



Physikalisch-Technische Bundesanstalt

DECKBLATT

	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	NNNNNNNNNN	NNNNNN	X A A X X	A A	NNNN	NN
EU 214	9K		---	MRA	EG	0001	00

Titel der Unterlage: Stellungnahme zum NLFB-Bericht
 "Stellungnahme zur Ableitung von Sorptionsdaten für Radionuklide aus experimentellen Untersuchungen im Bereich (Modellgebiet) der Schachtanlage Konrad", Archiv-Nr. 103692 vom 10.08.88


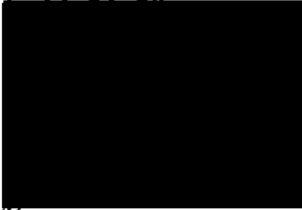
Seite: I.
Stand: 23.12.88
Textnummer:

Ersteller:

Stempelfeld:

PSP-Element TP.....:

zu Plan-Kapitel:

		PL 16.01.89 	PL 
--	--	--	---

Freigabe im Projekt

Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung der PTB.

Revisionsblatt



EU 214	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	N N N N N N N N N N	N N N N N N	X A A X X	A A	N N N N	N N
	9K		---	MRA	EG	0001	00

Titel der Unterlage: Stellungnahme zum NLFb-Bericht "Stellungnahme zur Ableitung von Sorptionsdaten für Radionuklide aus experimenteller Untersuchungen im Bereich (Modellgebiet) der Schachtanlage Konrad", Archiv-Nr. 103692 vom 10.08.88	Seite: II. <hr/> Stand: 23.12.88
--	---

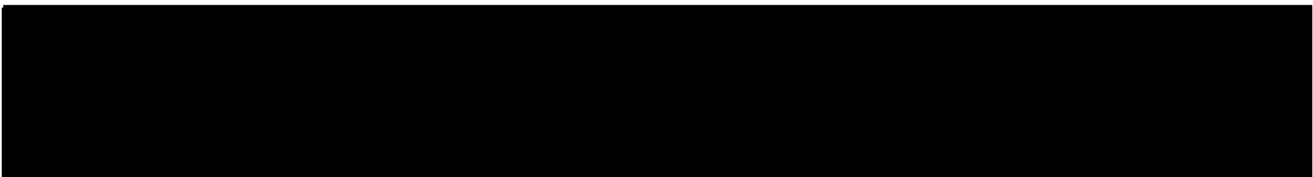
Rev.	Revisionsst. Datum	verant. Stelle	Gegenzeichn. Name	rev. Seite	Kat. *)	Erläuterung der Revision

*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur
 Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung
 Kategorie S = substantielle Änderung
 Mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden.

Physikalisch-Technische Bundesanstalt
Braunschweig und Berlin

Stellungnahme zum NfB- Bericht "Stellungnahme zur Ableitung von Sorptionsdaten für Radionuklide aus experimentellen Untersuchungen im Bereich (Modellgebiet) der Schachtanlage Konrad",
Archiv- Nr. 103 692 vom 10.08.1988

Braunschweig, 23. 12. 1988



Stellungnahme zum NLFB-Bericht "Stellungnahme zur Ableitung von Sorptionsdaten für Radionuklide aus experimentellen Untersuchungen im Bereich (Modellgebiet) der Schachtanlage Konrad", Archiv-Nr. 103 692 vom 10.08.1988

1. Vorbemerkung

In o. g. Bericht hat das NLFB die von der PTB für die Modellrechnungen zur Radionuklidausbreitung in den über- und unterlagernden Schichten der Schachtanlage Konrad bereitgestellten K_D -Werte, die auf umfangreichen experimentellen Untersuchungen zur Sorption von Radionukliden an standortspezifischen Proben basieren, kommentiert und Erläuterungsbedarf hinsichtlich der Festlegung einzelner K_D -Werte für bestimmte stratigraphische Einheiten aufgezeigt. Es muß aber darauf hingewiesen werden, daß nicht in allen Fällen vom NLFB sämtliche zur Verfügung stehenden Informationen in die Bewertung der Sorptionsdaten gleichwertig mit einbezogen wurden, was z. T. zu nicht zutreffenden Interpretationen des vorhandenen Datenmaterials führte.

Die vorliegende Unterlage soll dazu dienen, Unklarheiten in der Datenbasis zu den Sorptionseigenschaften der Konrad-Gesteine zu beseitigen.

Die Ableitung der K_D -Werte für die Elemente

- Technetium für die Gesteine Kimmeridge, Cornbrash und das zur Oberkreide gehörende Turon
- Caesium für die Gesteine Oxford, Kimmeridge, Bajocium, das zur Oberkreide gehörende Turon und den zur Unterkreide gehörenden Alb
- Jod für die Gesteine der Unterkreide, des Malm (Oxford und Kimmeridge) und des Dogger (Cornbrash und Bajocium)
- Kohlenstoff für die Gesteine der Oberkreide und des Bajociums
- Neptunium für die Gesteine Oxford, Hilssandstein und dem zur Unterkreide gehörenden Alb

- Plutonium, Americium und Curium für die Gesteine Hilssandstein, Kimmeridge, Dogger und Oberkreide
- Radium für die Gesteine Oxford, Kimmeridge, Bajocium, der Unterkreide und dem zur Oberkreide gehörenden Turon
- Thorium für die Gesteine, Oxford, Kimmeridge, der Unterkreide und Turon
- Selen, Niob, Strontium und Protactinium

wird vom NLFb als plausibel angesehen, auf weitere Ausführungen hierzu wird deshalb verzichtet.

Bevor zu den Fragen bezüglich der übrigen K_D -Werte Stellung genommen wird, soll kurz der Aspekt der unterschiedlichen radiologischen Relevanz der zu betrachtenden Radionuklide angesprochen werden. Ausgehend von den Ergebnissen der Modellrechnungen hinsichtlich der potentiellen Strahlenbelastung in der Biosphäre, die in /1/ ausführlich dargestellt sind, wird im Plan Konrad /2/ wie folgt zu dieser Frage Stellung genommen:

"Nennenswerte potentielle Strahlenexpositionen ergeben sich wegen der langen Laufzeiten des Transportmediums Wasser vom Endlager bis zur Biosphäre nur für langlebige Radionuklide und deren Zerfallsprodukte nach hunderttausenden von Jahren. Effektive Äquivalentdosen im Bereich von 10^{-5} Sv (mrem) errechnen sich nur für Jod in einem Zeitraum von ca. 300 000 Jahren bis ca. 360 000 Jahren.

