

Deckblatt

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd.Nr.	Rev.	Seite: I
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	64224000	HE	RA	0001	00	Stand: 21.05.2009

Titel der Unterlage:

ERKUNDUNG UND BEWERTUNG DER HERKUNFT UND GENESE DER AUF DER 750- UND DER 775-M-SOHL DES ENDLAGERS FÜR RADIOAKTIVE ABFÄLLE ASSE AUFTRETENDEN SALZLÖSUNGEN UND DER IN IHNEN ENTHALTENEN RADIONUKLIDE

Ersteller:

TUC

Textnummer:

Stempelfeld:

	Freigabe für Behörden:	Freigabe im Projekt:
	<hr/>	<hr/>
	Datum und Unterschrift	Datum und Unterschrift

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 des BfS.

Revisionsblatt

Projekt	PSP-Element	Aufgabe	UA	Lfd.Nr.	Rev.	Seite: II
NAAN	NNNNNNNNNN	AAAA	AA	NNNN	NN	
9A	64224000	HE	RA	0001	00	

Titel der Unterlage:

ERKUNDUNG UND BEWERTUNG DER HERKUNFT UND GENESE DER AUF DER 750- UND DER 775-M-SOHL E DES ENDLAGERS FÜR RADIOAKTIVE ABFÄLLE ASSE AUFTRETENDEN SALZLÖSUNGEN UND DER IN IHNEN ENTHALTENEN RADIONUKLIDE

Rev	Rev -Stand Datum	UVST	Prüfer (Zeichn.)	rev. Seite	Kat *)	Erläuterung der Revision

*) Kategorie R = redaktionelle Korrektur
 Kategorie V = verdeutlichende Verbesserung
 Kategorie S = substantielle Revision
 mindestens bei der Kategorie S müssen Erläuterungen angegeben werden

**Erkundung und Bewertung der Herkunft und Genese der auf der
750- und der 775-m-Sohle des Endlagers für radioaktive Abfälle Asse
auftretenden Salzlösungen und der in ihnen enthaltenen Radionuklide**

Sachstand 21.05.2009

Bericht zum AP I

Auftraggeber: Bundesamt für Strahlenschutz
Willy-Brandt-Straße 5
38226 Salzgitter

Auftragnehmer: TU Clausthal
Institut für Endlagerforschung
Adolph-Roemer-Str. 2A
38678 Clausthal-Zellerfeld

Clausthal-Zellerfeld, 11.6.2009

(Projektleiter)

Der Bericht wurde im Auftrag des Bundesamtes für Strahlenschutz (BfS) erstellt.
Das BfS behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit Zustimmung
des BfS zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt bzw. Dritten
zugänglich gemacht werden.

**Erkundung und Bewertung der Herkunft und Genese der auf der
750- und der 775-m-Sohle des Endlagers für radioaktive Abfälle Asse
auftretenden Salzlösungen und der in ihnen enthaltenen Radionuklide**

Sachstand 21.05.2009

Inhaltsverzeichnis

Stichworte	3
Zusammenfassung	3
1. Vorbemerkungen	4
2. Geochemische Einteilung der Lösungen	5
2.1 Methodisches	5
2.2 Lösungsgruppen	6
2.3 Verteilung der Lösungsgruppen auf der 750-m-Sohle	7
3. Herkunft der Lösungen auf der 750-m-Sohle	8
3.1. Bereich ELK 12/750	8
3.2 L2 bis L10 vor ELK 4/750 bis 10/750	9
3.3 L109 auf der 775-m-Sohle	11
4. Herkunft der bisher bekannten Kontamination	13
4.1. Bereich ELK 12/750	13
4.2 L2 bis L10 vor ELK 4/750 bis 10/750	13
4.3 L109 auf der 775-m-Sohle	14
5. Schlussbemerkungen	16
6. Verzeichnis der herangezogenen Unterlagen	17
Gesamtblattzahl der Unterlage	17

Stichworte

Deckgebirgslösungen, MgCl_2 -dominierte Lösungen, technogene Lösungen, radioaktive Kontamination, Radionuklidausbreitung, Sümpfe, Tropfstellen, Laugenmessstellen.

