen und die aerobe mikrobielle Degradation von organischer Substanz (unter Bildung von CO_2 , Methan und H_2). Nach dem Verbrauch des Sauerstoffes beginnen die anaerobe Korrosion von Metallen und die anaerobe mikrobielle Degradation organischer Substanzen, die zur Bildung von Methan und CO_2 führen. Unter anaeroben Bedingungen findet weiterhin eine mikrobielle Gasbildung durch Reduktion von Nitrat zu Stickstoff (z.B. aufgrund einer Nitrat-haltigen Bitumenmatrix der Abfälle) und durch Reduktion von Sulfat zu H_2S statt. Geringe Gasmengen entstehen durch Radiolyse von Wasser in der unmittelbaren Umgebung hochaktiver Abfälle und durch thermische Degradation organischer Substanz bei Einlagerung wärmeentwickelnder Abfälle. Welche Prozesse für den Hauptteil der generierten Gase verantwortlich sind, hängt i.W. von der Art der Abfälle ab. Niedrig bis mittelaktive Abfälle produzieren wegen ihres hohen Gehaltes an organischen Substanzen große Mengen an CO_2 und Methan. Die Gasbildung bei hochaktiven Abfällen ist bedeutend niedriger und wird i.W. durch die Korrosion metallischer Abfallbehälter und Abfallbestandteile verursacht. Das hauptsächlich gebildete Gas ist hier H_2 .

Durch die Verringerung gasgefüllter Porenräume infolge der Konsolidierung und durch die Bildung neuer Gase erhöht sich der Gasdruck im Endlager. Eine Regulation des Gasdruckes findet durch einen druckinduzierten Abtransport der Gase statt, sei es in gelöster Form oder in Form einer freien Gasphase. Problematische Aspekte beim Gastransport sind die Möglichkeit eines durch erhöhte Gasdrücke ausgelösten Fluidtransports, der gelöste Radionuklide bewegen kann, und der Transport der volatilen radioaktiven ^{14}C -Spezies. Ferner kann die Integrität der technischen und geologischen Barriere gefährdet werden, wenn sich aufgrund hoher Gasdrücke neue Porenräume bilden. Bei günstigen Eigenschaften des Tons und der Abdichtungsbauwerke können solche neu geschaffenen Gastransportpfade jedoch wieder verheilen.

8.2 Migration von gelöstem Gas

8.2.1 Prozesse

Der Transport von Gasen in der Fluidphase geschieht sowohl advektiv als auch diffusiv. Die Gaskonzentration im Fluid ist abhängig vom Gasdruck, der Temperatur und der Art des Gases. Sie wird bei hinreichend geringer Gaskonzentration durch das Henrysche Gesetz beschrieben. Kontrollierende Faktoren für den Transport von gelöstem Gas sind somit die Löslichkeit und Diffusivität des Gases sowie die advektiven Flusssichten.

8.2.2 Befunde

- Zur Analyse der Gasdruckentwicklung in einem Lagerstollen wurden im Rahmen des schweizerischen Entsorgungsprogramms für den Opalinuston numerische Modellrechnungen mit dem Zweiphasen-Transportmodell TOUGH2 durchgeführt /NAG 02/. Die Ergebnisse zeigen, dass bei Einlagerungsbereichen für hochaktive Abfälle, bei denen das Verfüllmaterial kein ausreichendes Gasspeichervolumen zur Verfügung stellt, der Gasdruck soweit ansteigt, dass es zu einem viskokapillaren Zweiphasenfluss kommt. Gaslösung und diffusiver Abtransport des Gases reichen demnach nicht aus, um einen Zweiphasenfluss zu verhindern.

8.2.3 Stand der Wissenschaft

Die Gaslösung in der Fluidphase ist gut verstanden und beschreibbar. Eventuelle Probleme bei der Beschreibung des Transportes von gelöstem Gas rühren von Unsicherheiten bezüglich des advektiven Fluidtransports. Problematisch können z.B. eine Heterogenität oder Skalenabhängigkeit der hydraulischen Eigenschaften des Tones oder eine mögliche Nichtlinearität der Strömungsgleichung (z. B. aufgrund der Existenz von Schwellendrücken für den advektiven Fluss) sein.

8.2.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Der Transport von Gas in der fluiden Phase wirkt dem Aufbau des Gasdruckes entgegen und ist, da er die Integrität des Wirtsgesteines nicht schädigt, ein

erwünschter Mechanismus. In den meisten Fällen dürfte daher eine Vernachlässigung dieses Gastransportwegs konservativ sein. Eine Beschreibung des nichtreaktiven Transportes von gelöstem Gas ist relativ unproblematisch und kann durch alle gängigen numerischen Modelle für den Zweiphasen-Transport geschehen. Dabei ist zu bedenken, dass chemische Wechselwirkungen mit anderen gelösten Komponenten oder der Festphase den Transport des gelösten Gases beeinflussen können.

8.2.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt PEGASE (A Community project on the effects of gas in underground storage facilities for radioactive waste): Zielsetzung: U.a. Untersuchung der Gasentwicklung und des Gastransportes unter Endlagerbedingungen in Ton (Bentonit, Boom Clay) sowie Injektionsexperimente im URL HADES. Laufzeit: 1. 8. 1991 – 31. 12. 1994.
- EC-Projekt MEGAS (Modelling and experiments on gas migration in repository host rocks): Zielsetzung: Untersuchung der Wirkung der Gasentwicklung in tonigem Wirtsgestein. Validierung eines Gasmigrationsmodells anhand eines in-situ-Gasinjektions-Experimentes. Laufzeit: 1. 3. 1991 – 31. 5. 1995. Referenz: EUR 17453 EN (1997).
- EC-Projekt CERBERUS (URL HADES): Zielsetzung: Großskaliges Experiment zur Simulation des Wärmetransportes aus einem COGEMA-Kanister nach 50-jähriger Abkühlung. Untersucht werden Korrosion, Migration, Radiolyse und Materialverhalten. Laufzeit: 1. 1. 1996 – 31. 12. 1998.
- EC-Projekt PROGRESS (Research into gas generation and migration in radioactive waste repository systems): Zielsetzung: Experimentelle Untersuchung der Gasgenerierung von Abfällen, Untersuchung von Gasmigrationsmechanismen (geklüftete Festgesteine, Salz und Ton), Untersuchung der Gasmigration in geologischen Systemen. Laufzeit: 1. 5. 1996 – 30. 4. 1999.
- EC-Projekt GASNET (A thematic network on gas issues in safety assessment of deep repositories for nuclear waste): Zielsetzung: Zusammenfassung und Bewertung der derzeitigen Behandlung der Gasproblematik in Sicherheitsanalysen und Entwicklung von Leitlinien für zukünftige Sicherheitsanalysen. Laufzeit: 1. 9. 2001 – 29. 4. 2004.

8.3 Migration einer Gasphase

8.3.1 Prozesse

Ist die Gasproduktionsrate höher als der advective und diffusive Abstrom von gelöstem Gas, so bildet sich im Laufe der Zeit eine Gasphase. Bei Abwesenheit großer Porenräume im Ton erfordert das Eindringen einer Gasphase die Überwindung der kohäsiven Kräfte zwischen den Mineralen. Der Transport einer Gasphase geht im Ton daher i.d.R. mit einer Deformation der Gesteinsmatrix und einer Vergrößerung der Porosität (Dilatanz) und Gaspermeabilität einher. Damit Gas in die engen Porenräume eines Tones eindringen bzw. die kohäsiven Kräfte zwischen den Mineralen überwinden kann, muss ein Mindestdruck aufgebracht werden, der sich aus der Summe des Porenwasserdrucks und des sog. Gaseintrittsdrucks ergibt. Der Gaseintritt hängt empfindlich von den Porengrößen und den herrschenden Saugspannungen ab.

Die Mechanismen des Gastransportes sind in gering und stark verfestigten Tonen unterschiedlich. In gering verfestigten Tonen ist die Schaffung dilatanter Gas-migrationswege i.d.R. ein visko-plastischer Deformationsprozess, wohingegen es in stark verfestigten Tonen bei steigenden Gasdrücken zunächst zur elastischen Weitung vorhandener Porenräume, dann zum Wachstum von Mikrorissen und schließlich zur makroskopischen Bruchbildung kommt. Der Charakter der Bruchbildung in stark verfestigten Tonen hängt stark von der Gasproduktionsrate ab. Bei geringer Gasproduktion kann die Dilatanz von Mikrorissen unter Umständen ausreichen, um die produzierten Gase abzuführen, den Anstieg des Gasdruckes zu begrenzen und so eine makroskopische Bruchbildung zu vermeiden.

Gasmigrationswege können durch verschiedene Mechanismen wieder verschlossen werden (Selbstheilung). In plastischen Tonen wird ein Kollabieren der Gasmigrationswege beobachtet, da die neu entstandenen Porenräume energetisch günstigere Geometrien anstreben und sich in kleinere, isolierte Einheiten unterteilen. Durch das Kollabieren der Migrationswege kann es zu einem intermittierenden Gasfluss kommen. Auch in stärker verfestigten Tonen ist eine Selbstheilung möglich, insbesondere, wenn noch keine makroskopische Bruchbildung stattgefunden hat und die Dilatanz überwiegend elastischer Natur ist.

Der Transport einer Gasphase verläuft i.d.R. heterogen. Eine mögliche Ursache für eine Heterogenität des Fließfeldes ist die Kopplung der Gasmigration mit Rissbildungsprozessen, insbesondere in überkonsolidierten Tonen. Mechanische Schwächezonen wie Schichtflächen, Schieferungsflächen, verheilte Klufflächen und besonders auch Grenzflächen zwischen Verfüllmaterial und Wirtsgestein sind daher in der Lage, den Gastransport zu lenken. Auch Zonen erhöhter Porosität lenken den Gasphasentransport, weil große Porenräume niedrige Gaseintrittsdrücke besitzen. Erhöhte Porositäten können beispielsweise durch Klüfte, textuelle Anisotropien des Tones oder Lücken entlang von Verfüllmaterialien bereitgestellt werden. In diesem Zusammenhang ist insbesondere die Auflockerungszone (Klüfte der EDZ) von Bedeutung. Ein heterogener Gastransport kann auch durch ein Auffingern der Gasfront entstehen, wenn diese Front aufgrund der höheren Viskosität des verdrängten Wassers instabil wird (entsprechend dem „viscous fingering“ in nicht deformierbaren Medien) /EUR 99/.

8.3.2 Befunde

Stark verfestigter Ton (Opalinuston /NAG 02/)

- Bei mehrwöchigen Gas-Injektions-Tests im Felslabor Mont Terri wurde eine Dilatanz des Gesteins festgestellt, sobald der Injektionsdruck 2 MPa überstieg. Gleichzeitig fand eine Erhöhung der Permeabilität statt. Die Dilatation des Opalinustones kann durch die Entstehung und Weitung von Mikrorissen erklärt werden. Die Dilatanz fand ca. 2 MPa unterhalb des sog. *shut-in*-Drucks statt (Druck, an dem die makroskopische Rissbildung stoppt; entspricht etwa der minimalen Hauptspannung), so dass makroskopische Rissbildung als Ursache ausgeschlossen werden kann. Tests ermittelten keinen Unterschied der hydraulischen Permeabilität vor und nach der Gas-Injektion, was für Fehlen unverheilte makroskopischer Brüche spricht.
- Es wurde eine ausgeprägte Korrelation zwischen der intrinsischen Permeabilität und dem Gaseintrittsdruck festgestellt (Potenzfunktion).
- Gaspermeabilitätstests an Kernproben zeigten aufgrund der Schichtung eine deutliche Richtungsabhängigkeit.
- Es wird davon ausgegangen, dass zunächst ein Gastransport entlang der Schichtflächen stattfindet, bis die Oberfläche der Gasphase sich so weit vergrößert hat,

dass der diffusive Transport von Gas in der Fluidphase zu einem effektiven Transportmechanismus wird.

Gering verfestigter Ton (Boom Clay)

- Gasinjektionstests im URL HADES im Rahmen des MEGAS-Projektes zeigten eine bevorzugte Gasmigration entlang von Schwächezonen, in diesem Falle entlang der Verrohrung (Volckaert et al. 1995, zit. in /NAG 02/).
- In-situ- und Laborversuche wiesen nach, dass der Transport der Gasphase im Boom Clay stets von einer spannungsinduzierten Porositätserhöhung begleitet wird /MAZ 03/. Das Kollabieren der geschaffenen Gasmigrationspfade führt zu einem pulsierenden Gasfluss (Ortiz et al., 1997, zit. in /MAZ 03/). Gleichzeitig ist die Entsättigung gering, was auf eine starke Lokalisation der durch die Gasmigration hervorgerufenen Dilatanz schließen lässt.
- Verschiedene Labortests wiesen einen exponentiellen Anstieg der Gasinjektionsrate mit dem Druck nach (Volckaert et al., 1995, Ortiz et al., 1997, Rodwell et al., 1999, Rodwell, 2000, zit. in /MAZ 03/). Der bei gesättigten Proben erforderliche Gaseintrittsdruck war invers-proportional zur dritten Wurzel der hydraulischen Durchlässigkeit (Potenzfunktion). Residuales Gas im Ton erniedrigte den Gaseintrittsdruck.

Konzeptuelle Modelle

Verschiedene konzeptuelle Modelle sind für den Gastransport in Tonen entwickelt worden, von denen die meisten auf gering verfestigte Tone und Ton-Gele angewendet wurden. Es lassen sich in Anlehnung an /EUR 99/ verschiedene Klassen von konzeptuellen Modellen unterscheiden:

- **Modelle zur zwei-Phasen-Strömung in porösen Medien** (two-phase porous-medium flow models): Es handelt sich um Kontinuumsmodelle, die auf der klassischen Zweiphasen-Strömung für poröse Medien oder Modifikationen derselben basieren. Der Einfluss des Gasdrucks auf die Gesteinseigenschaften ist generell gering, so dass mechanische Prozesse nur eingeschränkt berücksichtigt werden können. Übliche Erweiterungen sind eine Druckabhängigkeit der Porosität und der Gaspermeabilität. Beispiele:

- **TOPAZ**: Modell zur eindimensionalen Zweiphasen-Strömung in porösen Medien. Angewendet auf Boom Clay mit der Modifikation einer linearen Abhängigkeit der Permeabilität und Porosität vom Gasdruck /EUR 99/.
- **ECLIPSE, PORES, TechSIM**: Zwei-Phasen Transportmodelle, ursprünglich bei der Erdölexploration verwendet /EUR 99/.
- **TOUGH2**: Modell für den gekoppelten Zweiphasen-Transport in porösen Medien, das jedoch keine deformativen Prozesse berücksichtigt.
- **CODE_BRIGHT** (Olivella et al., 1994, 1997, zit. in /EUR 00/): Zweiphasen-Transport von Gas, Fluid, Wärme und Lauge in deformierbare Matrix. Ursprünglich konzipiert für Salzversatz. U.a. angewendet auf Boom Clay.
- **Kluftströmungs-Modelle** (fracture flow models): Modellierung diskreter Klüfte mit oder ohne Berücksichtigung von Flüssen in der Matrix oder von Kluft-Matrix-Wechselwirkungen.
 - „**Dual porosity**“-Modelle: Strömung in diskreten Klüften. Es ist ein Austausch zwischen Kluft und Matrix möglich. Jedes Gitterelement besitzt eine Matrix- und eine Kluftporosität. Vertreter dieses Modelltyps sind das „dual permeability model“ und das „multiple interacting continuum model“ /EUR 99/.
- **Kapillarbündel-Modelle** (Capillary-bundle models): Der Gastransport beruht auf einer Verdrängung von Wasser aus vorhandenen Kapillaren. Es kann sich um parallele Kapillaren handeln oder um Netzwerke von Kapillaren, deren Längen, Radii und Ausrichtung fest oder variabel sein können. Die Kapillaren können dilatant sein. Es kann sich um Kontinuumsmodelle oder – bei stochastischer Generierung von Kapillarnetzwerken – um diskontinuierliche Modelle handeln. Beispiele:
 - **GARNET**: 2D-Netzwerk von Kapillaren mit fester Länge und horizontaler oder vertikaler Orientierung /EUR 98/. Entwickelt für klüftiges Gestein.
 - **Multiple Front Propagation Model** (MFPM) /EUR 00/: Gasmigration in elastisch dilatierenden Kapillaren, deren Orientierung, Radius und Länge stochastisch generiert werden. Anwendung auf kompaktierten Bentonit und Boom Clay /EUR 99, EUR 00/.
- **Bruchfortpflanzungs-Modelle** (fracture propagation models): Gasmigrationswege sind hier nicht vorhanden, sondern werden erst durch den Gasdruck aufgrund

einer Bruchfortpflanzung oder einer Deformation der Matrix geschaffen (für den letzteren Fall ist die Bezeichnung „Bruchfortpflanzungs-Modell“ streng genommen nicht adäquat). Die Gaspermeabilität kann unabhängig von der hydraulischen Permeabilität sein. Beispiel:

- **Single capillary model** /EUR 98/: Analytisches Modell zur Gasmigration in einem deformierbaren Ton durch eine einzelne Kapillare. Angewendet auf Boom Clay (Analytisches Modell von Einchcomp & Impey, 1996, zit. in /EUR 98/, modifiziert für Boom Clay /EUR 98/).