Zwei bis vier Zehnerpotenzen geringere effektive Äquivalentdosen, die ohne Bedeutung für eine Strahlenexposition sind, resultieren für die Radionuklide Cl 36, Ca 41, Se 79 und Tc 99 zwischen ca. 300 000 Jahren und ca. 2 Millionen Jahren. Erst nach deutlich längeren Zeiten, d. h. mehreren Millionen Jahren, können weitere Strahlenexpositionen in gleicher Größenordnung und kleiner, wie vorstehend für J 129 aufgeführt, durch langlebige Aktiniden und deren Folgeprodukte auftreten. Als relevantes Aktinid erweist sich insbesondere U 238 wegen seiner Folgeprodukte U 234, Ra 226 und Pb 210, dessen den Sicherheitsanalysen zugrunde gelegte Aktivität von $6,7 \cdot 10^{12}$ Bq überschätzt angenommen wurde."

Vor dem Hintergrund der Tatsache, daß gemäß /3/ "für jenseits von 10000 Jahren liegenden Zeiträumen .. insbesondere der Ermittlung von Individualdosen keine belastbare Aussagekraft mehr zukommt und Betrachtungen der geologischen Gegebenheiten für Zeiträume jenseits von 10000 Jahren dazu dienen können, das Isolationspotential der Endlagerformation standortspezifisch zu prognostizieren", kommt den K_D -Werten daher nur eine untergeordnete Bedeutung zu.

Für diese Bewertung des Isolationspotentials der Schachtanlage Konrad sind daher nur die Elemente Jod und Uran mit den Folgeprodukten Radium und Blei relevant. Diese Gesichtspunkte müssen bei einer Diskussion und Bewertung der Sorptionsdaten mitberücksichtigt werden.

2. Grundlagen für die Ableitung der Sorptionsdaten

Stratigraphische Einheit	Sediment	Grundwasser	Randbedingungen
Malm	Oxford: Erzkalke Fladentonstein	mineralisiert	Keine Verdünnung, Verd. 1:10, 1:100 gegenüber Gruben- gebäude
	Kimmeridge	mineralisiert	
Dogger	Cornbrash	mineralisiert	Verd. 1:100
	Tonstein Bajocium	mineralisiert	Keine Verd., 1:10, 1:100 geg. Tab. 2
Unterkreide	Mergeltonstein Tonsteine (Alb, Hauterive)	mineralisiert	Keine Verd., 1:10, 1:100
	Hils		
Oberkreide	Cenoman	Modellwasser, schwach min.	Keine Verd., 1:10, 1:100
	Turon	süß	Keine Verd., 1:10, 1:100

Tab. 1: Sedimente, Grundwässer sowie Randbedingungen der im PTB-Bericht SE-IB-7 dargestellten Sorptionsdaten

Tabelle 1 zeigt Sedimente, Grundwässer sowie Randbedingungen der im PTB-Bericht SE-IB-7 dargestellten Sorptionsdaten für Ausbreitungsrechnungen.

Es wird hier noch einmal deutlich gemacht, daß die K_D -Werte aus den Experimenten mit Sedimenten aus der Tiefbohrung abgeleitet wurden. In den Fällen, wo die Experimente bereits abgeschlossen waren, z. B. beim Zr und Nb, wurden Abhängigkeiten auch aus Daten von Sedimenten aus Tagesaufschlüssen verwendet.

Nicht in die Modellierung einbezogen wurden

- Quartär sandig
bindig
- Versatz
- Heersumer Schichten (geringe Mächtigkeit)
- Erzlager hangender Teil) vom TÜV für das Grubengebäude
liegender Teil) modelliert.

Es werden nur die K_D -Werte begründet, die für die betreffende Schicht des Deckgebirges für die Ausbreitungsrechnungen verwendet wurden. Es wird noch einmal darauf hingewiesen, daß keine getrennte Modellierung der Tonsteine des Alb und der Tonmergelsteine des Hauterive durchgeführt wurde.

3. Erläuterungen zu den im NLfB-Bericht enthaltenen Fragen und Kommentaren

Für die Modellierung der Barrierewirkung der über- und unterlagernden Schichten können nur die Sorptionsdaten herangezogen werden, die im Einklang stehen mit den aus der berechneten großräumigen Grundwasserbewegung abgeleiteten Randbedingungen der Wasserpfadszenarien /1/.

Die experimentellen Untersuchungen zu den Sorptionseigenschaften der Konrad-Sedimente, die bereits in einem frühen Stadium der Eignungsuntersuchungen begonnen wurden, hatten zum Ziel,

- einen hinreichenden Überblick zu erhalten über das Sorptionsverhalten der untersuchten Radionuklide in Konrad-spezifischen Sediment/Grundwasser-Systemen und die beeinflussenden Parameter zu identifizieren und ihren Einfluß zu quantifizieren
- Sorptionsdaten entsprechend den Anforderungen der Modellrechner bereitstellen zu können.

Die in /4/ zusammengefaßten Sorptionsdaten berücksichtigen die Randbedingungen der verschiedenen Ausbreitungsszenarien.

Im NLfB-Bericht werden aber den für die Modellrechnungen verwendeten K_D -Werten unzulässigerweise Daten gegenübergestellt, die z. T. unter ganz anderen experimentellen Randbedingungen ermittelt wurden. Dies verdeutlichen die nachfolgenden Beispiele:

- bei den Elementen Zirkonium und Niob werden für das Turon R_G -Werte herangezogen, die mit für das Grubengebäude charakteristischem stark salinen Grundwasser erhalten wurden, obwohl für diese zur Unterkreide gehörende Formation, wie die Tab. 1 und 3 in /4/ zeigen, Süßwasser typisch ist
- das NLfB zieht für den Kimmeridge, das Erzlager (hangender und liegender Teil) und den Fladentonstein die mit Hilswasser gemessenen R_G -Werte der Elemente Nb, Pu (Am, Cm), U, Ra, Ni und Ac mit heran. Für diese Formationen sind aber nur die mit den für hohe Salinität charakteristischen Grundwässern der Str. 670 bzw. vom Ort 300 bestimmten Sorptionsdaten als repräsentativ anzusehen
- wie bereits in /4/ dargelegt und bei den Kommentaren zu diesem Element weiter erläutert, ist für Uran aufgrund der unterstellten niedrigen Verdünnungsfaktoren für alle Sedimente vom Nebengestein und über- bzw. unterlagernden Schichten von einem Einfluß der Konzentration auszugehen. Vom NLfB werden aber - zusätzlich zu dem im 2. Spiegelstrich aufgezeigten Aspekt der nicht repräsentativen Grundwässer - auch R_G -Werte mit einbezogen, die bei wesentlichen geringeren Elementkonzentrationen gemessen wurden und daher nicht den Anforderungen aus den

Modellrechnungen entsprechen

- entsprechend ist für die Elemente Zr, Th, Ni, Pb, Pu, Am, Cm und Ac aufgrund der geringen angesetzten Verdünnungsfaktoren ein merklicher Einfluß von EDTA auf die Sorptionsdaten zu berücksichtigen, wobei darauf hingewiesen werden muß, daß durch die Annahme eines EDTA-Effekts auch nach Zeiträumen von mehr als 10^4 Jahren trotz des Strahlungsfeldes und des großen Überschusses mit EDTA reagierender inaktiver Grundwasserbestandteile wie Fe, Ca und Mg die Sorption der o. g. Elemente unterschätzt wird. Das Heranziehen von R_S -werten, die im EDTA-freien Milieu gemessen wurden, durch das NLfB ist daher nicht zulässig. Weiterhin wurde bei der Heranziehung der Ergebnisse aus Durchlaufsäulenversuchen häufig nicht beachtet, daß die aus der Durchbruchkurve berechneten K_D -Werte nur das Sorptionsverhalten des mobilen Anteils der Radionuklide beschreiben. Sie berücksichtigen also nicht einen auf der Säule sorbierten Anteil. Bei der Bewertung von Säulenversuchen müssen neben den K_D -Werten auch die Wiedererhaltungsraten betrachtet werden.

Die Sorptionsexperimente dauerten sehr viel länger als ursprünglich geplant (in einigen Fällen wurden Versuche ein Jahr und länger verfolgt). Diese Versuchsdauern zusammen mit einer z. T. mehrmonatigen Voräquilibrierung der Sediment/Grundwasser-Proben wurden als notwendig erkannt, um belastbare, die Sorptionseigenschaften der Konrad-Gesteine realistisch beschreibende Daten zu erhalten. Daher wurden für die Rechnungen teilweise vorläufige Ergebnisse verwendet. Zur Vermeidung eines unnötigen Rechenaufwandes wurden diese Daten nicht mehr geändert, wenn sich gezeigt hat, daß die vorläufigen Daten niedriger waren als die endgültigen, die Sorption von Radionukliden somit unterschätzt wurde.

Die in den Tabellen der Anlagen 1 - 20 zum NLfB-Bericht enthaltene Auflistung von Sorptionskoeffizienten erweckt den Eindruck großer Schwankungsbreiten der experimentellen Daten für die einzelnen Formationen, was vom NLfB in den Kommentaren zum Jod- und Kohlenstoff auch angesprochen wird. Hierbei wird nicht berücksichtigt, daß die Sorptionsdaten abhängig sind von den chemischen Randbedingungen und ihren Änderungen insbesondere in der wässrigen Phase. Es muß darauf hingewiesen werden, daß die von der PTB

für die Modellrechnungen abgeleiteten K_D -Werte auf den experimentellen Daten beruhen, die unter den chemischen Randbedingungen ermittelt wurden, die auf die Ausbreitungsszenarien für die Nachbetriebsphase anwendbar sind. Wie aus den erläuternden Unterlagen /5/, /6/, /7/, /8/ zu ersehen ist, liegt die tatsächliche Bandbreite der Meßwerte in dem für solche komplexen Systeme zu erwartenden Rahmen.

Auf diese, u. a. auch auf den Fachgesprächen vom 25.05.1987 und 18.10.1988 dargestellten Gesichtspunkte, wird bei den Kommentaren zu den einzelnen Radionukliden nicht mehr eingegangen.

3.1 K_D -Werte des Technetium

Zu den K_D -Werten für die Sedimente Oxford, Bajocium, Hilssandstein und Unterkreide werden ergänzende Informationen gefordert.

Die PTB geht davon aus, daß zu dem für das Cenoman verwendeten K_D -Wert von 0 ml/g wie beim Turon keine Erläuterungen nötig sind.

Der K_D -Wert des Oxford wurde durch Mittelung der Meßwerte für die Proben "Fladentonstein" und "Erzkalke" /5/ nach dem bereits mehrfach beschriebenen Verfahren erhalten.

Bei den K_D -Werten für die übrigen Formationen handelt es sich um Meßwerte mit entsprechenden Proben aus der Tiefbohrung Konrad 101 /8/. Der Wert für die Unterkreide wurde durch Mittelung wie in Kap. 2 beschrieben erhalten.

3.2 K_D -Werte des Zirkonium

Es werden zusätzliche Erläuterungen zu den K_D -Werten für die Gesteine des Oxfords, des Cornbrash, des Oberbajocium und der Unterkreide gefordert.

Oxford:

In /4/ wird ausgeführt, daß von den bei einem EDTA-Gehalt von 10^{-3} Mol/l gemessenen R_G -Werten für die Erzkalke und den Fladentonstein ausgegangen wurde. Diese betragen 67,6 ml/g für die Erzkalke und 89,4 ml/g für den Fladentonstein (Tab. 61 in der erl. Unterlage /5/). Die Mittelung nach dem für den Oxford beschriebenen Verfahren (s. o.) führt zu einem Wert von 82,1

ml/g, der für die Modellrechnungen wie in der dem NMU übersandten Stellungnahme der PTB zum Aktenvermerk des TÜV Hannover vom 06.05.1988 (PTB-Schreiben SE-S.2/Bk/Op/9K/1321/D/A vom 07.07.1988) dargelegt, auf einen Wert von 80 ml/g abgerundet wurde. In /4/ wird gezeigt, daß die Meßwerte für einen EDTA-Gehalt von 10^{-3} Mol/l auch für den um den Faktor 10 niedrigeren EDTA-Gehalt angesetzt werden können, während bei einem EDTA-Gehalt von 10^{-5} Mol/l (Verdünnungsfaktor 100) der EDTA-Einfluß auf die Sorption des Zr zu vernachlässigen ist.