8.3.3 Stand der Wissenschaft

- Die meisten numerischen Modelle zur Simulation des Gastransportes beziehen sich auf gering verfestigte Tone und Ton-Gele und zeigen oft eine befriedigende Übereinstimmung mit experimentellen Befunden. Bezüglich stark verfestigter Tone sind die derzeit verfügbaren konzeptuellen Modelle noch unzureichend. Dies ist einerseits eine Folge des spröden Verhaltens und der damit verbundenen Prozesskomplexität. Andererseits ist die lithologische und damit mechanische und strukturelle Variabilität in dieser Gesteinsklasse sehr hoch, so dass konzeptuelle Modelle sehr gesteinspezifisch ausfallen müssen. Mangels physikalisch adäquater konzeptueller Modelle werden für den Gastransport in stark verfestigten Tonen oft Modelle für die Zweiphasen-Strömung in porösen Medien herangezogen, wobei z.T. Modifikationen bezüglich einer Druckabhängigkeit der Porosität und Gaspermeabilität (inkl. Gaseintrittsdrücke) vorgenommen werden /EUR 99/. Es ist zu erwarten, dass sich der Gasphasen-Transport in verfestigten Tonen mit diesem Modellansatz nicht in allen Aspekten adäquat beschreiben lässt. Zu prüfen ist, ob konzeptuelle Modelle für gering verfestigte Tone – insbesondere Kapillarmodelle – in modifizierter Form auch für stark verfestigte Tone genutzt werden können. Die Entwicklung adäquater konzeptueller Modelle für stark verfestigte Tone erfordert eine Verbesserung der derzeit noch schwachen experimentellen Datengrundlage. Insbesondere besteht Bedarf an großskaligen Laborexperimenten und in-situ-Tests /NEA 01b/.
- Die Tendenz zur Ausbildung lokalisierter Gasmigrationspfade erhöht die Wahrscheinlichkeit einer Skalenabhängigkeit der Gaspermeabilität. Ursächlich hierfür können einerseits eine Skalenabhängigkeit mechanischer Diskontinuitäten und andererseits eine komplexe Struktur der Gasmigrationswege sein. Inwieweit

experimentelle Ergebnisse auf größere Skalen übertragen werden dürfen, bedarf daher weiterer Untersuchungen.

8.3.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Da Materialien mit geringem Gaseintrittsdruck den Gastransport lenken, ist eine bevorzugte Gasausbreitung entlang der EDZ und entlang von Schichtflächen und Materialgrenzen wahrscheinlich. Zur Identifikation möglicher Gasmigrationspfade ist daher eine Analyse der Gaseintrittsdrücke erforderlich. Insbesondere sind die Gaseintrittsdrücke und Gaspermeabilitäten der EDZ und der Materialgrenzen im Bereich der Abdichtungsbauwerke zu betrachten.

Konzeptuelle und numerische Modelle für den Gastransport bedürfen der Weiterentwicklung, vor allem für verfestigte Tone. Für eine integrierte Modellierung des Gastransports im Endlagersystem sind wegen der geringeren Rechenzeit generell Kontinuumsansätze zu bevorzugen /NEA 01b/. Modelle, die diskrete Migrationspfade beschreiben, erhöhen das grundlegende Prozessverständnis und können der Herleitung von Kontinuumsansätzen dienen.

Der Nachweis der Barrierenintegrität hinsichtlich der Gasmigration folgt für stark- und schwach verfestigte Tone zwei unterschiedlichen Argumentationslinien, was am Beispiel des Opalinustones /NAG 02, NAG 02c/ und des Boom Clays /NIR 01/ aufgezeigt werden kann: Im Opalinuston wird von einem Gastransport in dilatanten Mikroporen ausgegangen, ohne dass es zur Ausbildung makroskopischer Brüche kommt. Ursächlich hierfür ist die erwartete geringe Gasproduktionsrate, bei welcher der Gasdruck bereits durch weitgehend reversible Weitung von Mikroporen begrenzt werden kann. Es wird ferner angenommen, dass die schichtungsbedingte mechanische Anisotropie die Ausbreitung der Gasphase in horizontale Richtung lenkt (siehe z.B. Gas Modell in /NAG 02c/). Hierdurch vergrößert sich die Oberfläche der Gasphase, über die Gas in Lösung gehen kann, um anschließend diffusiv abtransportiert zu werden. Es ist zu erwarten, dass diese horizontale Ausbreitung auch dann stattfindet, wenn ein makroskopisches Risswachstum stattfindet. Eine andere Argumentation wird beim plastischen Boom Clay angewandt. Hier hinterlässt der Gastransport keine erhöhten hydraulischen Durchlässigkeiten, weil Gasmigrationspfade kollabieren und unzusammenhängend werden. Maßgeblich für die Barrierenintegrität ist in diesem Fall die gut nachweisbare, hohe Selbstheilungsfähigkeit des Tons. Es lässt sich

festhalten, dass der Nachweis, dass durch erhöhte Gasdrücke keine dauerhaften makroskopischen Fließwege entstehen, für gering verfestigte Tone leichter zu führen ist als für stark verfestigte Tone, weil sich eine Selbstheilung makroskopischer Porenräume leichter zeigen lässt als eine Begrenzung des Gasdruckes unterhalb des kritischen Niveaus für die makroskopische Bruchbildung. Letzteres ist vor Allem wegen der Unsicherheiten bezüglich der Gasproduktionsrate und der numerischen Simulation des Gastransportes problematisch. Trotzdem ist es möglich, dass die meisten tonigen Wirtsgesteine, ob verfestigt oder unverfestigt, robust gegenüber gasinduzierten Störungen sind. Bei gering verfestigten Tonen gründet die Robustheit auf der großen Selbstheilungsfähigkeit. Bei stark verfestigten Tonen könnte sie durch eine schichtungsbedingte mechanische Anisotropie gewährleistet werden, die ein Risswachstum im Wesentlichen in die Schichtebene lenkt, also in eine Richtung, in der die Ausdehnung einer ungestörten Tonablagerung meist nahezu unbegrenzt ist.

8.3.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt PEGASE (A Community project on the effects of gas in underground storage facilities for radioactive waste): Zielsetzung: U.a. Untersuchung der Gasentwicklung und des Gastransportes unter Endlagerbedingungen in Ton (Bentonit, Boom Clay) sowie Injektionsexperimente im URL HADES. Laufzeit: 1. 8. 1991 – 31. 12. 1994.
- EC-Projekt MEGAS (Modelling and experiments on gas migration in repository host rocks): Zielsetzung: Untersuchung der Wirkung der Gasentwicklung in tonigem Wirtsgestein. Validierung eines Gasmigrationsmodells anhand eines in-situ-Gasinjektions-Experimentes. Laufzeit: 1. 3. 1991 – 31. 5. 1995.
- EC-Projekt PROGRESS (Research into gas generation and migration in radioactive waste repository systems): Zielsetzung: Experimentelle Untersuchung der Gasgenerierung von Abfällen, Untersuchung von Gasmigrationsmechanismen (geklüftete Festgesteine, Salz und Ton), Untersuchung der Gasmigration in geologischen Systemen. Laufzeit: 1. 5. 1996 – 30. 4. 1999.
- Verschiedene Gastests im Opalinuston im Rahmen des Projekts Entsorgungsnachweis der NAGRA /NAG 02/.
- EC-Projekt GASNET (A thematic network on gas issues in safety assessment of deep repositories for nuclear waste): Zielsetzung: Zusammenfassung und

Bewertung der derzeitigen Behandlung der Gasproblematik in Sicherheitsanalysen und Entwicklung von Leitlinien für zukünftige Sicherheitsanalysen. Laufzeit: 1. 9. 2001 – 29. 4. 2004.

- EC-Projekt RESEAL II (URL HADES): Zielsetzung: Untersuchung der Gas- und Wasserdichtigkeit von Schachtverschlüssen und Modellierung der Fluid- und Gastransportprozesse in den Verschlüssen und im Nahfeld. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 31. 3. 2005.

9 Folgen der Radionuklidfreisetzung

9.1 Überblick

Auf die Korrosion der Abfallbehälter folgt die Lösung von Radionukliden aus der Abfallmatrix. Freigesetzte Radionuklide migrieren durch die technische Barriere ins tonige Wirtsgestein. Dieses besitzt wegen seiner geringen Durchlässigkeit und seiner hohen chemischen Reaktivität ein hohes Rückhaltepotenzial für Radionuklide.

Eine Bindung von Radionukliden an oder in Festphasen kann durch Ionenaustausch, Oberflächenkomplexierung, durch Ausfällung von reinen Phasen oder durch Mitfällung geschehen. Für die Interaktion zwischen gelösten Radionuklid-Spezies und Festphase können organische Mineralüberzüge und Kluftminerale von Bedeutung sein. Während die Reaktionskinetik bei Ionenaustausch und Oberflächenkomplexierung vernachlässigbar ist, gilt dies nicht für manche Fällungs- und Mitfällungsreaktionen. Das Auftreten langsam ablaufender Mitfällungsreaktionen für die Radionuklid-Immobilisation konnte durch natürliche-Analoga-Studien nachgewiesen werden.

Der wichtigste Transportmechanismus im tonigen Wirtsgestein ist die Diffusion. Freie Konvektion als Reaktion auf temperaturbedingte Dichtegradienten tritt im Wirtsgestein wegen der geringen Durchlässigkeiten nicht auf. Advective Flüsse treten nach Abschluss der Aufsättigung in den Hintergrund, da die hydraulischen Durchlässigkeiten und die zu erwartenden hydraulischen Potenziale sehr klein sind. Erhöhte hydraulische Durchlässigkeiten können allerdings in der Auflockerungszone (EDZ) oder in Oberflächennähe auftreten. Trotzdem muss in der Auflockerungszone nicht notwendiger Weise ein advektiver Transport stattfinden, weil einerseits die erforderlichen hydraulischen Potenziale fehlen können und andererseits zum Zeitpunkt der Radionuklidfreisetzung bereits eine Selbstheilung stattgefunden haben kann.

Zur Diffusion und Advektion, die die wichtigsten Transportmechanismen in gröberporigen Gesteinen und Sedimenten darstellen, gesellen sich im Ton weitere Transportphänomene, die daher rühren, dass der Porenraum des Tones intensiv von den diffusiven Doppelschichten der Tonmineraloberflächen durchdrungen wird. Es handelt sich um die so genannten „gekoppelten Transportphänomene“, von denen die

wichtigsten die Chemoosmose, die Hyperfiltration und die Thermoosmose sind. Während Chemoosmose und Hyperfiltration den Radionuklidtransport verlangsamen, wirkt die Thermoosmose beschleunigend auf den Radionuklidaustrag. In vielen Fällen werden die gekoppelten Fließphänomene von der Diffusion dominiert, jedoch kann ihre Relevanz in Abhängigkeit vom Standort und der Endlagerentwicklung stark variieren.

Eine weitere Transportmöglichkeit für Radionuklide ist die Bindung an mobile anorganische Kolloide oder gelöste organische Substanz. Der Kolloidtransport in Tonen ist jedoch wegen der geringen transportwirksamen Porendurchmesser generell von geringer Bedeutung.

Es ist zu erwarten, dass die Verdrängung von Fluiden durch entweichende Korrosions- und Degradationsgase eine untergeordnete Bedeutung für den Radionuklidtransport hat, da Gastransportpfade meist stark lokalisiert sind und deshalb keinen nennenswerten Fluidtransport verursachen.

Tone werden unter Stillwasserbedingungen abgelagert und weisen deshalb, wenn sie nicht tektonisch überprägt wurden, zumindest in horizontaler Richtung eine große Homogenität auf. Die für den Fluidtransport relevanten Eigenschaften dürften daher in horizontaler Richtung relativ homogen verteilt und skalunenabhängig sein. Natürliche und anthropogene Bruchstrukturen, sowie sedimentär bedingte Stoffunterschiede in vertikaler Richtung können jedoch eine Inhomogenität und Skalenabhängigkeit der Transporteigenschaften mit sich bringen.

9.2 Diffusiver Radionuklidtransport

9.2.1 Prozesse

In Tonen kommt der Diffusion eine wesentliche Rolle beim Transport von Radionukliden zu, da der advective Transport oft vernachlässigbar ist. Effektive Diffusionskoeffizienten senkrecht zur Schichtung liegen i.d.R. zwischen $7 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ und $1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ /MAZ 03/ (Zur Definition der verschiedenen Diffusionskoeffizienten siehe Abschnitt 2.4). In geklüfteten Tonen ist der diffusive Austausch von Radionukliden zwischen Kluft und Matrix ein retardierender Mechanismus.

Diffusionskoeffizienten für Ionen sind stark speziesabhängig. Geladene Spezies treten in Wechselwirkung mit den negativen elektrostatischen Feldern der Tonmineraloberflächen. Während der diffusive Transport von Kationen auch in den diffusiven Doppelschichten nahe zu den Tonmineraloberflächen stattfinden kann, ist der diffusiv nutzbare Porenraum für Anionen stark eingeschränkt. Dieser Effekt wird als *Anionen-ausschluss* oder *Donan-Ausschluss* bezeichnet. In der Reichweite der diffusiven Doppelschichten nehmen auch die zur Diffusion erforderliche Aktivierungsenergie und die Viskosität des Wassers zu und beeinflussen das Diffusionsverhalten einer gelösten Spezies.

Der Porenraum, der durch Diffusion erreicht werden kann, enthält auch nicht-durchgängige Poren (dead-end pores), in die Radionuklide diffusiv eindringen und erst nach einer gewissen Verweilzeit wieder hinaus diffundieren. Dieser Prozess trägt zur Verlangsamung des diffusiven Transportes bei und wird bei der Beschreibung der Diffusivität durch den Geometriefaktor (siehe Abschnitt 2.4) berücksichtigt.