Cornbrash:

In /4/ wird ausgesagt: "EDTA- und Radionuklidgehalt sowie der pH-Wert sind gegenüber den Verhältnissen im Grubengebäude um den Faktor 100 geringer und beeinflussen daher die Sorptionsdaten der Elemente nur noch wenig."

Für Zr wurde daher auf der Basis der in /5/ enthaltenen Meßwerte ein K_D -Wert von 1000 ml/g für diese Formation festgesetzt.

Bajocium und Unterkreide:

Für beide Formationen wurden die R_S -Werte der zum Oxford gehörenden Probe "Fladentonstein" übertragen /4/. Die mit Zr und den chemisch sich ähnlich verhaltenden Elementen Th und Pu durchgeführten Sorptionsexperimente zeigen, daß der EDTA-Einfluß gegenüber den Sedimenteigenschaften überwiegt /5/, /7/, /8/, so daß die Übernahme der Fladentonsteinwerte aus Sicht der PTB gerechtfertigt ist.

Wie bereits in /4/ dargestellt, wird diese Vorgehensweise gestützt durch die gute Übereinstimmung der unter natürlichen Bedingungen für die Oxfordprobe "Fladentonstein" und die Bajociumprobe gemessenen Sorptionskoeffizienten des Cs, Np und U.

3.3 K_D -Werte des Caesium

Hier wird vom NLFb eine zusätzliche Begründung für die K_D -Werte der Gesteine des Cenoman, Alb, Hauterive und Cornbrash gefordert.

Für Cenoman und Cornbrash wurde, wie in /4/ angegeben, der Meßwert für die Proben aus der Tiefbohrung /5/ übernommen.

Die für die Alb- und Hauterive-Proben gemessenen R_S -Werte wurden

wie beschrieben gemittelt. Der so erhaltene Wert wurde dann in den Modellrechnungen als K_D -Wert der Unterkreide (außer Hilssandstein) verwendet.

3.4 K_D -Werte des Jod

Das NLFb hält "aufgrund der Streubreite der vorliegenden experimentellen Meßdaten die vorgeschlagenen K_D -Werte für die Gesteine des Turon und des Cenoman nicht für konservativ".

Wie in der Einleitung zu Kap. 3 näher ausgeführt, können Sorptionsdaten nur dann einander gegenübergestellt werden, wenn sie unter vergleichbaren Randbedingungen ermittelt wurden. Wird dies bei der Diskussion der Sorptionsdaten berücksichtigt, so verringert sich die in der Anlage 6 des NLFb-Berichts aufgezeigte Streubreite der experimentellen Daten für die Formationen Turon und Cenoman erheblich.

Die in den Batch-Versuchen unter natürlichen Bedingungen gemessenen R_S -Werte für Turon von 2 ml/g und Cenoman von 8,8 ml/g werden von den bei Durchlaufsäulenexperimenten unter entsprechenden Bedingungen festgestellten niedrigen Wiedererhaltungsraten von 86,6 % für Turon und 76,1 % für Cenoman voll bestätigt /5/.

Weiterhin zeigen die in der gleichen Größenordnung wie die R_S -Werte liegenden R_D -Werte, daß die Retardation des Jods auf einem reversiblen chemischen Prozeß beruht.

Die für Turon und Cenoman verwendeten K_D -Werte sind daher als ausreichend gesichert anzusehen.

3.5 K_D -Werte des Kohlenstoff

Für das NLFb sind die K_D -Werte für die Gesteine Unterkreide, Kimmeridge, Oxford und Cornbrash nicht nachvollziehbar.

Zum vom NLFb angesprochenen Punkt der "großen Diskrepanzen" zwischen den experimentell ermittelten R_S -Werten und K_D -Werten für die Modellrechnungen wurde einleitend bereits ausführlich Stellung genommen.

Die Vorgehensweise bei der Ermittlung der K_D -Werte für die Unter-

kreide und den Cornbrash (Proben aus der Tiefbohrung) wurde ebenfalls erläutert.

In /4/ wird ausgeführt, daß beim Kimmeridge auch die an Proben aus dem Grubengebäude gemessenen Daten in die Ableitung der K_D -Werte mit einbezogen wurden. Für diese Proben wurden in Batch-Versuchen R_G -Werte von 5 ml/g bis 20 ml/g für die verschiedenen Korngrößen gemessen, während aus Durchlaufsäulenversuchen K_D -Werte von 4 ml/g bis > 14 ml/g erhalten wurden. Aufgrund einer vorläufigen Versuchsauswertung von PTB für die Modellrechnungen wurde ein K_D -Wert von 4 ml/g für diese Probe festgesetzt. Dieser wurde - wie in der Einleitung zu Kap. 3 ausgeführt - später nicht mehr geändert, weil damit die Sorption unterschätzt wird. Für die Kimmeridge-Probe aus der Tiefbohrung wurde ein R_G -Wert von 14 ml/g gemessen. Die Mittelung der beiden Werte liefert den für die Modellrechnungen vorgeschlagenen K_D -Wert von 9 ml/g.

Im Falle des Oxfords wurde der aus einer vorläufigen Bewertung der Daten stammende, aus den Ergebnissen der Säulenversuche für den mobilen Kohlenstoff-Anteil abgeleitete K_D -Wert von 0,2 ml/g versehentlich anstelle des R_G -Wertes aus den Batchversuchen von 5 ml/g in den Modellrechnungen verwendet. Die Sorption des Kohlenstoffs im Oxford wird dabei unterschätzt.

3.6 K_D -Werte des Neptunium

Vom NlfB werden zusätzliche Informationen zur Ableitung der K_D -Werte des Turon, Cenoman, Hauterive, Kimmeridge und Cornbrash gefordert.

Zur Frage des NlfB, warum nicht die niedrigsten K_D -Werte für diese stratigraphischen Stufen verwendet wurden, ist anzumerken, daß jeweils von den Meßwerten ausgegangen wurde, die den zu unterstellenden Randbedingungen aus den Ausbreitungsszenarien entsprechen. Die Verwendung von Werten, die unter nicht vergleichbaren Versuchsbedingungen gemessen wurden, erscheint als nicht sinnvoll.

Die Vorgehensweise bei der Festlegung von Sorptionsdaten für die Unterkreide wurde bereits erläutert. Der K_D -Wert des Neptuniums ergibt sich durch Mittelung der Meßwerte für Alb (117 ml/g),

Unter-Alb (58 ml/g) und Hauterive (25 ml/g).

Wie bereits dargestellt, mußten für die Modellrechnungen wegen der langen Versuchszeiten z. T. vorläufige Ergebnisse berücksichtigt werden. Beim Neptunium gilt das für die an Proben aus der Tiefbohrung bestimmten Sorptionsdaten für Turon, Cenoman, Kimmeridge und Cornbrash. Die endgültigen Ergebnisse aus den Langzeitversuchen sind in Tab. 4.6-6 des Berichtes der TU München /8/ enthalten. Diese Werte zeigen, daß die tatsächliche Sorption des Np an diesen Sedimenten höher liegt. Die von der PTB auf der Basis vorläufiger Ergebnisse abgeleiteten K_D -Werte liegen somit auf der sicheren Seite und beschreiben das Sorptionsverhalten des Np hinreichend genau.

Hinsichtlich des K_D -Wertes für den Kimmeridge ist noch zu ergänzen, daß neben dem R_G -Wert von 22 ml/g für die Kimmeridge-Probe aus der Tiefbohrung (Versuchszeit 5 Wochen, Tab. 4.6-6 in /8/) auch die an Proben aus dem Grubengebäude gemessenen Werte von 44 ml/g und 14,3 ml/g (Tab. 4.6-26 in /8/) herangezogen wurden.

Durch Mitteln und Runden erhält man den in den Modellrechnungen verwendeten K_D -Wert von 30 ml/g.

3.7 K_D -Werte des Plutonium

Vom NLFb wird eine Begründung der abgeleiteten K_D -Werte für die Gesteine des Oxfords und der Unterkreide gefordert.

Basierend auf der im System Kimmeridge/Formationswasser des Korallenooliths gemessenen EDTA-Abhängigkeit wurde aufgrund einer vergleichenden Bewertung aller Ergebnisse zur EDTA-Abhängigkeit der Pu-Sorption für die Gesteine des Grubengebäudes und eine EDTA-Konzentration von 10^{-3} Mol/l ein K_D -Wert von 500 ml/g als Rechenwert festgelegt. Diese, das Sorptionsverhalten von Pu in Anwesenheit von EDTA hinreichend genau charakterisierende Wert wurde auch für das Oxford und die Unterkreide übernommen. Der in /8/ aufgeführte Meßwert von 458 ml/g, der praktisch mit dem Rechenwert übereinstimmt, wurde bei einer Kontaktzeit von nur 10 Wochen erhalten und kann wegen der festgestellten Zunahme der Sorptionsdaten mit der Zeit nicht als repräsentativ angesehen

werden. Die Zulässigkeit der Vorgehensweise wird bestätigt durch die an Tonsteinproben aus dem Dogger gemessene EDTA-Abhängigkeit der Pu-Sorption. Pu und chemisch ähnliche Elemente zeigen - wie auch aus anderen Untersuchungen bekannt - in natürlichen Systemen ein sehr gutes Sorptionsverhalten, das auch bei Anwesenheit von EDTA nicht entscheidend herabgesetzt wird.

3.8 K_D -Werte von Americium und Curium

Der Erläuterungsbedarf des NLFb zu diesen Elementen entspricht dem für Plutonium.

Für das Oxford und die Unterkreide wurden die beim Pu verwendeten Werte übernommen, deren Ableitung oben beschrieben ist.

3.9 K_D -Werte des Blei

Aus Sicht des NLFb sind die abgeleiteten K_D -Werte für die Konrad-Sedimente nicht ausreichend begründet.

Der EDTA-Einfluß auf die Sorption des Bleis wurde in 2 Versuchsserien für das System Turon/Süßwasser gemessen (Tab. 3-32 im Bericht des SFG Bamberg von 1984, /7/ und Tab. 3-46 im Bericht des SFG Bamberg von 1985/7/).

Trägt man die in diesen erläuternden Unterlagen dokumentierten Meßwerte gegen die EDTA-Konzentration auf, so lassen sich für die unterschiedlichen EDTA-Konzentrationen die in /4/ verwendeten Werte abschätzen. Diese wurden auch für die übrigen stratigraphischen Einheiten aus Nebengestein sowie über- und unterlagernden Schichten übernommen, da alle Untersuchungen zur EDTA-Abhängigkeit der Sorption von Radionukliden gezeigt haben, daß dieser Komplexbildner das Sorptionsverhalten stärker beeinflußt als die unterschiedliche Lithologie der Sedimente und die Unterschiede in der Zusammensetzung der zugehörigen Formationswässer.

Die Vorgehensweise bei der Ableitung der Sorptionsdaten des Bleis wurde u. a. auch auf dem Fachgespräch am 18.10.1988 beim NMU erläutert.

3.10 K_D -Werte des Uran

Die für dieses Element abgeleiteten K_D -Werte bedürfen aus Sicht des NLFB weiterer Erläuterungen.

Es wurde einleitend noch einmal ausführlich dargestellt, daß für alle Formationen der Einfluß der Urankonzentration auf die Sorption zu betrachten ist, um auf der sicheren Seite liegende Sorptionsdaten zu erhalten. Entsprechend den Randbedingungen der Ausbreitungsszenarien ist zu unterstellen, daß die sich im Modellvolumen des Grubengebäudes einstellende Urankonzentration längs des Ausbreitungswegs maximal um den Faktor 100 verdünnt wird. Die Abhängigkeit der Sorptionskoeffizienten von der Urankonzentration wurde für die zum Oxford gehörende Probe "Fladentonstein", für eine Probe aus dem Turon (Tab. 3-21 und 3-22 im SFG-Bericht von 1984, /7/) und für das zur Unterkreide gehörende Sediment "Alb" (Tab. 3-27 im SFG-Bericht von 1985, /7/) gemessen.

Oxford und Kimmeridge:

Für die Rückhaltung im Oxford sind die Sedimente "Erzkalke" und "Fladentonstein" bestimmend /4/. Für den Fladentonstein wird durch Extrapolation der Daten der Tab. 3-21 (SFG-Bericht von 1984, /7/) auf die Urankonzentration von 10^{-3} Mol/l (Konzentration wie im Grubengebäude) unter Berücksichtigung der gemessenen V/M-Abhängigkeit ein R_S -Wert von 2 ml/g abgeschätzt.