Der diffusive Vorgang in einem porösen Medium wird meist durch eine Adaption des 1. Fickschen Gesetzes beschrieben. Hierbei ist zu bedenken, dass dieses Gesetz die makroskopische Wirkung einer Diffusion in freiem Wasser aufgrund Brownscher Molekularbewegung beschreibt, dass der diffusive Transport in einem porösen Medium aber die integrale Wirkung mehrerer Prozesse ist, die verschiedene Interaktionen mit der Festkörpermatrix beinhalten. Eine adäquate Beschreibung des Diffusionsvorganges allein durch eine Anpassung des 1. Fickschen Gesetzes ist nicht von vornherein gegeben. Beispielsweise beschreiben scheinbare Diffusionskoeffizienten den Diffusionsvorgang nicht korrekt, wenn nicht-lineare Gleichgewichtssorption vorliegt (siehe auch Abschnitt 2.4).

In Porenwässern mit homogenem Chemismus wird der rein diffusive Transport i.W. von der Ladung und dem hydrodynamischen Radius der gelösten Spezies, der Temperatur und der Viskosität des Wassers bestimmt. Im Falle chemischer Fronten mit größeren chemischen Gradienten ist mit stärkeren elektrostatischen Wechselwirkungen zwischen verschiedenen gelösten Ladungsträgern zu rechnen, so dass ihre Diffusion nicht mehr unabhängig voneinander betrachtet werden kann. Der diffusive Transport eines Radionuklides kann in einem solchen Fall evtl. nicht mehr adäquat durch einen einzigen Diffusionskoeffizienten beschrieben werden und muss durch numerische Modellierung des gekoppelten Diffusionsvorganges erfasst werden.

9.2.2 Befunde

- Für den Boom Clay zeigt sich, dass Diffusion der dominante Transportprozess ist (Aertsens et al. in /AND 02/, Beitrag O-9a-1). Die durch Diffusion zugängliche Porosität liegt im Boom Clay bei 0.16 für Iodid und bei 0.37 für titriertes Wasser.
- Auch in den Tonsteinen des Standortes Tournemire ist Diffusion der dominante Transportprozess (Patriarche et al. in /AND 02/, Beitrag P-MT-26). Dies wurde durch Rückwärtsmodellierung aus Chlorid-Profilen abgeleitet.
- Die Diffusionseigenschaften des Opalinuston wurde durch Laborversuche, in-situ-Tests und hydrochemische Profile ermittelt /NAG 02/. Bei Temperaturen von 40 °C werden Diffusionskonstanten von ca. $1 \cdot 10^{-11}$ m²/s erwartet. Die im Vergleich zu den Versuchen im Felslabor Mont Terri um den Faktor 2 kleineren Diffusionskonstanten von Tritium in der Bohrung Benken wurden durch eine höhere Kompaktion erklärt. Ebenso lag die Anionendiffusivität um einen Faktor 6 niedriger, was vermutlich durch eine kompaktionsbedingte Erniedrigung der Porosität und Erhöhung des Anionenausschlusses verursacht wurde. Diffusionskonstanten parallel zur Schichtung waren ca. 5-mal größer als senkrecht zur Schichtung.
- Loon et al. (in /AND 02/, Beitrag P-MT-19) untersuchten die Aktivierungsenergie für die Selbstdiffusion von Wasser (Tritium) im Opalinuston. Sie ermitteln eine Aktivierungsenergie von 22 kJ/mol, was nur unwesentlich über der von 18 kJ/mol für freies Wasser liegt (57 kJ/mol für Eis).

9.2.3 Stand der Wissenschaft

Scheinbare Diffusionskoeffizienten können aus effektiven Diffusionskoeffizienten unter Zuhilfenahme von diffusionswirksamen Porositäten und Retardationsfaktoren abgeleitet werden. /MAZ 03/ weisen darauf hin, dass Batch-Experimente zur Bestimmung von Retardationsfaktoren mit Vorsicht angewandt werden sollten. Ferner ist nach /NAG 02/ die Messung der diffusionswirksamen Porosität mit einigen Unsicherheiten behaftet. So kann in Diffusionsexperimenten der Wassergehalt der Probe im Kontakt mit der Probelösung durch Quellen oder Schrumpfen des Tons verändert werden. Diffusionswirksame Porositäten können auch durch diffusiven Austausch des Porenwassers mit einer umgebenden Lösung und Messung der Wasserisotopen-Zusammensetzung ermittelt werden. Neben Ungenauigkeiten bei der Isotopenbestimmung kann auch hier eine Veränderung der Porenraumstruktur durch Quellen oder Schrumpfen zu

Messungenauigkeiten führen. Eine Bestimmung effektiver Diffusionskoeffizienten durch Messungen der elektrischen Leitfähigkeit ist in Tonen nicht möglich, da die hierbei auftretenden Prozesse nicht in Gänze nachvollzogen werden können.

9.2.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Im unaufgelockerten tonigen Wirtsgestein des Fernfeldes ist Diffusion der Haupttransportmechanismus für Radionuklide, weil die thermische und chemische Störung durch das Endlager eine verhältnismäßig geringe Reichweite besitzen. Die Diffusivität ist daher ein essenzieller Parameter in der Sicherheitsanalyse.

Diffusionskoeffizienten für das Fernfeld müssen aus Labor- und Felddaten abgeleitet werden, wobei für ein Upscaling die Heterogenität des Tones bekannt sein muss. Ein solches Upscaling ist generell mit Unsicherheiten verbunden. Natürliche Tracerprofile, sofern verfügbar, sind eine wichtige zusätzliche Stütze, weil sie das Ergebnis eines langfristigen und großräumigen Diffusionsvorganges widerspiegeln. Wegen der Unsicherheiten der verschiedenen Messmethoden zur Bestimmung von Diffusionskoeffizienten ist eine Kombination mehrerer Bestimmungsverfahren sinnvoll. Hebung und Erosion verändern langfristig die Spannungszustände im tonigen Wirtsgestein und beeinflussen so die Porosität und Diffusivität. Die Wirkung dieser Effekte ist zu überprüfen.

9.2.5 Auswahl relevanter Projekte

- IN-SITU INJECTION MIGRATION EXPERIMENTS (URL HADES): Zielsetzung: Langfristige Experimente zur Modell- und Parametervalidierung für Strömungs- und Transportmodellierung für Radionuklide im Boom Clay. Umfasst die Experimente HTO-CP1, TRIBICARB-3D, HIMEX, TRANCOM. Laufzeit: 1985 – min. 2010.
- Untersuchungen im Rahmen des schweizerischen Entsorgungsprogramms für den Opalinuston /NAG 02, MAZ 03/:
 - Diffusionsexperimente im Opalinuston des Bohrloches Benken im Rahmen des schweizerischen Entsorgungsnachweises.
 - Numerische Auswertung von Diffusionsexperimenten mit ^4He , HTO und I^- im Opalinuston von Mont Terri.

- In-Situ-Profile von ^2H , ^{18}O , Na^+ , Cl^- , Br^- , ^4He im Opalinuston von Mont Terri.
- EC-Projekt TRANCOM II (URL HADES): Zielsetzung: Untersuchung von Transportprozessen in reduzierenden Tonen durch Batch-Experimente und Beschreibung durch numerische Modelle. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 31. 8. 2003.
- EC-Projekt HUPA: Zielsetzung: Untersuchung des Einflusses von Huminstoffen auf die Actiniden- und Iodid-Migration im Fernfeld (Experimente und Entwicklung numerischer Modelle). Laufzeit: 1. 11. 2001 – 31. 10. 2004.

9.3 Advektiver Radionuklidtransport

9.3.1 Prozesse

Die hydraulische Durchlässigkeit ungestörter Tone ist allgemein sehr gering. Typische Werte liegen zwischen 10^{-15} m/s und 10^{-11} m/s. Entsprechend gering ist die Bedeutung des advektiven Transportes im ungestörten tonigen Wirtsgestein. Eine bruchbedingte Erhöhung der Durchlässigkeiten ist in der Nähe der Erdoberfläche, in der Auflockerungszone des Endlagers (EDZ) und in der Nähe tektonischer Störungen zu erwarten. In der Auflockerungszone muss nicht zwingend ein advektiver Transport stattfinden, weil die erforderlichen hydraulischen Potenziale fehlen können und zum Zeitpunkt der Radionuklidfreisetzung bereits eine Selbstheilung stattgefunden haben kann. Durch eine ausreichende Tiefe des Endlagers kann der Einfluss oberflächlicher Auflockerung gering gehalten werden. Hierbei muss eine etwaige Hebung und Erosion über den Isolationszeitraum berücksichtigt werden.

In der Aufsättigungsphase des Endlagers führen die Saugspannungen zu advektiven Flüssen, die auf die sich aufsättigenden Teile des Endlagers gerichtet sind. Erst nach erfolgter Aufsättigung können regionale hydraulische Potenzialgradienten ihre Wirkung entfalten und zu einem advektiven Austrag evtl. freigesetzter Radionuklide führen. Bruchnetzwerke der EDZ können sich zu diesem Zeitpunkt bereits verschlossen haben.

Das Darcysche Gesetz, das den Zusammenhang zwischen dem Potenzialgradienten und dem advektiven Fluss als lineare Beziehung beschreibt, ist in Tonen i.a. nur eingeschränkt gültig. So kann zur Erzeugung eines advektiven Flusses die Über-

windung eines Schwellwertes für den hydraulischen Gradienten erforderlich sein, d.h. dass die lineare Beziehung nur für einen eingeschränkten Druckbereich gilt /HOR 96/.

9.3.2 Befunde

Räumliche Variabilität der hydraulischen Durchlässigkeit

- Hydraulische Tests im Opalinuston im Bohrloch Benken zeigten eine nur geringe Bandbreite der hydraulischen Durchlässigkeiten ($6 \cdot 10^{-15}$ m/s – $6 \cdot 10^{-14}$ m/s) /NAG 02/. Ein Einfluss von Fazieswechsel und Bruchstrukturen auf die Durchlässigkeit war nicht nachweisbar. Auch im Vergleich mit weiter entfernten Standorten (Felslabor Mont Terri, Bohrungen Riniken, Schafisheim und Weiach) war die Bandbreite der Durchlässigkeitsbeiwerte gering ($2 \cdot 10^{-14}$ m/s – $2 \cdot 10^{-12}$ m/s).

Anisotropie der hydraulischen Durchlässigkeit

- Permeametertests im Bohrloch Benken im Opalinuston lieferten Anisotropiekoeffizienten (Verhältnis der schichtparallelen zur schichtsenkrechten Durchlässigkeit) zwischen 1 und 10 /NAG 02/.

Gültigkeit des Darcyschen Gesetzes, Existenz von Anfangsgradienten

- Für die Opalinuston wurde im Felslabor Mont Terri die Gültigkeit des Darcyschen Gesetzes bei hydraulischen Gradienten über 1 durch Permeameter- und Packertests bestätigt (gemessene Durchlässigkeit: $2 \cdot 10^{-14}$ – $1 \cdot 10^{-12}$ m/s) (Croisé et al. in /AND 02/, Beitrag O-11-3). Die räumliche Variabilität der Durchlässigkeitsbeiwerte war gering. Nicht-lineares Fließverhalten wurde bei hydraulischen Gradienten < 1 festgestellt, jedoch ist die Unsicherheit bei der Bestimmung des Schwellendruckes aus messtechnischen Gründen relativ hoch /NAG 02/. U.a. können die Messergebnisse durch osmotische Flüsse aufgrund der chemischen Zusammensetzung des eingepressten Fluids überlagert werden.
- Die Anwendung externer Spannungen auf Proben von Opalinuston und COx-Ton unter drainierten Bedingungen zeigten eine unterschiedliche Druckantwort in den beiden getrennten Wasserreservoirs /ZHA 04/. Dies zeigt, dass in den intakten Tonproben aufgrund des adhäsiv gebundenen Wassers keine advektiven Fließwege existieren. Hierfür spricht auch, dass bei Anwendung erhöhter externer

Wasserdrücke auf einer Seite der Proben eine Druckantwort auf der anderen Seite erst nach über einem Monat zu verzeichnen war.

9.3.3 Stand der Wissenschaft

- In Tonen kann zur Initiierung eines advektiven Flusses die Überwindung eines bestimmten hydraulischen Gradienten erforderlich sein (im schweizerischen Projekt Entsorgungsnachweis „Anfangsgradient“ genannt). Dieser Schwellwert liegt im Bereich von hydraulischen Gradienten, wie sie i.d.R. unter natürlichen Bedingungen auftreten, und ist damit für den advektiven Fluidtransport relevant. Durchströmungsversuche sind in diesem Gradientenbereich jedoch sehr ungenau, weshalb zur Ermittlung von Fließgesetzen meist weitaus höhere hydraulische Gradienten angewandt werden. Unter diesen Bedingungen lässt sich der Zusammenhang zwischen Fluss und hydraulischem Gradienten durch das Darcysche Gesetz beschreiben, in dem keine Schwellwerte enthalten sind. Eine Anwendung des Darcyschen Gesetzes einschließlich der ermittelten Durchlässigkeitsbeiwerte auf niedrige hydraulische Gradienten führt daher zu einer Überschätzung der advektiven Flüsse.
- Die hydraulische Durchlässigkeit geklüfteter Tone kann durch verschiedene Prozesse reduziert werden (Selbstheilung). Vor allem in stärker verfestigten Tonen wird eine Schließung der Bruchnetzwerke durch eine Kompression der EDZ infolge des Spannungsaufbaus zwischen dem konvergenten Gebirge und der quellenden Bentonitbarriere bzw. anderen technischen Bauwerken hervorgerufen. Die zeitliche Entwicklung des Spannungsfeldes bestimmt dabei den Zeitrahmen der Selbstheilung. Da dieser hydromechanische Vorgang sehr komplex ist, lässt sich der zeitliche Verlauf der Selbstheilung nicht mit großer Sicherheit bestimmen (s. Abschnitt 6.4).
- Bruchnetzwerke können zu einer Inhomogenität und Skalenabhängigkeit der Permeabilität führen, deren Quantifizierung schwierig ist. Statistische Kluftmessungen und numerische Strömungssimulationen in stochastisch generierten Kluftnetzwerken erlauben einen gewissen Einblick in die Skalenabhängigkeit der Permeabilität, sind jedoch mit Unsicherheiten behaftet. Einerseits sind die geometrischen Eigenschaften der Klüfte in zweidimensionalen, oftmals beschädigten Anschnitten nicht immer zu identifizieren, andererseits ist eine repräsentative Kluft erfassung senkrecht zur Aufschlusswand meist nicht gegeben. Es ist ferner

schwierig nachzuweisen, ob der stochastische Prozess, der zur Kluftgenerierung herangezogen wird, Kluftnetzwerke erzeugt, die dem tatsächlichen Kluftnetzwerk auf allen Skalenbereichen hydraulisch ähnlich sind.

9.3.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Ein signifikanter advektiver Transport ist i.W. nur in Bruchnetzwerken möglich, und zwar entweder in Oberflächennähe, Störungsnähe oder innerhalb der Auflockerungszone. Eine ausreichende Tiefe des Endlagers, eine ausreichende Distanz zu tektonischen Schwäche- oder Aktivitätszonen und gute hydraulische Selbstheilungsfähigkeiten schränken daher die Bedeutung des advektiven Transportes ein. Ausgeprägte, hydraulisch wirksame Bruchnetzwerke stellen hinsichtlich der Quantifizierung der Heterogenität und Skalenabhängigkeit der hydraulischen Eigenschaften ein Problem dar.

Informationen über hydraulische Permeabilitäten können aus Labor- und in-situ-Tests, aus Zuflussraten in abgedichtete Grubenbereiche oder durch Untersuchung natürlicher Tracer in geochemischen Profilen abgeleitet werden. Da jede Methode der Permeabilitätsermittlung spezifische Unsicherheiten besitzt und spezifische beschränkte Skalenbereiche erfasst, werden i.d.R. verschiedene Methoden kombiniert, um eine Aussage über die Permeabilität im interessierenden Skalenbereich zu erhalten.

Hinweise auf hydraulische Anfangsgradienten sind „anormale“ Porenwasserüberdrücke, die sich nicht durch die üblichen hydrogeologischen Modelle erklären lassen /HOR 96/. Ursache solcher Porenwasserdrücken können jedoch auch osmotische Prozesse oder eine Instationarität des Fließgeschehens sein. Ist für einen advektiven Fluidtransport die Überwindung eines hydraulischen Anfangsgradienten erforderlich, so überschätzen Labor- und in-situ-Tests, die mit hohen Druckgradienten arbeiten, die tatsächlichen Permeabilitäten. Die Verwendung solcher Messwerte dürfte in vielen Fällen konservativ sein. Numerische Modelle zur Simulation der Strömung und des Transports in Tonen sollten dennoch hydraulische Anfangsgradienten berücksichtigen können, um die grundsätzlichen Auswirkungen zu prüfen. Hierfür kann beispielsweise das Darcysche Gesetz um einen Schwellwert erweitert werden.

Untersuchungen natürlicher Tracer in geochemischen Profilen stellen eine wichtige Ergänzung zu Labor- und in-situ-Tests dar, weil sie die Wirkung natürlicher hydrau-

lischer Gradienten über große Zeit- und Raumskalen aufzeigen. Dies erfordert jedoch eine gute Kenntnis der Anfangs- und Randbedingungen.

9.3.5 Auswahl relevanter Projekte

- IN-SITU MIGRATION PERCOLATION EXPERIMENTS (URL HADES). Zielsetzung: Verschiedene in-situ-Migrationstests mit Eu, Sr, Cs, U, Am und Tc. Laufzeit: Versuche in den Jahren 1985 – 1994 gestartet; Versuchsdauer zwischen 3 und 10 Jahren.
- IN-SITU INJECTION MIGRATION EXPERIMENTS (URL HADES): Zielsetzung: Langfristige Experimente zur Modell- und Parametervalidierung für Strömungs- und Transportmodellierung für Radionuklide im Boom Clay. Umfasst die Experimente HTO-CP1, TRIBICARB-3D, HIMEX, TRANCOM. Laufzeit: 1985 – min. 2010.
- Eine große Zahl hydraulischer Tests wurde im Rahmen des schweizerischen Entsorgungsnachweises für den Opalinuston durchgeführt und in /NAG 02/ dokumentiert. Eine Zusammenfassung der Untersuchungsergebnisse für den plastischeren Boom Clay sind im belgischen Bericht SAFIR-2 zu finden /NIR 01/. Eine Übersicht über die hydraulischen Eigenschaften verschiedener Tone, die als potenzielle Wirtsgesteine untersucht wurden, gibt der FEP-Katalog der NEA /MAZ 03/.
- Zum Vergleich verschiedener Messtechniken und Versuchsprotokolle zur Ermittlung hydraulischer Permeabilitäten niedrig-permeabler Medien wurde ein Verbundprojekt verschiedener Laboratorien gestartet (Fleureau et al. in /AND 02/, Beitrag P-GGET-07). Erste Ergebnisse zeigten eine gute Übereinstimmung der Messergebnisse.

9.4 Rückhaltemechanismen

9.4.1 Prozesse

Die Fixierung von Radionukliden an oder in Festphasen kann einerseits durch Sorption, d.h. durch Ionenaustausch und Oberflächenkomplexierung, andererseits durch Ausfällung von reinen Phasen oder durch Mitfällung geschehen. Bei Ionenaustausch und Oberflächenkomplexierung kann meist von einer schnellen Einstellung des chemischen Gleichgewichts zwischen den Festphasen und dem

Porenwasser ausgegangen werden. Redoxreaktionen sowie Lösungs- und Ausfällungsreaktionen (insbesondere von Silikaten) sind jedoch oft weit vom Gleichgewichtszustand entfernt. Nicht nur der volumetrische Mineralbestand des Tones ist für Sorptions- und Fällungsprozesse wichtig, sondern auch anorganische oder organische Mineralüberzüge sowie Kluffüllungen.

Als *Ionenaustausch* wird der Austausch von Ionen auf Bindungsplätzen einer Festkörperoberfläche mit permanenten Ladungen bezeichnet. In Tonen sind Tonminerale und Zeolithe wichtige Minerale für den Ionenaustausch von Kationen, wobei die inneren Oberflächen und Kanten der Tonminerale die meisten Austauschplätze zur Verfügung stellen. In Tonen hat die Ionenbelegung der Austauschplätze einen starken Einfluss auf den Chemismus des Porenwassers.

Oberflächenkomplexierung bezeichnet die Bindung geladener Spezies an den variablen Ladungen einer Festkörperoberfläche, die sowohl elektrostatische Bindungen als auch Komplexierung beinhaltet. Für die Oberflächenkomplexierung in Tonen sind vor allem Huminstoffe, Metalloxide und -Hydroxide von Bedeutung. Huminstoffe und Tonminerale sind im basischen bis leicht sauren pH-Bereich Kationensorbenten. Eisen- und Magnesiumoxide sowie Aluminiumhydroxide besitzen im neutralen bis sauren Milieu eine positive Oberflächenladung und sind damit zur Sorption anionischer Radionuklide befähigt. Die langfristige Umwandlung niedrigkristalliner Oxide (z. B. Ferrioxide) in hochkristalline Oxide (Goethit, Hämatit) führt jedoch zu einer Verringerung der Anionensorption.

Ein amorpher oder kristalliner Festkörper kann durch Ausfällung mehrerer Komponenten gebildet werden (*Mitfällung*). Ist die gebildete Festphase kristallin, so handelt es sich um einen Mischkristall. Um eine *solid solution* handelt es sich, wenn eine fremde Komponente die Komponenten eines kristallinen Gitters substituiert.

Lösungs- und Fällungsreaktionen können als Folge räumlicher oder zeitlicher Änderungen der Porenwasserchemie auftreten. Starke Konzentrationsgradienten und Konzentrationsänderungen im Porenwasser sind eher im Nahfeld eines Endlagers zu erwarten, wo aufgrund der eingebrachten Materialien und der Bewetterungsluft vielfältige chemische Prozesse ablaufen. Im Fernfeld ist damit zu rechnen, dass die Säure- und Redoxpufferung durch das Wirtsgestein der Entwicklung starker Konzentrationsgradienten oder Konzentrationsänderungen entgegenwirkt. Im Fernfeld

können Lösungs- und Fällungsreaktionen jedoch auch in Folge langsamer Diagenese- und Metamorphoseprozesse über lange Zeiträume ablaufen.

Neben der Bindung an Festphasen kann eine Rückhaltung von Radionukliden auch durch den sog. *Anionen-Ausschluss*, auch Donnan-Ausschluss genannt, zustande kommen /HOR 96/. Die negativ geladenen diffusen Doppelschichten der Tonminerale sind für negativ geladene Radionuklidspezies nicht zugänglich. Hierdurch wird der Porenraum für negativ geladene Lösungsbestandteile stark eingeengt, und der Ton erhält die Eigenschaft einer semipermeablen Membran. Die Wirksamkeit des Anionenausschlusses ist für verschiedene Tone und verschiedene Spezies unterschiedlich /HOR 96/. Durch die selektive Filtration von Anionen (*Hyperfiltration*) entstehen elektrostatische und chemische Potenzialgradienten, die verschiedene osmotische Prozesse wie z.B. Elektrophorese und Chemoosmose in Gang setzen (vgl. Abschnitt 9.4). Letzere zwei Prozesse bewirken, dass in schwächerem Maße auch positiv geladene Radionuklidspezies zurückgehalten werden können.

9.4.2 Befunde

- Studien natürlicher Analoga wie El Berrocal, Cigar Lake, Poços das Caldas, Maquarin und Palmottu zeigen, dass Mitfällung ein wichtiger Mechanismus zur Immobilisierung von Radionukliden ist /MIL 00, MAZ 03/. So wurde in Poços das Caldas ein Einbau von U, Zn und seltenen Erden in Ferrihydrit sowie ein Einbau von Sr in Fluorit gefunden. In Palmottu konnte U in karbonatischen Kluffüllungen nachgewiesen werden. Im Nahfeld ist eine Mitfällung von Radionukliden in CSH-Phasen unter dem Einfluss hyperalkalischer Fluide möglich.
- Kulik et al. (in /AND 02/, Beitrag O-5a-1) diskutieren den Einfluss der Zeitskala auf die in Sicherheitsanalysen zu betrachtenden Sorptionsmechanismen. Bei der Sorption durch Oberflächenkomplexierung stellen sich Gleichgewichtszustände i.d.R. nach Minuten bis Tagen ein. Auf Zeitskalen von Wochen bis Jahren beobachtet man, dass sorbierte Substanzen strukturell in Mineralphasen eingebaut werden. Nach Meinung der Autoren ist dieser langsame Mitfällungsprozess für den Radionuklidtransport auf „geologischen“ Zeitskalen entscheidend. Sorptionsversuche würden über zu kurze Zeitskalen laufen, um diesen zu berücksichtigen.

9.4.3 Stand der Wissenschaft

- Zwar existieren für Hauptelemente umfangreiche thermodynamische Datenbanken, in Hinblick auf Spurenelemente sind die Datensätze jedoch weniger vollständig und mit größeren Unsicherheiten behaftet /MAZ 03/. So bestehen beispielsweise Unsicherheiten bezüglich Kinetik von Fällungs-Lösungs- und Redox-Reaktionen. Problematisch ist auch die mangelhafte Verfügbarkeit von Pitzer-Koeffizienten, die zur Berechnung der Aktivitätskoeffizienten in hochsalinaren Lösungen benötigt werden, insbesondere dann, wenn die geochemischen Vorgänge bei Temperaturen über 25°C stattfinden.
- Vieles spricht dafür, dass Mitfällung ein wichtiger Prozess bei der Immobilisierung von Radionukliden ist. Dennoch kann die Mitfällung in vielen Fällen noch nicht quantitativ beschrieben werden. Ein gutes Verständnis dieses Prozesses liegt derzeit nur für karbonatische Mischkristalle vor, nicht aber für komplexere Festphasen wie Tonminerale und CSH-Phasen.
- Für die Löslichkeit von Radionukliden ist entscheidend, welche Festphase die Löslichkeit kontrolliert. Diese kann jedoch nicht in allen Fällen mit Sicherheit identifiziert werden.
- Ein gutes Verständnis der Oberflächenkomplexierung besteht für reine Minerale, nicht jedoch für komplexe Festphasen wie Tonminerale, die verschiedene Arten von Bindungsplätzen aufweisen. Die experimentellen Befunde können oft mit verschiedenen physikalischen Modellen beschrieben werden, so dass nicht eindeutig zu entscheiden ist, welche physikalischen Prozesse den Phänomenen zugrunde liegen /MAZ 03/. Wenig verstanden ist die Oberflächenkomplexierung an organischer Substanz. Diesbezüglich fanden Untersuchungen im EC-Projekt TRANCOM-II statt.
- Die Sorptionseigenschaften von Laborproben müssen nicht repräsentativ für größere Skalenbereiche sein. Ein Upscaling erfordert die Kenntnis der Heterogenität der Mineralogie und der Porenwasserzusammensetzung. Arbeiten zur Upscaling-Problematik sind jedoch eher selten.
- Sorptionsvorgänge werden oft an gemahlene Proben untersucht, die eine höhere Oberfläche als das intakte Gestein besitzen. Folglich wird die Sorptionsfähigkeit des Gesteins durch solche Experimente überschätzt.

- Im Versuch ermittelte K_d -Werte beschreiben lediglich die Sorptionsfähigkeit unter den jeweiligen Versuchsbedingungen. Auswirkungen veränderter pH- oder Eh-Werte sowie einer veränderten Zusammensetzung der Festphasen werden hierbei nicht erfasst. Eine mechanistische Beschreibung des Sorptionsprozesses ist derzeit aufgrund der begrenzten Rechenleistung und der Schwierigkeiten bei der Parameterermittlung nur begrenzt möglich.

9.4.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Für die Modellierung von Ionenaustausch- und Oberflächenkomplexierungs-Prozessen stehen numerische Modelle und thermodynamische Datenbanken zur Verfügung. Sie sind wesentlich zur Berechnung der Porenwasserchemie, die die Spezierung, Sorption und Löslichkeit von Radionukliden kontrolliert.

Bei der Modellierung des Radionuklidtransportes in Langzeitsicherheitsanalysen wird meist von linearer Sorption (beschrieben durch den K_d -Wert) und von Löslichkeitsgrenzen ausgegangen, da eine gekoppelte Modellierung des Transports und der geochemischen Reaktionen sehr viel Rechenzeit in Anspruch nimmt. Geochemische Modelle dienen dazu, die Wahl der K_d -Werte und der Löslichkeitsgrenzen für die jeweiligen Radionuklide unter den zu erwartenden geochemischen Bedingungen zu untermauern. Zur Bestimmung von Löslichkeitsgrenzen ist entscheidend, welche kontrollierenden Mineralphasen gewählt werden.

Sorptions- und Fällungsprozesse sind zu komplex, um belastbar bei der numerischen Modellierung des Radionuklidtransportes in Langzeitsicherheitsanalysen berücksichtigt werden zu können. Die Anwendung geochemischer Transportmodelle muss meist auf eindimensionale Anwendungen beschränkt bleiben. Mitfällungsprozesse werden meist vernachlässigt, da diese derzeit noch nicht quantifiziert werden können. Eine solche Vernachlässigung kann jedoch stark überkonservativ sein. Sollen Mitfällungsprozesse berücksichtigt werden, so sind mittlere Wachstumsraten der betreffenden Mischkristallphasen zu ermitteln.

Der Effekt der Hyperfiltration negativ geladener Radionuklidspezies, der durch den Anionenausschluss verursacht wird, lässt sich modelltechnisch durch eine Modifikation von K_d -Werten, Porositäten oder Permeabilitäten für die betreffenden Spezies erfassen.

9.4.5 Auswahl relevanter Projekte

- Grambow et al. (in /AND 02/, Beitrag P-RS-13) stellten ein Kooperationsprojekt mehrerer Laboratorien vor, das sich mit der Erstellung einer Datenbank zur mechanistischen Beschreibung von Sorptionsprozessen in Bentonit befasst und eine große Bandbreite von Radionukliden betrachtet. Die Kooperationspartner sind SUBATECH (Ecole des Mines de Nantes), IPN-Orsay, CEA, GRECI, LCABIE und Andra.
- EC-Projekt TRANCOM II (URL HADES): Zielsetzung: Untersuchung von Transportprozessen in reduzierenden Tonen durch Batch-Experimente und ihre Beschreibung durch numerische Modelle. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 31. 8. 2003.
- EC-Projekt ACTAF: Zielsetzung: Untersuchungen zum Verhalten von Actiniden und Spaltprodukten in natürlichen aquatischen Systemen: Wechselwirkungsmechanismen, Vervollständigung thermodynamischer Datenbanken, Absicherung thermodynamischer Konstanten. Schwerpunkt auf vierwertigen Actiniden, ihrer Interaktion mit Mischkristallen und der Thermodynamik sekundärer Festphasen. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 31. 8. 2003.
- NEA Sorption Project: Zielsetzung: Phase I: Untersuchung des Verbesserungspotenzials bei der Beschreibung von Sorptionsprozessen in Langzeitsicherheitsanalysen anhand von K_d -Werten durch die Einbeziehung mechanistischer Modelle zu Oberflächenkomplexierungs- und Ionenaustauschprozessen. Phase II: Benchmark-Rechnungen zum Test von Datenbanken unter Anwendung verschiedener Modellansätze. Laufzeit: 1997-1998 (Phase I), 2000 – ca. 2004 (Phase II).
- EC-Projekt ACTINET-6: Zielsetzung: Aufbau eines Expertennetzwerkes auf dem Gebiet der Actiniden-Forschung. Laufzeit: 1. 3. 2004 – 29. 2. 2008.
- Sorptionsdatenbank RES³T des Forschungszentrums Rossendorf: Zielsetzung: Datenbank für Sorptionsrelevante Mineraleigenschaften. Laufzeit: Wird laufend weiterentwickelt.