Das bedeutet eine Verringerung des für den Fladentonstein unter natürlichen Bedingungen erhaltenen R_S -Wertes von 6,1 ml/g (Tab. 3-51 im SFG-Bericht von 1984, /7/) um den Faktor 3. Für die um den Faktor 10 bzw. 100 verdünnten Konzentrationen wurden die entsprechenden Meßwerte aus o. g. Tab. 3-21, erniedrigt um den Faktor 0,8 für die V/M-Abhängigkeit verwendet.

Es wurde dann davon ausgegangen, daß sich der Konzentrations-Einfluß auf die Sorption am Oxforde sediment "Erzkalke" entsprechend auswirkt. Daher wurde der unter natürlichen Bedingungen gemessene R_S -Wert von 5,1 ml/g (Tab. 3-51, SFG-Bericht von 1984, /7/) ebenfalls um den Faktor 3 wegen des Konzentrationseffekts und den Faktor 0,8 zur Berücksichtigung der V/M-Abhängigkeit erniedrigt. Für das unverdünnte System (Konzentration wie im Grubengebäude) wird somit ein R_S -Wert von 1,4 ml/g erhalten.

Die R_S -Werte für die zu unterstellenden Verdünnungen im System Erzkalke/Formationswasser Korallenoolith wurden ausgehend von o. g. R_S -Wert von 1,4 ml/g mit der Steigung der gemessenen Kurve der Konzentrationsabhängigkeit für die betreffenden Konzentrationen extrapoliert. Die so erhaltenen Werte und die daraus abgeleiteten K_D -Werte sind in der nachfolgenden Tabelle dargestellt.

	R_S -Wert Erzkalke (ml/g)	R_S -Wert Fladen- tonstein (ml/g)	Mittelwert nach /3/	gerundeter K_D -Wert (ml/g) für Modellrechnungen
natürl. System ohne Parameter- variationen	5,1	6,1	-	-
Urankonzentra- tion 10^{-3} (Mol/l)	1,4	2	1,8	1,8
Urankonzentra- tion 10^{-4} (Mol/l)	1,7	2,5	2,2	2
Urankonzentra- tion 10^{-5} (Mol/l)	2,5	3,6	3,2	3

Tab.2 : Ableitung der K_D -Werte des Uran für den Oxford

Cornbrash:

Für den Cornbrash war von einer um den Faktor 100 geringeren Urankonzentration als im Grubengebäude auszugehen. In diesem Bereich wird die Sorption des U nur noch geringfügig von der Konzentration beeinflusst, so daß direkt von den unter natürlichen Bedingungen gemessenen Werten für die beiden Cornbrash-Proben (Tab. 3-5 im SFG-Bericht von 1984, /7/) ausgegangen wurde. Der in den Modellrechnungen verwendete Wert von 3 ml/g wurde durch Mittelung unter Berücksichtigung des Faktors 0,8 für die V/M-Abhängigkeit und nach Aufrunden erhalten.

Unterkreide:

Für die zur Unterkreide gehörende Probe "Alb" wurden R_S/R_D -Werte im Konzentrationsbereich von $2 \cdot 10^{-7}$ Mol/l bis 10^{-4} Mol/l gemessen (Tab. 3-27, erl. Unterlage lfd. Nr. 7). Durch Extrapolation der

Meßwerte auf die Konzentration von 10^{-3} Mol/l (Urankonzentration wie im Grubengebäude) wird ein R_S -Wert von 17 ml/g erhalten, für die Urankonzentration von 10^{-4} Mol/l und 10^{-5} Mol/l (Verdünnung der Verhältnisse im Grubengebäude um den Faktor 10 bzw. 100) wurden die Meßwerte übernommen. Für die übrigen Unterkreideproben Unter-Alb und Hauterive, für die keine Daten zur Konzentrationsabhängigkeit der Uransorption vorlagen, wurde die mit der Alb-Probe gemessene Abhängigkeit zugrunde gelegt. Dabei wurde folgendermaßen vorgegangen:

aus den gemessenen R_S -Werten wurde mit der Beziehung

$$\text{sorbierter Anteil in Prozent} = \frac{R_S}{R_S + 1} \cdot 100$$

der sorbierte Anteil in Prozent berechnet und gegen die zugehörigen Urankonzentrationen aufgetragen. Wie die Werte in /7/ zeigen, ist unterhalb einer Urankonzentration von ca. 10^{-7} Mol/l ein Konzentrationseffekt zu vernachlässigen, so daß der zu dieser Konzentration gehörende R_S -Wert zu vergleichen ist mit den unter natürlichen Bedingungen erhaltenen R_S -Werte der anderen Unterkreide-Sedimente.

Es wird davon ausgegangen, daß diese Kurve den Einfluß der Konzentration auf die Sorption des Urans in für die Unterkreide typischen Sediment/Grundwasser-Systemen mit ausreichender Genauigkeit beschreibt.

Für die Proben Unter-Alb und Hauterive wurden aus den unter natürlichen Bedingungen ohne Parametervariationen gemessenen R_S -Werten die sorbierten Anteile in Prozent ausgerechnet. Von diesen Anfangswerten ausgehend, wurde mit der Steigung der gemessenen Kurve der Konzentrationsabhängigkeit auf höhere Urankonzentrationen extrapoliert. Bei den Konzentrationen 10^{-3} Mol/l, 10^{-4} Mol/l und 10^{-5} Mol/l wurden die entsprechenden adsorbierten Anteile bestimmt, die dann in R_S -Werte umgerechnet wurden. Die K_D -Werte für die Unterkreide wurden durch Mittelung dieser Werte für die Proben Alb, Unter-Alb und Hauterive erhalten.

Hilssandstein:

Die K_D -Werte des Hilssandsteins für die verschiedenen Urankonzen-

trationen wurden wie vorstehend für die Unterkreide beschrieben aus der an der Alb-Probe gemessenen Konzentrationsabhängigkeit der Uransorption ermittelt.

Oberkreide:

Für das zur Oberkreide gehörende Turon wurden die für die verschiedenen Urankonzentrationsdaten experimentell bestimmten R_S -Werte übernommen.