9.5 Radionuklidtransport durch gekoppelte Fließphänomene

9.5.1 Prozesse

Die semi-permeablen Eigenschaften von Tonen und die sehr geringen Porendurchmesser haben zur Folge, dass neben Advektion und Diffusion eine Anzahl weiterer Transportprozesse wirksam werden bzw. eine nicht mehr zu vernachlässigende Größenordnung erreichen. So können hydraulische, chemische, thermische, und elektrische Potenzialgradienten einen Transport von Fluid, Lösungskomponenten, Wärme und Ladungsträgern erzeugen. Generell kann dabei jeder Potenzialgradient jeden Transportvorgang auslösen, so dass eine Matrix-Darstellung der möglichen Transportphänomene nahe liegt (Onsager-Matrix, Tab. 9-1). Die Phänomene auf der Diagonalen dieser Matrix werden *direkte*, die auf den Nebendiagonalen *gekoppelte* Fließphänomene genannt. Durch die gekoppelten Fließphänomene ist jeder Potenzialgradient in der Lage, alle übrigen Potenzialgradienten zu erzeugen, auch wenn diese nicht explizit durch die Randbedingungen vorgegeben werden. Somit kann grundsätzlich die Vorgabe eines einzelnen Potenzialgradienten genügen, um Flüsse aufgrund anderer Potenzialgradienten in Gang zu setzen.

Die Relevanz gekoppelter Transportphänomene für den Radionuklidtransport ist standortabhängig zu betrachten, jedoch wird i.d.R. nur der Chemoosmose und der Hyperfiltration ein nennenswerter Einfluss auf den Radionuklidtransport zugesprochen /SOL 99, SOL 01, MAZ 03/. Beide Effekte führen aufgrund ihrer Flussrichtung zu einer Verlangsamung des Radionuklidtransports. Bezüglich der Relevanz der Thermoosmose, die den Austrag evtl. freigesetzter Radionuklide beschleunigt, liegen derzeit widersprüchliche Einschätzungen vor. Zwar sind bei hochaktiven Abfällen die zu erwartenden thermoosmotischen Flussdichten hoch, jedoch wurde bisher von einer vollständigen advektiven Kompensation dieser Flüsse in der stationären Phase der Endlagerentwicklung ausgegangen. Numerische Untersuchungen der GRS Köln zeigen jedoch, dass auch unter stationären Verhältnissen unkompenzierte thermoosmotische Flüsse auftreten können, und dass auch kleine Temperaturgradienten, die über lange Zeiten wirken, einen nennenswerten Transport verursachen könnten /NAV 04/. Damit bleibt die Relevanz der Thermoosmose weiterhin eine offene Frage.

Tab. 9-1 Matrix der direkten und gekoppelten Fließphänomene (Onsager-Matrix). – „Fluid“ ist die Summe der mobilen Fluidkomponenten im Falle der Chemoosmose und Wasser im Falle der Elektroosmose. „Lösungskomponente“ ist ein Ion im Falle der Hyperfiltration und Elektrophorese.

		<i>Potenzialgradient (thermodynamische Kraft)</i>			
		<i>thermischer</i>	<i>hydraulischer</i>	<i>chemischer</i>	<i>elektrischer</i>
<i>thermodynamischer Fluss von</i>	<i>Wärme</i>	Wärmeleitung	Thermische Filtration	Dufour-Effekt	Peltier-Effekt
	<i>Fluid</i>	Thermoosmose	Advektion	Chemoosmose	Elektroosmose
	<i>Lösungskomponenten</i>	Thermodiffusion (Soret-Effekt)	Hyperfiltration	Diffusion	Elektrophorese
	<i>Ladungsträgern</i>	Seebeck- oder Thompson-Effekt	Rouss-Effekt	Diffusion & Membran-Potenzial	Elektrische Leitung

9.5.2 Befunde

Chemoosmose

- Ein chemoosmotischer Wassertransport wurde von Neuzil (1994, zit. in /HOR 96/) im Pierre Shale von Süd-Dakota nachgewiesen. Über den Zeitraum von 7 Jahren wurden Bohrlöcher beobachtet, in die Wässer mit unterschiedlicher Salinität eingebracht worden waren. Im Falle hypersalinarer Lösungen stiegen die Wasserspiegel um 3 bis 4 Meter aufgrund der Chemoosmose an.
- An Proben des Opalinustons wurden im Labor relativ geringe osmotische Effizienzen von 1 bis 6 % ermittelt; in-situ Messungen parallel zur Schichtung des Opalinustons in Mont Terri ergaben eine osmotische Effizienz von 12 % /NAG 02/. Nach Abschätzungen Solers /SOL 99/ sind die osmotischen Effizienzen und die zu erwartenden osmotischen Druckdifferenzen zu gering, um nennenswerte chemoosmotische Flussdichten im Opalinuston zu erzeugen.

Analytische und numerische Abschätzungen der Relevanz gekoppelter Fließphänome

- Abschätzungen zur Relevanz verschiedener gekoppelter Fließphänomene in Kaolinit und Bentonit unter generischen Endlagerbedingungen wurden von Carnahan vorgenommen /CAR 84, HOR 96/. Die Untersuchungen zeigten, dass die größten Flussdichten an die Thermoosmose und Chemoosmose geknüpft sind.
- Soler untersuchte analytisch und numerisch die zu erwartenden Flussdichten der gekoppelten Fließphänomene für ein Endlager im Opalinuston (elektrische Potentiale wurden nicht berücksichtigt) /SOL 99, SOL 01/. Chemoosmose und die Thermoosmose wiesen die höchsten Flussdichten auf, waren jedoch gegenüber der zu erwartenden diffusiven und advektiven Flussdichten zu vernachlässigen. Die Vernachlässigung der Thermoosmose begründete Soler durch das Auftreten entgegen gerichteter advektiver Flüsse. Der Annahme Solers, dass generell eine vollständige Kompensation unter stationären Bedingungen auftritt, wird in /NAV 04/ widersprochen.

9.5.3 Stand der Wissenschaft

- Thermische Filtration und Dufour-Effekt sind derzeit wenig verstandene Transportphänomene /MAZ 03/.
- Verschiedene Untersuchungen bestätigen, dass durch Thermoosmose potenziell hohe Flussdichten in einem Endlager für wärmeproduzierende Abfälle erzeugt werden können. Diese Ergebnisse beruhen allerdings auf wenigen Experimenten an Tonen, deren Endlagerbezug nicht immer klar ist. Da die Wirksamkeit der advektiven Kompensation aufgrund neuerer Untersuchungen der GRS Köln in Zweifel gezogen werden kann, ist eine erneute Auseinandersetzung mit dem Phänomen der Thermoosmose notwendig.

9.5.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Es zeichnet sich ab, dass Hyperfiltration, Chemoosmose und Thermoosmose die einflussreichsten gekoppelten Transportphänomene darstellen. Der Effekt der Hyperfiltration kann in Sicherheitsanalysen indirekt z.B. durch modifizierte Retardationsfaktoren berücksichtigt werden. Liegen im Bereich der Radionuklidquelle erhöhte Stoffkonzentrationen vor, so verlangsamt die Chemoosmose den Radionuklidtransport.

Eine Vernachlässigung der Chemoosmose dürfte daher in vielen Fällen eine konservative Annahme sein. Thermoosmotische Flüsse beschleunigen den Radionuklidtransport und sind somit nicht ohne weiteres vernachlässigbar. Zur Wirksamkeit der Thermoosmose ist weiterführende Grundlagenforschung erforderlich. Darüber hinaus sollten für die Tone eines jeden Standortes experimentelle Untersuchungen der thermoosmotischen Durchlässigkeiten erfolgen.

9.5.5 Auswahl relevanter Projekte

- Im Felslabor Mont Terri wurden osmotische Effizienzen für den Opalinuston ermittelt (Corisé et al. in /AND 02/, Beitrag O-11-2).
- Die advective Kompensation thermoosmotischer Flüsse in einem Endlager wurde durch die GRS Köln anhand eines numerischen Modells untersucht /NAV 04/.

9.6 Radionuklidtransport durch freie Konvektion

9.6.1 Prozesse

Bei Einlagerung wärmeproduzierender radioaktiver Abfälle besteht allgemein die Möglichkeit eines Fluidtransportes durch freie Konvektion. In Tonen ist diese Möglichkeit stark eingeschränkt, da die hydraulischen Durchlässigkeiten gering sind und evtl. ein Schwellwert für den hydraulischen Gradienten zur Erzeugung eines konvektiven Flusses überwunden werden muss.

9.6.2 Befunde

Numerische Simulationen der freien Konvektionströmung im Boom Clay und in den überlagernden neogenen Sanden zeigten, dass im Ton auch bei Gültigkeit des Darcyschen Gesetzes (d.h. auch bei Abwesenheit von Schwellwerten für den hydraulischen Gradienten) kein Partikeltransport durch freie Konvektion stattfindet (Cordier & Goblet in /PUT 92/).

9.6.3 Stand der Wissenschaft

Die hydraulische Durchlässigkeit im Bereich kleiner hydraulischer Gradienten ist weitgehend unbekannt; entsprechend problematisch ist die Berechnung freier Konvektionsströmungen. Allerdings kann durch Vernachlässigung eines etwaigen Schwellwertes für den hydraulischen Gradienten, der für eine Advektion oder freie Konvektion überwunden werden muss, der maximale Transport durch Konvektion abgeschätzt werden.

9.6.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Wegen der geringen hydraulischen Permeabilitäten und der zeitlichen Beschränkung der Wärmeproduktion ist freie Konvektion i.d.R. nicht relevant für den Radionuklidtransport im tonigen Wirtsgestein. Ein Nachweis dessen kann unter Annahme hydraulischer Permeabilitäten durchgeführt werden, die unter hohen hydraulischen Gradienten ermittelt wurden, da dies konservativ hinsichtlich des frei-konvektiven Flusses ist.

9.6.5 Auswahl relevanter Projekte

Es liegen derzeit keine Informationen zu aktuellen Projekten vor.

9.7 Radionuklidtransport an Kolloiden

9.7.1 Prozesse

Kolloide werden definiert als Partikel mit Abmessungen zwischen 1 nm und 1 µm. Sie können zum Transport von Radionukliden beitragen, wenn sie diese sorbieren und mobil sind. Kolloide können u.A. aus Eisenhydroxyden, Tonmineralen oder anderen Silikaten gebildet werden; auch kommen organischen Substanzen aus natürlichen und anthropogenen Quellen in Frage. Natürliche organische Kolloide werden überwiegend durch Huminstoffe gebildet.

Die Porendurchmesser in Tonen liegen je nach Kompaktionsgrad meist bei einigen Nanometern, wobei die effektiven Porendurchmesser für die negativ geladenen

Kolloide wegen der elektrostatischen Felder der Tonminerale wesentlich kleiner sind (Anionen-Ausschluss). Tone wirken daher meist als gute Kolloidfilter. Ausnahmen bilden Tone mit Klüften oder Mikrorissen, die so gut vernetzt sind, dass eine freie Passage der Kolloide möglich wird. Dies kann beispielsweise in der EDZ der Fall sein.

9.7.2 Befunde

Opalinuston

- In natürlichen Porenwässern des Opalinustones in Mont Terri wurde im Größenbereich von 1 bis 10 nm eine Kolloidkonzentration von 10 ppt bis 20 ppt gefunden. Huminstoff-Kolloide waren nicht nachweisbar /MAZ 03/.

Boom Clay

- Der Boom Clay wird aufgrund der geringen Porendurchmesser (< 5 nm) als effizienter Ultrafilter für Kolloide angesehen /NIR 01, EUR 04/.

Natürliche Analoga

- Untersuchungen am natürlichen Analogon Cigar Lake zeigten, dass Tone als gute Kolloidfilter wirken können /MIL 00/.

9.7.3 Stand der Wissenschaft

Kolloide sind messtechnisch schwer zu erfassen /MIL 00/. Die Methode der Ultrazentrifugation kann nur im Labor durchgeführt werden, wobei mit Veränderung der Kolloidkonzentration während des Transportes zum Labor zu rechnen ist. Ferner können kleine Kolloidkonzentrationen nicht genau erfasst werden. Die Methode der Ultrafiltration kann bei Feldmessungen eingesetzt werden, allerdings kann sich die Größenverteilung der Kolloide während der Passage durch die Membran verändern. Durch hochauflösende spektroskopische Detektionstechniken, wie die laserinduzierte Breakdown-Detektion (LIBD), sind in der letzten Zeit allerdings große Fortschritte bezüglich der Analyse der Kolloid-Größenverteilung und der von Radionukliden belegten Bindungsplätze erzielt worden.

Nur wenige Studien haben sich bisher mit der Bildung und der Stabilität von Kolloiden in tonigen Gesteinen befasst, weshalb die Kenntnis der zugrunde liegenden Prozesse noch gering ist /MAZ 03/.

9.7.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

In vielen Tonen kann der Kolloidtransport vernachlässigt werden. Eine konservative Abschätzung ist die Annahme einer fehlenden Retardation für Radionuklide, die an Kolloide komplexieren /MAZ 03/.

9.7.5 Auswahl relevanter Projekte

Es liegen keine Informationen zu aktuellen Projekten vor.

9.8 Radionuklidtransport an gelösten organischen Stoffen

9.8.1 Prozesse

Radionuklide können mit gelösten organischen Stoffen komplexieren. Wegen der geringen Porendurchmesser und dem Mechanismus des Anionen-Ausschlusses (Ultrafiltration) ist die Mobilität organischer Kolloide in Tonen vernachlässigbar, sofern kein Transport in Bruch- und Rissnetzwerken möglich ist. Gelöste, nicht-kolloidale organische Stoffe können jedoch mobil sein.

Organische Stoffe können in einem Endlager einerseits als natürliche Gesteinskomponente und andererseits als Abfallbestandteil auftreten. Eine wichtige Klasse natürlicher organischer Substanzen sind die Huminstoffe, deren lösliche Anteile die Humin- und Fulvinsäuren sind. Eine bedeutende Quelle organischen Materials in niedrig- und mittelaktiven Abfällen ist Zellulose, u.A. aus Holz und Papier stammend. Daneben sind auch Ionenaustausch-Harze wichtige Lieferanten organischen Materials.

9.8.2 Befunde

Löslichkeit von organischem Material

- Oxidations-Experimente mit dem Tonstein des Standortes Bure (CO_x-Ton) ergaben, dass eine hohe Alkalinität, die durch Anwesenheit von Zement oder Beton im Endlager erzeugt werden kann, die Löslichkeit des natürlichen organischen Materials erhöht (Elie et al. in /AND 02/, Beitrag O-2a-3). Der pH-Wert kontrolliert dabei die Art der freigesetzten organischen Säuren. Auch in Perkulationsversuchen mit Boom Clay wurde bei Verwendung von Zementwasser mit pH 13,5 ein starker Anstieg an gelöstem organischen Kohlenstoff gemessen (Cannière et al. in /AND 02/, Beitrag P-AA-08). Die Lösung der organischen Bestandteile des Boom Clay war bei Verwendung von Zementwasser mit pH 12,5 deutlich schwächer ausgeprägt.

Komplexbildung durch Huminstoffe /MAZ 03/

- Besonders dreiwertige Übergangsmetalle, Lanthaniden und Actiniden bilden starke Komplexe mit Huminstoffen. Die Stabilität von Metall-Humat-Komplexen steigt generell mit Erhöhung des pH-Wertes und der Huminstoff-Konzentration relativ zur Metallkonzentration. Die Stabilität ist nur schwach von der Art der Huminstoffe sowie der Ionenstärke abhängig.

Untersuchung im Opalinuston des Zürcher Weinlandes und des Felslabors Mont Terri /NAG 02/

- Die gemessenen Konzentrationen des löslichen organischen Kohlenstoffs (DOC) lagen zwischen 5 und 15mg/l, jedoch war der Anteil an Huminstoffen sehr gering. Es wurde festgestellt, dass der größte Teil der gelösten organischen Substanz organische Makromoleküle sowie organische Moleküle mit niedrigem Molekulargewicht sind. Diese können jedoch nur wenige Liganden binden und sind damit für die Komplexierung von Radionukliden weniger relevant.

Untersuchungen am Boom Clay im Rahmen des EC-Projektes TRANCOM-II /EUR 04/

- Uran bildet bei Anwesenheit natürlicher organischer Substanz Kolloide, die im Boom Clay immobil sind, jedoch kaum mobile organische Komplexe. Bei Anwesenheit organischer Substanz wurde eine höhere Löslichkeit von U(IV)-Oxid

beobachtet. Der Hauptteil des gelösten U(IV) lag in Form von organischen und anorganischen U(IV)-Kolloiden vor. Nur ein geringer Anteil bestand aus organischen U(IV)-Komplexen, deren Konzentration auch durch Erhöhung des Anteils an organischer Substanz nicht anstieg. In Batch-Experimenten war die Löslichkeit von UO_2 bei Anwesenheit organischer Substanz aufgrund der Kolloidbildung um bis zu 4 Größenordnungen höher als die von amorphem UO_2 .

- Organische Stoffe verlangsamten die Ausfällung von kristallinem Se^0 nach Reduktion von SeO_3^{2-} in Anwesenheit von FeS_2 . Vermutlich findet durch organische Kolloide eine Stabilisierung von Se-Kolloiden statt. SeO_4^{2-} , amorphes Se^0 , kristallines Se^0 und Metallselenide zeigten keine Interaktion mit der natürlichen organischen Substanz des Boom Clay. Se bildet damit keine mobilen organischen Komplexe, sondern nur Kolloide, die im Boom Clay aufgrund der geringen Porenradien immobil sind.
- Allgemein zeigt Americium eine starke Neigung zur Komplexbildung an organische Substanz; im Boom Clay sind diese Komplexe jedoch instabil. Im Experiment war die Freisetzung von Am mit dem Gehalt an gelöster organischer Substanz korreliert, was die Anwesenheit organischer Am-Komplexe anzeigt. Die gemessene Am-Konzentration lag jedoch unterhalb der Löslichkeitsgrenze von Am. Die Kinetik der Bildung und Destabilisierung von organischen Am-Komplexen konnte durch das im TRANCOM II-Projekt entwickelte Modell POPCORN gut abgebildet werden. Dabei wurde die Instabilität der organischen Am-Komplexe durch kinetische Adsorptionskonstanten für immobile und mobile organische Substanz beschrieben, wobei eine Filterung durch den Ton berücksichtigt wurde.

Bildung von Komplexbildnern durch Degradation organischer Abfälle im Boom Clay
/MAZ 03/

- Degradationsexperimente mit organischen Abfällen führten zur Bildung von Komplexbildnern wie ISA (α -Isosaccharinsäure) und Oxalsäure. Sie erhöhen die Löslichkeit von Pu(IV) und Am(III) um ca. eine Größenordnung.

9.8.3 Stand der Wissenschaft

Die Degradationsprodukte organischer Abfälle sind sehr vielfältig und ihre Einflüsse auf die Sorption von Radionukliden wenig bekannt. Die Zusammensetzung der gelösten organischen Substanz unter Einwirkung hochalkalischer Lösungen ist analytisch

schwer zu ermitteln. Geringe Kenntnisse bestehen bezüglich der Mobilität und Stabilität von Humin- und Fulvinsäure-Komplexen in Tonsteinen /MAZ 03/.

9.8.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die Interaktionen zwischen Radionukliden und Huminstoffen sind derzeit nur unzureichend bekannt. Eine Möglichkeit zur Berücksichtigung mobiler organischer Sorbenten in Stofftransportmodellen ist die Vorgabe einer höheren Löslichkeit bzw. einer geringeren Sorption für Radionuklide, die mit löslichen organischen Stoffen Komplexe bilden (belgische Vorgehensweise). Auch kann eine Unsicherheitsbandbreite für die Löslichkeit angesetzt werden (spanische Vorgehensweise). Im Projekt Entsorgungsnachweis der NAGRA wurde der Einfluss organischer Komplexmittel im Opalinuston durch das sog. „konservative-Dach“-Modell beschrieben. Dieses Modell liefert konservative Werte für eine bestimmte Bandbreite des pH-Wertes, der Metallkonzentration und der Ionenstärke, die aus eigenen Messungen und nachvollziehbaren Literaturdaten abgeleitet wurden.

9.8.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt „Transport of radionuclides due to complexation with organic matter in clay formations“. Zielsetzung: Erstellung eines Migrationsmodells sowie Ermittlung von Modellparametern zur Bewertung des Einflusses organischer Substanz auf die Sicherheit eines Endlagers in Ton. U.a. Untersuchungen zur Migration organischer Masse im Boom Clay anhand ^{14}C - und ^{125}I -markierter organischer Substanz aus den Porenwässern. Laufzeit: 1.1.1996 – 31.12.1998.
- EC-Projekt TRANCOM II (URL HADES): Zielsetzung: Untersuchung von Transportprozessen in reduzierenden Tonen durch Batch-Experimente und Beschreibung durch numerische Modelle. Laufzeit: 1. 9. 2000 – 31. 8. 2003.
- EC-Projekt HUPA: Zielsetzung: Untersuchung des Einflusses von Huminstoffen auf die Actiniden- und Iodid-Migration im Fernfeld (Experimente und Entwicklung numerischer Modelle). Laufzeit: 1. 11. 2001 – 31. 10. 2004.
- In der Schweiz und in Belgien sind weitere Untersuchungen geplant. Derzeit werden im Boom Clay großskalige Diffusionsexperimente mit ^{14}C -markiertem organischem Material durchgeführt /MAZ 03/.

9.9 Gasgetriebener Transport von Radionukliden

9.9.1 Prozesse

Korrosions- und Degradationsgase können eine Gasphase bilden, deren Transport in der Gesteinsmatrix einen Fluidtransport induzieren kann. Ein solcher Vorgang ist vor allem dann zu erwarten, wenn der Transport der Gasphase mehr oder weniger raumgreifend abläuft. Gastests zeigen jedoch oft eine starke Lokalisation der Gastransportpfade und daher nur eine geringe Fluidbewegung.

9.9.2 Befunde

- An Bohrkernen des Opalinustones aus dem Felslabor Mont Terri wurden Gasinjektionstests durchgeführt. Der durch die Gasinjektion herbeigeführte Wassertransport war sehr gering. Die Proben zeigten eine Entsättigung von nur 7 % /MAZ 03/.
- Gasinjektionstests wurden ebenfalls an Bohrkernen des Boom Clay vorgenommen. Der Gastransport war intermittierend, was auf ein sich wiederholendes Bilden und Zusammenbrechen lokalisierter Gasmigrationswege schließen ließ. Der Wassertransport war sehr gering und die Proben zeigten lediglich eine Entsättigung von 3 % /MAZ 03/.

9.9.3 Stand der Wissenschaft

Der gasgetriebene Fluidtransport hängt wesentlich von der Struktur der Gasmigrationspfade ab, d.h. es ist von Relevanz, ob die Gasphase eine geschlossene Front bildet oder sich „auffingert“. Experimentelle Befunde zeigen sowohl für gering als auch für stark verfestigte Tone, dass die Migration der Gasphase stark lokalisiert abläuft, da sie nur eine geringe Entsättigung herbeiführt. Dies könnte bedeuten, dass die Struktur der Gasmigrationspfade komplex und mehrskalig ist, so dass die numerische Berechnung dieser Pfade einen sehr breiten Skalenbereich abdecken müsste. Dies ist aus Gründen der heutigen Rechenleistung problematisch. Problematisch ist auch, dass die Gastransportprozesse, insbesondere für stark verfestigte Tone, noch nicht ausreichend verstanden sind. Ebenfalls besteht ein genereller

Informationsmangel hinsichtlich der Gesteinsdiskontinuitäten, die auf verschiedenen Skalen auftreten und den Gastransport lenken können.

9.9.4 Behandlung in Sicherheitsanalysen

Die Untersuchungen am Opalinuston und am Boom Clay zeigen, dass der Transport einer Gasphase zu keinem nennenswerten Fluidtransport führt /EUR 03b/. Der Prozess wird daher oft als vernachlässigbar angesehen.

9.9.5 Auswahl relevanter Projekte

- EC-Projekt PEGASE (A Community project on the effects of gas in underground storage facilities for radioactive waste): Zielsetzung: U.a. Untersuchung der Gasentwicklung und des Gastransportes unter Endlagerbedingungen in Ton (Bentonit, Boom Clay) sowie Injektionsexperimente im URL HADES. Laufzeit: 1. 8. 1991 – 31. 12. 1994.
- EC-Projekt MEGAS (Modelling and experiments on gas migration in repository host rocks): Zielsetzung: Untersuchung der Wirkung der Gasentwicklung in tonigem Wirtsgestein. Validierung eines Gasmigrationsmodells anhand eines in-situ-Gasinjektions-Experimentes. Laufzeit: 1. 3. 1991 – 31. 5. 1995.
- EC-Projekt PROGRESS (Research into gas generation and migration in radioactive waste repository systems): Zielsetzung: Experimentelle Untersuchung der Gasgenerierung von Abfällen, Untersuchung von Gasmigrationsmechanismen (geklüftete Festgesteine, Salz und Ton), Untersuchung der Gasmigration in geologischen Systemen. Laufzeit: 1. 5. 1996 – 30. 4. 1999.
- Verschiedene Gastests im Opalinuston Rahmen des Projekts Entsorgungsnachweis der NAGRA /NAG 02/.
- EC-Projekt GASNET (A thematic network on gas issues in safety assessment of deep repositories for nuclear waste): Zielsetzung: Zusammenfassung und Bewertung der derzeitigen Behandlung der Gasproblematik in Sicherheitsanalysen und Entwicklung von Leitlinien für zukünftige Sicherheitsanalysen. Laufzeit: 1. 9. 2001 – 29. 4. 2004.

10 Zusammenfassung des Forschungsbedarfs

Anhand der vorausgegangenen Prozessbetrachtung lassen sich folgende Prozesse identifizieren, die weiter erforscht werden müssen:

*Prozesse, deren Quantifizierung im Wesentlichen aufgrund der **großen Zeitskalen** schwierig ist:*

- Selbstheilung in stark verfestigten Tonen aufgrund hydromechanischer und geochemischer Prozesse (in Hinblick auf EDZ und Gasmigration)
- Rückhaltung durch Mitfällung
- Illitisierung von Smektiten durch hochalkalische Lösungen
- Langsame Pufferungs-Reaktionen

*Prozesse, deren Quantifizierung im Wesentlichen aufgrund **experimenteller Beschränkungen oder Ungenauigkeiten** schwierig ist:*

- Räumlicher Aspekt der EDZ-Entwicklung
- Advective Strömung bei niedrigen hydraulischen Gradienten (Abweichungen vom Darcyschen Gesetz?)
- Diffusion auf verschiedenen Skalen (Diffusionskoeffizienten und diffusionswirksame Porositäten)
- Sorption auf verschiedenen Skalen

*Prozesse, deren Quantifizierung im Wesentlichen aufgrund der **Prozesskomplexität** schwierig ist:*

- Migration einer Gasphase, insbesondere in stark verfestigten Tonen
- Aufsättigung der entsättigten Wirtsgesteinszone
- Thermisch induzierte hydromechanische Prozesse
- Gekoppelte Fließphänomene

Prozesse, deren Quantifizierung im Wesentlichen aufgrund **hoher oder unbekannter stofflicher Variabilität** schwierig ist:

- Löslichkeit organischer Stoffe
- Radionuklidtransport an mobilen organischen Stoffen
- Mikrobielle Aktivität
- Thermodynamisches Verhalten von Spurenelementen bei hohen Salinitäten und hohen Temperaturen
- Illitisierung von Smektiten durch hochalkalische Lösungen

11 Bewertung toniger Wirtsgesteine

11.1 Charakteristische Eigenschaften

Ton und Tonsteine sind unter mineralogischen, chemischen, mechanischen und hydraulischen Gesichtspunkten gesehen sehr variable Gesteine. Dennoch lassen sich u.A. aus den vorangegangenen Prozessbetrachtungen einige charakteristische Eigenschaften toniger Wirtsgesteine identifizieren, die sich günstig oder ungünstig auf die Langzeitsicherheit einer Endlagerung bzw. deren Nachweis auswirken.

Folgende Eigenschaften sind oft bei tonigen Wirtsgesteinen realisiert und wirken sich **günstig** auf die Langzeitsicherheit einer Endlagerung oder deren Nachweis aus:

- **Geringe hydraulische Permeabilität:** Diese Eigenschaft unterdrückt einen Radionuklidtransport durch Advektion und freie Konvektion. Sie ist an ein Fehlen von durchlässigen Bruchnetzwerken gebunden und damit am ehesten im unaufgelockerten Bereich des Endlagersystems zu finden. Selbstheilungsmechanismen, die sich am besten für gering verfestigte Tone nachweisen lassen, verringern die hydraulische Permeabilität der Auflockerungszone.
- **Geringe effektive Diffusivität:** Zumindest im Fernfeld der geologischen Barriere ist Diffusion der wichtigste Transportmechanismus. Die effektive Diffusivität ist speziesabhängig und wegen des Anionenausschlusses besonders für negativ geladene Spezies klein.
- **Hohes Sorptionsvermögen:** Die hohe Sorptionsfähigkeit ist eine wichtige Barriereneigenschaft, die spezifisch für tonige Wirtsgesteine ist. Tonige Gesteine besitzen ein gutes Sorptionsvermögen insbesondere für positiv geladene Spezies.
- **Gute Kolloid- und Mikrobenfiltration:** Die kleinen Porenräume und der Anionenausschluss verringern den Schadstofftransport an Kolloiden und Mikroben erheblich, was die Vernachlässigung zweier schwer zu quantifizierender Prozesse erlaubt.
- **Selbstheilungsfähigkeit:** Durch die Selbstheilungsfähigkeit können Risse und Brüche, die z.B. mechanische Einwirkungen oder durch die Migration einer

Gasphase entstehen, hydraulisch wirksam verschlossen werden. Die Selbstheilungsfähigkeit ist insbesondere bei plastischen Tonen hoch und auf den Zeitskalen von Laborexperimenten gut erfassbar. Bei stark verfestigten Tonen ist die Quantifizierung der Selbstheilungsfähigkeit wegen der Langsamkeit der Prozesse schwierig.