Diese wurden, wie in /4/ dargestellt, zur Berücksichtigung des Konzentrationseffekts auch für das Cenoman angesetzt.

Bei der Überprüfung der Sorptionsdaten wurde festgestellt, daß die in den Modellrechnungen verwendeten K_D -Werte für die Unterkreide, den Hilssandstein und die Oberkreide nicht die V/M-Abhängigkeit der Uran-Sorption berücksichtigen. Hierzu müssen die in /4/ erhaltenen Werte noch mit dem Faktor 0,8 multipliziert werden.

3.11 K_D -Werte des Radiums

Seitens NLFb bestehen Fragen zu den K_D -Werten für das Cenoman und den Cornbrash.

Die Mittelung der für die beiden Cornbrash-Proben aus der Tiefbohrung Konrad 101 erhaltenen R_S -Werte /7/ führt zu dem in den Modellrechnungen verwendeten K_D -Wert von 1,5 ml/g.

Bei den für die Oberkreide-Gesteine Turon und Cenoman verwendeten K_D -Werten handelt es sich, wie in /4/ ausgeführt, um abgerundete Meßwerte mit Proben aus der Tiefbohrung.

3.12 K_D -Werte des Nickel

Beim NLFb besteht Erläuterungsbedarf zur Ableitung der K_D -Werte für die stratigraphischen Einheiten außer der Oberkreide.

Es wurde einleitend noch einmal ausführlich dargestellt, daß Nickel zu den Elementen gehört, für die in allen Formationen der Einfluß von EDTA auf die Sorption zu betrachten ist, um auf der sicheren Seite liegende Sorptionsdaten zu erhalten. Entsprechend den Randbedingungen der Ausbreitungsszenarien ist zu unterstel-

len, daß die sich im Grubengebäude einstellende EDTA-Konzentration von 10^{-3} Mol/l längs des Ausbreitungswegs maximal um den Faktor 100 verdünnt wird.

Die Abhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des Nickel von der EDTA-Konzentration wurde für die zum Oxford gehörende Probe "Heersumer Schichten" (auch als Trümmerkalke bezeichnet) und für zwei Proben aus dem Turon (Tab. 3-37 im SFG-Bericht von 1984, Tab. 3-47 im SFG-Bericht von 1985, /7/) bestimmt.

Die im System "Heersumer Schichten" Trümmerkalke/salines Formationswasser des Korallenoolith gemessene EDTA-Abhängigkeit der Nickel-Sorptionsdaten wurde auf die Gesteine des Oxfords, den Kimmeridge, das Bajocium, den Cornbrash, die Unterkreide und den Hilssandsstein übertragen. Dabei wurde so vorgegangen, wie in Kap. 3.9 "K_D-Wert des Urans" für die Unterkreide-Sedimente Unter-Alb und Hauterive beschrieben:

- die für die "Heersumer Schichten" gemessenen R_G-Werte wurden in den sorbierten Anteil in Prozent umgerechnet und gegen die EDTA-Konzentration aufgetragen.
- diese Kurve wurde auf die o. g. Formationen übertragen, wobei die in den sorbierten Anteil umgerechneten, im natürlichen System ohne EDTA gemessenen R_G-Werte als Normierungspunkte dienten. Von diesen Anfangswerten ausgehend, wurde mit der Steigung der gemessenen Kurve für die EDTA-Abhängigkeit auf die höheren EDTA-Konzentrationen extrapoliert.
- dann wurden die zu den EDTA-Konzentrationen von 10^{-3} Mol/l, 10^{-4} Mol/l und 10^{-5} Mol/l gehörenden sorbierten Anteile bestimmt, die dann in R_G-Werte umgerechnet wurden.
- aus diesen R_G-Werten wurden dann nach den bereits mehrfach beschriebenen Verfahren (z. B. Ermittlung des K_D-wertes für den Oxford aus den Daten für die Proben "Erzkalke" und "Fladentonstein", wie in /4/ erläutert) die K_D-Werte für die jeweiligen Formationen abgeleitet. Für den Cornbrash wurde entsprechend den Randbedingungen nur für eine EDTA-Konzentration von 10^{-5} Mol/l ein K_D-Wert abgeleitet.

Für das Turon wurden die an den Proben aus der Tiefbohrung gemessenen gerundeten R_S -Werte für die verschiedenen EDTA-Konzentrationen übernommen /4/. Diese wurden auch für das Cenoman übernommen. Dabei wurden in Tab. 14 in der erläuternden Unterlage /4/ für die EDTA-Konzentration von 10^{-5} Mol/l (Verdünnung um den Faktor 100) versehentlich ein K_D -Wert von 25 ml/g anstelle des beim Turon verwendeten Wertes von 20 ml/g angegeben.

3.12 K_D -Werte des Thorium

Aus Sicht des NLfB sind die abgeleiteten K_D -Werte für das Cenoman, den Cornbrash und das Oberbajocium zu erläutern. Für das Cenoman wurde von der an der ebenfalls für Oberkreide gehörenden Turonprobe gemessenen EDTA-Abhängigkeit ausgegangen. Dabei wurde entsprechend der bei der Herleitung der konzentrationsabhängigen K_D -Werte des Urans für die Unterkreide (Kap. 3.9) und der Herleitung der von der EDTA-Konzentration beeinflussten K_D -Werte des Nickels (Kap. 3.11) beschriebenen Methode verfahren.

Für den Cornbrash war ein Verdünnungsfaktor von 100 entsprechend einer EDTA-Konzentration von 10^{-5} Mol/l zu betrachten. Wie in /4/ dargestellt, wird dadurch das Sorptionsverhalten der Elemente nur wenig beeinflusst. Daher wurde der durch Mittelung und Abrundung der unter natürlichen Bedingungen erhaltenen Meßwerte für die beiden Cornbrash-Proben aus der Tiefbohrung (Tab. 3-52 des Berichts von 1985, /7/) sich ergebende Wert in den Modellrechnungen verwendet.