- **Schichtungsbedingte mechanische Anisotropie:** Durch eine schichtungsbedingte mechanische Anisotropie wird das Wachstum und die Dilatanz von Rissen, die parallel zur Schichtung orientiert sind, bevorzugt. In dieser Richtung ist das Wirtsgestein meist praktisch unbegrenzt. Wenn sich keine durchlässigen Störungen in der Nähe des Endlagers befinden, könnte daher eine Gasmigration, die von einer Rissdilatanz oder einem Risswachstum begleitet wird, in die Schichtungsebene gelenkt werden, ohne dass die Integrität der geologischen Barriere gestört würde. Die Wirksamkeit dieses Prozesses ist allerdings bislang wenig erforscht worden.
- **Vorhandensein eines Redox- und Säurepuffers:** Redox- und Säurepuffer sind wichtig zur Stabilisierung der Tonminerale und des Porenwasserchemismus gegenüber der Einwirkung sauerstoffhaltiger Bewitterungsluft. Besonders Pyrit und karbonatische Minerale erfüllen diese Funktion und sind in vielen Tonen anwesend.
- **Homogenität in horizontaler Richtung:** In tektonisch ungestörten Tonen sind viele physikochemische Eigenschaften in horizontaler Richtung sehr homogen und skalunenabhängig ausgeprägt.

Ungünstig für die Langzeitsicherheit einer Endlagerung oder deren Nachweis sind folgende, bei tonigen Wirtsgesteinen oft anzutreffende Eigenschaften:

- **Geringe Mächtigkeit:** Wegen der sehr geringen Sedimentationsraten toniger Sedimente ist die vertikale Ausdehnung ungestörter toniger Ablagerungen oft gering (die horizontale Ausdehnung ist dagegen oft sehr groß).
- **Verminderte Rückhaltefähigkeit für neutral geladene Spezies:** Die Rückhaltefähigkeit für neutrale Spezies ist vermindert, da sie weder sorbiert noch durch den Mechanismus des Anionenausschlusses zurückgehalten werden.

- **Starke Kopplung zwischen thermischen, chemischen, hydraulischen und mechanischen Prozessen:** Die Prozesskomplexität stellt nicht unbedingt ein Sicherheits-, aber ein Quantifizierungsproblem dar.

Mit dem Verfestigungsgrad verändern sich verschiedene Eigenschaften toniger Wirtsgesteine, wobei folgende Tendenzen festzustellen sind:

- Eine Verfestigung kann durch eine starke Konsolidierung oder Zementation erreicht werden. Hierdurch verringert sich der diffusionswirksame Porenraum, so dass eine hohe Verfestigung tendenziell eine geringe effektive Diffusivität zur Folge hat.
- Durch die Verfestigung verringert sich tendenziell die Selbstheilungsfähigkeit, da die Kriechraten vermindert sind und der meist hohe Überkonsolidierungsgrad eine Verheilung durch Scherkonsolidierung verhindert.
- Ein hoher Verfestigungsgrad ist i.d.R. Ergebnis einer tiefen Versenkung der Tonformation. Während der Versenkung findet mit der Zeit eine Umwandlung von Smektiten zu Illiten und Smektit-Illit-Wechselagerungsmineralen statt, was zu einer Verminderung der Sorptionsfähigkeit des Tons führt /DEE 92/. Damit verringert sich mit zunehmendem Verfestigungsgrad tendenziell die Sorptionsfähigkeit. Einfluss auf die Sorptionsfähigkeit hat allerdings auch der Anteil an organischer Substanz, der nicht vom Verfestigungsgrad abhängt.

11.2 Ableitung von Barrierefunktionen

Die oben genannten charakteristischen Eigenschaften zeichnen folgendes Bild der Barrierewirkung toniger Wirtsgesteine:

Im ungestörten tonigen Wirtsgestein ist Diffusion der dominante Transportprozess. Er kontrolliert im Verbund mit verschiedenen Sorptionsmechanismen die Radionuklid-ausbreitung. Allerdings wird das tonige Wirtsgestein im Laufe der Endlagerkonstruktion und der erwarteten Endlagerentwicklung zwei wesentlichen Störungen ausgesetzt, welche die Diffusionsdominanz beseitigen oder zu einer schnelleren Diffusion führen können: Die erste Störung ist die bruchhafte Auflockerung des Gebirges infolge der Endlagerkonstruktion, die zweite ist die Schaffung von Wegsamkeiten durch erhöhte Gasdrücke im Endlager (Mikro- oder Makrorisse). Die Auflockerungszone hat wegen ihrer relativ geringen, radial zu den Strecken gemessenen Dicke von einigen Metern

überwiegend nur Bedeutung für den Transport parallel zu den verfüllten Endlagerhohlräumen (die sich letztendlich über abgedichtete Schächte und Rampen bis zur Biosphäre erstrecken). Die gasinduzierte Bildung von Wegsamkeiten für den Radionuklidtransport kann jedoch wesentlich weiter ins Gebirge hinein wirken und damit möglicherweise die Barrierewirkung des Wirtsgesteins gefährden. In tonigen Wirtsgesteinen können, insbesondere, wenn sie nur schwach verfestigt sind, hydromechanisch induzierte hydraulische Wegsamkeiten von selbst wieder verheilen, so dass die Barriereigenschaften des ungestörten Gesteins wieder hergestellt werden.

Aus der geschilderten Barrierewirkung folgt, dass toniges Wirtsgestein grundsätzlich in der Lage sein kann, einen einschlusswirksamen Gebirgsbereich im Sinne der Definition des *Arbeitskreises Auswahlverfahren Endlagerstandorte (AkEnd) /AKE 02/* zu bilden. Dabei lässt sich folgende Hauptfunktion der geologischen Barriere ableiten:

- Hauptfunktion einer aus tonigem Material bestehenden geologischen Barriere ist die wahrscheinliche oder sichere Beschränkung der Freisetzungsmengen oder -raten von Schadstoffen innerhalb akzeptabler Werte im betrachteten Nachweiszeitraum.

Diese Hauptfunktion setzt sich aus folgenden Teilfunktionen zusammen:

- **Gewährleistung eines langsamen Radionuklidtransports im ungestörten Zustand:** Das tonige Wirtsgestein sollte im ungestörten Zustand geringe Transportgeschwindigkeiten von Radionukliden gewährleisten. Dies sollte durch eine Diffusionsdominanz des Transports und durch eine ausreichend hohe Sorptionsfähigkeit erreicht werden.
- **Robustheit gegenüber hydromechanischen Störungen:** Das tonige Wirtsgestein sollte robust gegenüber hydromechanischen Störungen sein, die Wegsamkeiten für den Radionuklidtransport eröffnen. Entweder sollten sich die hydraulischen Eigenschaften des ungestörten Gesteins von selbst wieder einstellen können (Selbstheilung) oder die entstandenen Wegsamkeiten sollten den Radionuklidtransport lediglich in eine unbedenkliche Richtung lenken (bei einer Tonschicht schichtungsparallel, sofern sich keine durchlässigen Störungen in Endlagernähe befinden).

Die Kombination der für die Erfüllung der Barrierefunktionen wesentlichen Eigenschaften „hohe Dichtigkeit“, „hohe Sorptionsfähigkeit“ und „Robustheit gegenüber hydromechanischen Störungen“ ist charakteristisch für tonige Wirtsgesteine und unterscheidet diese von den Wirtsgesteinstypen Salz und Kristallin.

11.3 Einfluss des Verfestigungsgrades auf die Barrierequalität

In Abhängigkeit vom Verfestigungsgrad verschieben sich die Eigenschaften, die potenziell ungünstig für die Langzeitsicherheit ausfallen und damit die Erfüllung der Barrierefunktionen beeinträchtigen können. Entsprechend Abschnitt 11.1 sind folgende Tendenzen festzustellen (die nicht auf jede Tonformation zutreffen müssen):

- Gering verfestigte Tone weisen tendenziell eine höhere effektive Diffusivität auf. Dies wird jedoch durch eine erhöhte Sorptionsfähigkeit abgemildert.
- Stark verfestigte Tone sind weniger robust gegenüber gasinduzierten und anderen mechanischen Störungen, da die Selbstheilungsfähigkeit reduziert ist. Dies kann jedoch durch eine schichtungsbedingte mechanische Anisotropie abgemildert werden, die bevorzugt zu einem Wachstum oder einer Dilatanz von Rissen führt, die parallel zur Schichtung orientiert sind. Wegsamkeiten, die den Radionuklidtransport in die Schichtebene lenken, sind wegen der meist hohen Ausdehnung von Tonschichten in dieser Richtung verhältnismäßig unproblematisch, sofern in der Nähe des Endlagers keine durchlässigen Störungen auftreten. Die Wirksamkeit dieses Prozesses ist allerdings noch nicht ausreichend erforscht.

Die Möglichkeit der gasinduzierten Bildung dauerhafter Wegsamkeiten für den Radionuklidtransport kann durch eine Beschränkung der Gasgenerierungsraten reduziert werden. Da ein gasinduziertes Risswachstum überwiegend in stark verfestigten Tonen mit geringer Selbstheilungsfähigkeit ein Problem darstellt, ist dieser Wirtsgesteinstyp weniger geeignet, Abfälle mit sehr hoher Gasgenerierungsrate aufzunehmen, sofern keine Speicherräume bereitgestellt werden, welche die anfallenden Gasmengen auffangen können.

11.4 Probleme der Nachweisbarkeit

Es ist davon auszugehen, dass die Einfachheit eines Endlagersystems hinsichtlich seines Aufbaus und der ablaufenden Prozesse die Vertrauensbildung in die beim Langzeitsicherheitsnachweis verwendeten konzeptuellen Modelle und Methoden erhöht. Günstig für die Vertrauensbildung ist die strukturelle Einfachheit von Tonformationen. Problematisch ist dagegen die Prozesskomplexität, die durch die starke, tonspezifische Kopplung von thermischen, chemischen, hydraulischen und mechanischen Prozessen entsteht und i.d.R. ein Quantifizierungsproblem mit sich bringt.

Substanzielle Quantifizierungsprobleme aufgrund hoher Prozesskomplexität sind weniger mit der Barrierefunktion „Gewährleistung eines langsamen Radionuklidtransports im ungestörten Zustand“, als vielmehr mit der Barrierefunktion „Robustheit gegenüber hydromechanischen Störungen“ verbunden. Dies betrifft i.W. stark verfestigte Tone. Hinsichtlich des Störeinflusses der EDZ (Auflockerungszone) können stark verfestigte Tone zwar über die Dauer der Abfallbehälter-Lebenszeiten gesehen über eine ausreichende Selbstheilungsfähigkeit verfügen, jedoch lässt sich diese auf den Zeitskalen von Labor- und Feldversuchen nicht so überzeugend nachweisen wie für gering verfestigte Tone. Für stark verfestigte Tone kann dennoch ausgeschlossen werden, dass eine gasinduzierte Rissbildung die Integrität des Wirtsgesteins stört, wenn der Nachweis gelingt, dass eventuell durchlässig verbleibende mikro- oder makroskopische Risse sich überwiegend schichtungsparallel ausbreiten. Dies wäre bei Abwesenheit durchlässiger Störungszonen in der Nähe des Endlagers als unbedenklich einzustufen. Darüber hinaus kann man versuchen zu zeigen, dass die Gasgenerierungsraten so klein sind, dass eine makroskopische Rissbildung gar nicht erst einsetzt. Diese Nachweise sind problematisch, weil die Mechanismen der Gasmigration in stark verfestigten Tonen noch nicht gut verstanden sind und die Prognose der Gasgenerierungsraten mit Unsicherheiten verbunden ist. Hieraus folgt, dass gering verfestigte Tone einen deutlichen Vorteil gegenüber stark verfestigten Tonen haben, wenn es darum geht nachzuweisen, dass die Barrierefunktion „Robustheit gegenüber hydromechanischen Störungen“ erfüllt wird.

Es gibt eine Reihe von Prozessen, die grundsätzlich günstig für die Erfüllung der Barrierefunktionen sind, die aber derzeit in Sicherheitsanalysen vernachlässigt werden müssen, weil sie nicht ausreichend gut quantifizierbar sind. Sie können daher lediglich als Sicherheitsreserve angesehen werden. Hierunter fallen folgende Prozesse:

- **Mitfällung:** Allgemein wird anerkannt, dass Mitfällungsprozesse ein großes Rückhaltepotenzial besitzen, doch ist ihre Quantifizierung derzeit noch sehr schwierig. Weitere Grundlagenforschung ist erforderlich, um diesen Prozess für den Langzeitsicherheitsnachweis nutzbar zu machen.
- **Unterdrückung eines advektiven Transports bei niedrigen hydraulischen Gradienten** (Abweichungen vom Darcyschen Gesetz): Die Existenz von Schwellwerten zur Aktivierung advektiver Flüsse lässt sich zwar qualitativ nachweisen, aber nur schlecht quantifizieren. Daher wird in Sicherheitsanalysen meist konservativer Weise von einer Gültigkeit des Darcyschen Gesetzes auch bei niedrigen hydraulischen Gradienten ausgegangen, wobei man Permeabilitäten zugrunde legt, die experimentell bei hohen hydraulischen Gradienten ermittelt wurden.
- **Selbsteilung durch chemische Prozesse:** Kluffüllungen sind ein weit verbreitetes geologisches Phänomen, ihre Entstehung im Endlagersystem kann jedoch wegen der Komplexität der geochemischen Langzeitentwicklung nicht vorhergesagt werden.
- *Eventuell in stark verfestigten Tonen:* **Selbsteilung durch hydromechanische Prozesse und Lenkung der Gasphasenmigration in die Schichtebene:** Der Nachweis dieser Prozesse kann für stark verfestigte Tone problematisch sein. Ist ein vertrauensbildender Nachweis nicht möglich, so könnten sie als Sicherheitsreserve angesehen werden. Dies wäre allerdings nicht verträglich mit den oben gegebenen Definitionen der Barrierefunktionen toniger Wirtsgesteine.

11.5 Folgerungen für das Multibarrierensystem

Der *Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte* (AkEnd) hat in seiner Empfehlung /AKE 02/ die Zielsetzung des Mehrbarrierenprinzips folgendermaßen beschrieben:

„Ziel der mehrfachen Barrieren ist die wirkungsvolle Verhinderung eines Schadstoffaustrages im geforderten Isolationszeitraum, wobei die Leistung der Barrieren in ihrer Wirkung als Gesamtsystem liegt. Die einzelnen Komponenten des Systems müssen dabei aufeinander abgestimmt sein und sollen sich in ihrer zeitabhängigen Wirksamkeit ergänzen. Dies gilt insbesondere für die beiden Hauptgruppen der geologischen und der technischen Barrieren. Die zeitliche Wirksamkeit technischer Barrieren ist

vornehmlich von den geologischen Verhältnissen abhängig, und auch umgekehrt ergänzt eine Endlagerkonzeption mit technischen Barrieren eine günstige geologische Gesamtsituation.“

In diesem Sinne ergibt sich die Mindestfunktion der technischen Barriere in einem Multibarrierensystem mit einer tonigen geologischen Barriere aus der oben angesprochenen Problematik der Prozesskomplexität. Die Bedeutung komplexer und daher schwer zu quantifizierender Prozesse in Zusammenhang mit der Selbstheilung und der abfallbedingten thermischen Störung kann durch eine geeignete Auslegung der technischen Barriere verringert werden. In der Nachbetriebsphase klingt die Prozesskomplexität mit der Stärke der durch das Endlager verursachten thermischen, hydraulischen und mechanischen Störungen ab. Eine wichtige Mindestfunktion der technischen Barriere in tonigem Wirtsgestein ist daher die Verzögerung der Radionuklidfreisetzung, bis eine Selbstheilung des Wirtsgesteins stattgefunden und die Temperaturstörung durch die Abfälle nachgelassen hat.

Bei einer technischen Barriere, die lediglich diese Mindestfunktion erfüllt, würde ein frühzeitiges, totales Versagen zwar wegen der stärker ins Gewicht fallenden Prozesskomplexität die Vertrauensbildung in den Langzeitsicherheitsnachweis erschweren; mit großer Wahrscheinlichkeit würde der Wegfall der technischen Barriere aber wegen des hohen Rückhaltepotenzials des tonigen Wirtsgesteins nicht zu einem Versagen des Multibarrierensystems führen.

Grundsätzlich ist es möglich, mit tonigem Wirtsgestein ein Multibarrierensystem aufzubauen, dessen Sicherheitsfunktion bei Versagen oder bei mangelnder Vertrauenswürdigkeit entweder der technischen oder der geologischen Barriere von der jeweils anderen Barriere gewährleistet wird. Hierzu müssten jedoch hohe Anforderungen an die technische Barriere bezüglich des Isolationszeitraums gestellt werden, wie dies etwa bei der Endlagerung in geklüftetem Festgestein der Fall ist.

Die Bereitstellung reduzierender Bedingungen im Porenwasser des Nahfelds ist eine wichtige Bedingung für die Wirksamkeit einer technischen Barriere, bei der der Isolationszeitraum durch die Korrosion metallischer Abfallbehälter kontrolliert wird. In dieser Hinsicht unterstützen die meisten Tonformationen die Wirksamkeit der technischen Barriere, indem sie reduzierende Verhältnisse einstellen und über einen ausreichenden Redox-Puffer verfügen.

12 Schlussfolgerung

Aus den charakteristischen Eigenschaften toniger Wirtsgesteine lässt sich ableiten, dass dieser Wirtsgesteinstyp grundsätzlich in der Lage ist, einen einschlusswirksamen Gebirgsbereich zu bilden. Seine Barrierefunktionen umfassen einerseits die Verlangsamung des Radionuklidtransports im ungestörten Zustand durch Diffusionsdominanz und hohe Sorptionsfähigkeit und andererseits die Robustheit gegenüber hydro-mechanischen Störungen. Schwach verfestigte Tone besitzen allgemein eine höhere Robustheit gegenüber hydromechanischen Störungen, während stark verfestigte Tone im ungestörten Zustand tendenziell eine stärkere Verlangsamung des Radionuklidtransports ermöglichen. Die Qualität toniger Wirtsgesteine ist letztendlich standort-spezifisch mit Blick auf das Gesamtverhalten des Endlagersystems zu prüfen.

Auf dem Gebiet der Endlagerung radioaktiver Abfälle in Tonen wird derzeit sowohl national als auch international intensiv geforscht. Für die Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH am Standort Köln ergibt sich hieraus die Anforderung, die nationalen und internationalen Aktivitäten weiter zu verfolgen und für eine mögliche Prüfung toniger Wirtsgesteine in Deutschland nutzbar zu machen. Zur Durchführung eigener Bewertungen zur Endlagerung in Ton sollte das in der GRS Köln vorhandene Instrumentarium an Codes an tonspezifische Fragestellungen angepasst und gegebenenfalls erweitert werden. Die Gasmigration in verfestigten Tonen betrachtet die GRS Köln als ein wichtiges, aber derzeit noch nicht ausreichend verstandenes Problemfeld. Vergleiche und Bewertungen der derzeitig verwendeten numerischen Modellkonzepte zur Gasmigration werden als erforderlich angesehen.

13 Literatur

Die mit * gekennzeichneten Literaturstellen sind im Auftrag des BMU erstellte GRS-A-Berichte bzw. Statusberichte. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere dürfen solche Berichte nur mit seiner Zustimmung zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.

- /AKE 02/ Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte: Auswahlverfahren für Endlagerstandorte – Empfehlungen des AkEnd, Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte, Dezember 2002.
- /AND 01/ ANDRA: Dossier 2001 Argile, Progress report on feasibility studies & research into deep geological disposal of high-level, long-lived waste, Synthesis report and synthesis report part B. – Eigenverlag ANDRA, Dez. 2001.
- /AND 02/ ANDRA: Clays in natural and engineered barriers for radioactive waste confinement, Abstracts of an international meeting in Reims (France), Eigenverlag ANDRA, 9–12 Dez. 2002.
- /BMU 00/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Vereinbarung zwischen der Bundesregierung und den Energieversorgungsunternehmen vom 14. Juni 2000. – 2000.
- /CAR 84/ Carnahan, C. L.: Thermodynamic coupling of heat and matter flows in near-field regions of nuclear waste repositories. – Mat. Rec. Soc. Symp. Proc., 26, 1023-1030, 1984.
- /DEE 92/ Deer, W.A., Howie, R.A., und Zussman, J.: An introduction to the rock-forming minerals, 2nd Edition. – XVI + 696 S., Longman Scientific & Technical, Hong Kong, 1992.
- /ENR 99/ Evaluacion del comportamiento y de la seguridad de un almacenamiento profundo en arcilla, ENRESA report 3/99, Spanien, 1999.

- /EUR 98/ Europäische Kommission: Projects on the effects of gas in underground storage facilities for radioactive waste (Pegasus project), Proceedings of a progress meeting held in Mol, Belgium, 28 and 29 May 1997. – Europäische Kommission, EUR 18167 EN, 1998.
- /EUR 99/ Europäische Kommission/NEA: Gas migration and two-phase flow through engineered and geological barriers for a deep repository for radioactive waste, A joint EC/NEA status report. – EUR 19122 EN, 1999.
- /EUR 00/ Europäische Kommission: Research into gas generation and migration in radioactive waste repository systems (PROGRESS project), Final report. – Europäische Kommission, Nuclear Science and Technology, EUR 19133 EN, 2000.
- /EUR 03/ EURIDICE: Euridice News, Nr. 2, Sept. 2003.
- /EUR 03b/ Europäische Kommission: A thematic network on gas issues in safety assessment of deep repositories for radioactive waste (GASNET), Final report on the treatment in safety assessments of issues arising from gas generation. – Cordis Online-Veröffentlichung (www.cordis.lu), Aug. 2003.
- /EUR 03c/ Europäische Kommission: Impact of the excavation disturbed or damaged zone (EDZ) on the performance of radioactive waste geological repositories, Proceedings of a European Commission CLUSTER conference held in Luxembourg on 3-5 November 2003. – To be published in the EUR series, Preprint, 2003.
- /EUR 04/ Europäische Kommission: Euradwaste '04, Radiactive waste management, Community policy and research initiatives, 29 March – 1 April 2004, Luxembourg, Programme and abstracts. – European Commission, 2004.
- /EUR 04b/ ESV EURIDICE GIE: SELFRAC exchange meeting 4-10-2004, Presentation of the main achievements of the SELFRAC project. – ESV EURIDICE GIE, 2004.

- /HÖK 03/ Hökmark, H., Fälth, B.: Thermal dimensioning of the deep repository, Influence of canister spacing, canister power, rock thermal properties and nearfield design on the maximum canister surface temperature. – SKB Technical Report TR-03-09, 2003.
- /HOR 96/ Horseman, S. T., Higgo, J.J.W., Alexander, J., Harrington, J.F.: Water, gas and solute movement through argillaceous media. – OECD-NEA-Clay Club, Report CC-96/1, 1996.
- /HOR 03/ Horseman, S. T., Cuss, R. J., Reeves, H. J.: Clay Club Initiative: Self-healing of fractures in clay-rich host rocks. – in: “Stability and buffering capacity of the geosphere for long-term isolation of radioactive waste: application to argillaceous media, Provisional compilation of abstracts. An IGSC ‘Geosphere Stability’ workshop under the auspices of the NEA Clay Club, 9-11 Dec. 2003, Braunschweig, Germany”. NEA, S. 88-99, 2003.
- /IAEA 00/ IAEA: IAEA safety glossary, Terminology used in nuclear, radiation, radioactive waste and transport safety, Version 1.0., working material – Online-Veröffentlichung (<http://www.iaea.org>), April 2000.
- /IAEA 03/ IAEA: Radioactive waste management glossary, 2003 edition. – IAEA, Online-Veröffentlichung (<http://www.iaea.org>), 2003.
- /IKO 03/ Ikonen, K.: Thermal analyses of spent nuclear fuel repository. – Posiva Report POSIVA 2003-04, 2003.
- /JNC 00/ JNC: H12: Project to establish the scientific and technical basis for HLW disposal in Japan, Project overview report, JNC Report JNC TN1410 2000-001, April 2000.
- /JOC 02/ Jockwer, N., Wiczorek, K.: Untersuchung zur Gasfreisetzung und Wasserumverteilung im Opalinus-Ton des Mont Terri, Beitrag zum Projekt “Heater Experiment: Rock and Bentonite”, Abschlussbericht, GRS, GRS-181, Juli 2002.

- /JOH 02/ Johnson, L.H., Niemeyer, M., Klubertanz, G., Siegel, P., Gribi, P.:
Calculations of the temperature evolution of a repository for spent fuel,
vitrified high-level waste and intermediate level waste in Opalinus clay. –
NAGRA Technical Report 01-04, 2002.
- /KAE 03/ KAERI: MIGRATION '03, 9th international conference on Chemistry and
migration behavior of actinides and fission products in the geosphere,
Gyeongyu (Korea), September 21-26, 2003, Abstracts. – KAERI, 2003.
- /KOV 03/ Kovacs, L.: Digest on the results of short-term characterisation programme
of boda claystone formation, Puram report, Ungarn, 2003.
- /KRÖ 04/ Kröhn, K.-P: Modelling the Re-Saturation of Bentonite in Final Repositories
in Crystalline Rock. – GRS-Bericht GRS-199, 2004.
- /MAZ 03/ Mazurek, M., Pearson, F.J., Volckaert, G., Bock, H.: FEPCAT project:
features, events and processes evaluation catalogue for argillaceous
media. – NEA Report, 2003.
- /MIL 00/ Miller, W., Russel, A., Chapman, N., McKinley, I., Smellie, J.: Geological
disposal of radioactive wastes & natural analogues. – Waste management
series, volume 2, 316 S., Pergamon, 2000.
- /NAG 02/ NAGRA: Projekt Opalinuston, Synthese der geowissenschaftlichen
Untersuchungsergebnisse, Entsorgungsnachweis für abgebrannte
Brennelemente, verglaste hochaktive sowie langlebige mittelaktive Abfälle.
– NAGRA Technischer Bericht 02-03, Dez. 2002.
- /NAG 02b/ Project Opalinus Clay – Safety Report, Demonstration of disposal feasibility
for spent fuel, vitrified high-level waste and longlived intermediate level
waste (Entsorgungsnachweis), NAGRA Technischer Bericht NTB 02-05,
Dez. 2002.
- /NAG 02c/ NAGRA: Project Opalinus Clay, Models, Codes and Data for Safety
Assessment, Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified
high-level waste and long-lived intermediate-level waste
(Entsorgungsnachweis) – NAGRA Technischer Bericht 02-06, Dez. 2002.

- /NAV 04/* Navarro, M.: Zur Relevanz der Thermoosmose für den Radionuklidtransport in einem Endlager für wärmeproduzierende radioaktive Abfälle. – GRS-A-3180, 2004.
- /NEA 99/ OECD/NEA: International Peer Review of the Main Report of JNC's H12 Project to Establish the Technical Basis for HLW Disposal in Japan. – NEA/RWM/PEER(99)2, 1999.
- /NEA 00/ NEA: Porewater extraction from argillaceous rocks for geochemical characterisation, Methods and interpretations. – NEA Report, ISBN 92-64-17181-9, 2000.
- /NEA 01/ IGSC Working Group on Measurement and Physical Understanding of Groundwater Flow through Argillaceous Media (CLAY CLUB): Self-healing topical session, Proceedings, Nancy (France), 16 May 2001. – NEA, Sept. 2001.
- /NEA 01b/ OECD/NEA: Gas generation and migration in radioactive waste disposal, Workshop proceedings, Reims, France, 26-28 June 2000. – NEA, 2001.
- /NEA 03/ NEA: Stability and buffering capacity of the geosphere for long-term isolation of radioactive waste: application to argillaceous media, Provisional compilation of abstracts. An IGSC "Geosphere Stability" workshop under the auspices of the NEA Clay Club, 9-11 Dec. 2003, Braunschweig, Germany. – NEA, 2003.
- /NEA 03b/ OECD/NEA: SAFIR 2: Belgian R&D programme on the deep disposal of high-level and long-lived radioactive waste, An international peer review. – NEA report, ISBN 92-64-18499-6, 2003.
- /NEA 03c/ NEA: The French R&D Programme on deep geological disposal of radioactive waste - An international peer review of the "Dossier 2001 Argile". – NEA report, ISBN 92-64-18260-8, 2003.
- /NEA 04/ OECD/NEA: Eine internationale Expertenprüfung der radiologischen Langzeitsicherheitsanalyse der Tiefenlagerung im Opalinuston des Zürcher Weinlands. – ISBN 92-64-02064-0, OECD 2004, NEA No. 5569, 2004.

- /NIR 01/ ONDRAF / NIRAS: SAFIR 2, Safety assessment and feasibility interim report 2. – NIROND 2001-6 E, Dez. 2001.
- /PUT 92/ Put, M., Henrion, P.: Modelling of radionuclide migration and heat transport from an HLW-repository in Boom clay. – EUR 14156 EN-FR, 261 S., 1992.
- /REA 01/ Read, D., Glasser, F.P., Ayora, C., Guardiola, M.T., Sneyers, A.: Mineralogical and microstructural changes accompanying the interaction of boom clay with ordinary portland cement. – Advances in Cement Research, 13 (1), 2001.
- /SOL 99/ Soler, J. M.: Coupled transport phenomena in the opalinus clay: implications for radionuclide transport. – Paul Scherrer Institute, Waste Management Laboratory, PSI Report No. 99-07, 1999.
- /SOL 01/ Soler, M.: The effect of coupled transport phenomena in the Opalinus clay and implications for radionuclide transport. – Journal of Contaminant Hydrology, 53, pp. 63-84, 2001.
- /ZHA 04/ Zhang, C.-L., Rothfuchs, T., Moog, H., Dittrich, J., Müller, J.: Thermo-hydro-mechanical and geochemical behaviour of the callovo-oxfordian argillite and the Opalinus clay, Final report. – Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit mbH, GRS-202, 2004.

Verteiler

Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit

Referat RS III 2 5 x

Bundesamt für Strahlenschutz

AG 1 2 x

SE 3.4 (Herr Dr. Wollrath) 1 x

AG 3 1 x

Z, Bib 1 x

Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) 2 x

Forschungszentrum Karlsruhe (FZK)

Projektträger PTKA-WTE 1 x

Institut für Nukleare Entsorgung (INE) 1 x

GRS

Geschäftsführer (hah, ldr) je 1 x

Bereichsleiter (brw, erl, erv, lim, tes, prg) je 1 x

Projektbetreuung (uhl) 1 x

Projektleitung (rkj) 2 x

Abteilung 4010 (moe) 1 x

Abteilung 1150 (reh) 1 x

Abteilung 6020 (rop) 1 x

Abteilung 7030 (bat) 1 x

Bibliothek (hog) 1 x

Autor (nav) 3 x

Gesamtauflage: 33 x