Wie in /4/ ausgeführt, wird aufgrund der auch im NLfB-Bericht angesprochenen chemischen Ähnlichkeit von Zr und Th für das Bajocium bei einer EDTA-Konzentration von 10^{-3} Mol/l der entsprechende gemessene R_S -Wert des Zr für die Probe "Oxford-Tonmergelstein" /5/ übernommen. Auch für die EDTA-Konzentration von 10^{-4} Mol/l (Verdünnung um den Faktor 10) wird dieser Wert angesetzt, während für eine EDTA-Konzentration von 10^{-5} Mol/l (Verdünnungsfaktor um 100), die die Sorption von Zr und Th praktisch nicht mehr beeinflusst, analog zum Zr ein K_D -Wert von 100 ml/g festgelegt wurde.

3.13 K_D -Werte des Actinium

Beim NLfB besteht Erläuterungsbedarf zu den K_D -Werten für die

Deckgebirgsschichten mit Ausnahme der Oberkreidesedimente.

Wie einleitend dargestellt, gehört das Actinium zu den Elementen, für die in allen Formationen der Einfluß von EDTA auf die Sorption zu berücksichtigen ist, um auf der sicheren Seite liegende Sorptionsdaten zu erhalten. Entsprechend den Randbedingungen der Ausbreitungszenarien ist zu unterstellen, daß die sich im Grubengebäude einstellende EDTA-Konzentration von 10^{-3} Mol/l längst des Ausbreitungswegs maximal um den Faktor 100 verdünnt wird.

Die Abhängigkeit der Sorptionskoeffizienten des Actiniums von der EDTA-Konzentration wurde für das Cenoman für stark (Wasser der Strecke 670) und schwach (Söhlde - Wasser) mineralisiertes Wasser (Tab. 3 - 33 im SFG-Bericht von 1984, /7/) sowie an einer Turon-Probe aus der Tiefbohrung (Tab. 3-45 im SFG-Bericht von 1985, /7/) bestimmt.

Für das Oxford wurden die Meßwerte für das System Cenoman/Wasser der Strecke 670 bei einer EDTA-Konzentration von 10^{-3} Mol/l und 10^{-4} Mol/l verwendet. Für die EDTA-Konzentration von 10^{-5} Mol/l, die die Sorption des Ac nur noch wenig beeinflußt, wird der unter natürlichen Bedingungen gemessene R_S -Wert der Oxford-Probe "Fladentonstein" angesetzt.

Diese für das Oxford angesetzte EDTA-Abhängigkeit wurde auch auf den Kimmeridge, das Bajocium, die Formationen der Unterkreide und den Hilssandstein übertragen, wobei die beim Ni beschriebene Vorgehensweise (Kap. 3.11) bei der Ableitung von K_D -Werten aus gemessenen EDTA-Abhängigkeiten entsprechend angewendet wurde.

Für das Turon lagen Meßwerte vor, auf deren Basis wie beim Nickel im Kap. 3.11 beschrieben, die K_D -Werte für das Cenoman abgeleitet wurden.

3.14) K_D -Werte des Molybdän

Es ist zu begründen, warum in /4/ keine K_D -Werte für Molybdän enthalten sind.

Wie in Kap. 1 unter Bezug auf den Plan Konrad /2/ erläutert,

gehört Molybdän zu den radiologisch weniger relevanten Radionukliden.

In den Modellrechnungen wurden daher Sorptionsdaten nur für die Randbedingungen "Salzwasser mit EDTA", "Salzwasser ohne EDTA" und "Süßwasser" berücksichtigt /1/. Für diese Randbedingungen wurden, wie in /1/ dargestellt, abgeschätzte K_D -Werte verwendet, die sich an den für das Technetium in Salzwasser und Süßwasser gemessenen R_S -Werten orientieren. Es wurde dabei davon ausgegangen, daß sich das bei den Redoxpotentialen der natürlichen Grundwässer vorliegende Molybdation ähnlich verhält wie das Pertechnetation. Nach Auffassung der PTB wird mit den in /1/ dargestellten K_D -Werten das Sorptionsverhalten des Molybdäns für die o. g. Randbedingungen ausreichend genau beschrieben. Die Ergebnisse aus orientierenden Sorptionsexperimenten mit Proben aus der Oberkreide, Unterkreide und dem Dogger /6/ zeigen, daß die verwendeten Werte auf der sicheren Seite liegen.

4. Literaturverzeichnis

- /1/ GSF-Bericht "Langzeitsicherheitsanalyse des Endlagers Konrad, Radionuklidenausbreitung in der Nachbetriebsphase", erl. Unterlage lfd. Nr. 76.1
- /2/ Kap. 3.9.7 "Protokolle Strahlenexposition und Barrierenbewertung", Plan Konrad, Stand 9/86
- /3/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit: Zeitrahmen für den Nachweis der Langzeitsicherheit eines Endlagers, Schreiben vom 07. Juli 1988, Geschäftszeichen RSII5-513290/10
- /4/ Interner Arbeitsbericht der PTB: "Ableitung von Sorptionsdaten aus experimentellen Untersuchungen - Schachanlage Konrad", PTB-SE-IB-7, November 1986, erl. Unterlage lfd. Nr. 113.4
- /5/ H. Brühl, H. Klusmann, D. Lange und C. Trapp
"Probenahme von repräsentativen Gesteinen und Wässern für den Standort Schachanlage Konrad- Experimentelle Untersuchungen zum Sorptions-/Desorptionsverhalten der Gesteine für die Radionuklide Selen, Zirkon, Niob und

Technetium- "

August 1985, erl. Unterlage lfd. Nr. 140

/6/ D. Klotz, H. Lang und H. Moser

"Experimentelle Untersuchungen zur Radionuklidmigration in der Umgebung des geplanten Endlagers für radioaktive Abfälle in der Schachanlage Konrad" GSF-Bericht 34/85 und 35/86
erl. Unterlage lfd. Nr. 125.7 und 125.8

/7/ H. Meier, E. Zimmerhackl, G. Zeitler, P. Menge u. W. Hecker
"Bestimmung des Sorptions-/Desorptionsverhaltens ausgewählter Radionuklide (U, Th, Ra u. a.) an repräsentativen Gesteinen für den Standort Schachanlage Konrad"
Dezember 1984 und 1985, erl. Unterlage Nr. 139.1, 139,2 und 139,3

/8/ F. Dienstbach, R. Cisneros, M. Hämmerle, I. Schiller,
G. Birebent
"Nuklidmigration (Np, Pu, Am, Tc) im Deckgebirge des Endlagerortes Konrad" , RCM 03585, Dezember 1985
erl. Unterlage, lfd. Nr. 138