Zusammenfassung

Der Bericht fasst die Erkenntnisse zur Herkunft der hochsalinaren Lösungen der 750- und der 775-m-Sohle der Schachanlage Asse II zusammen und kombiniert diese Informationen mit Daten zur Herkunft von radioaktiven Stoffen, welche als Kontamination heute außerhalb der Einlagerungskammern und versetzten Strecken nachgewiesen werden können.

Die hochsalinaren Lösungen der 750- und der 775-m-Sohle sind zum Teil nicht gefasste Deckgebirgslösungen, die von ihren Zutrittsorten mehr oder weniger chemisch verändert auf diese Sohlen migrieren. Des Weiteren treten MgCl_2 -reiche Lösungen sowohl aus der Meerwasser-Eindunstung als auch aus der Umbildung von Carnallit auf. Darüber hinaus sind technogene Lösungen aus dem Altversatz der Kaliabbau, dem Bergwerksbetrieb und vermutlich auch den eingelagerten Gebinden vorhanden.

Die Kontamination besteht im Wesentlichen aus Tritium und ^{137}Cs . Das Inventar radioaktiver Substanzen in der Schachanlage Asse II ist zwar bekannt, das Ausmaß der Kontamination von Lösungen und Festkörpern innerhalb und außerhalb der Einlagerungskammern dagegen bisher nur grob abschätzbar. Für die radioaktiven Kontaminanten kommen zwei Quellen in Betracht: Material aus undichten Gebinden in Einlagerungskammern und Material aus Dekontaminationsarbeiten auf Strecken, das in Einlagerungskammern verbracht worden ist. Hieraus sind durch Wechselwirkung mit migrierenden Lösungen Radionuklide aus den Einlagerungskammern heraustransportiert worden.

Der Umstand, dass auch eine nicht näher einschätzbare Zahl von Fässern mit flüssigem Inhalt eingelagert worden ist, erschwert die Interpretation von Lösungszusammensetzungen. Eine weitere Unsicherheit in der Einschätzung der Kontaminationsverbreitung liegt in der Möglichkeit begründet, dass Nuklid-belastete Lösung im Grubengebäude transportiert worden ist.

Die Herkunft der Lösung und der Kontamination im Sumpf 12 vor ELK 12/750 ist qualitativ geklärt. Es fehlt aber an einer quantitativen Aussage zur räumlichen Verteilung der Kontamination. Die dazu nötigen geochemischen und radiometrischen Daten werden in AP II erhoben und entsprechend ausgewertet. Die Herkunft der Lösungen im westlichen Bereich der Südflanke auf der 750-m-Sohle ist ebenfalls grundsätzlich geklärt; es fehlen jedoch Erkenntnisse zur Herkunft ihrer Kontamination. Hierzu dienen die Arbeiten im AP III, mit denen insbesondere durch geochemische und radiometrische Untersuchungen von Lösungen und Festkörpern die Entwicklung der Kontamination und die Herkunft der künstlichen Radionuklide geklärt werden sollen.

1. Vorbemerkungen

Auf der 750- und 775-m-Sohle der Schachanlage Asse II kommen radioaktiv kontaminierte Lösungen vor. Der Kenntnisstand zur Herkunft der Lösungen beruht auf heute messbaren Daten. Das Inventar radioaktiver Substanzen in der Schachanlage Asse II ist grundsätzlich bekannt. In welchem Ausmaß diese Substanzen saline Lösungen kontaminiert haben, ist gegenwärtig jedoch nur abschätzbar. Für die radioaktiven Kontaminanten kommen drei Quellen in Betracht:

- Gebinde mit radioaktiven Stoffen, die zwischen 1967 und 1978 in ehemalige Steinsalzabbau (Kammern) eingelagert worden sind.
- Bei Handhabung der Gebinde kontaminiertes Material aus Fahrbahndecken und Transportgeräten, welches ebenfalls in die Einlagerungskammern verbracht worden ist.
- Außerhalb der Einlagerungskammern verbliebene Restkontaminationen in ehemaligen Transportstrecken.

Sowohl die Gebinde als auch die kontaminierten Materialien aus Fahrbahndecken und Transportgeräten befinden sich in Einlagerungskammern (ELK). Nach dem Bericht über Betriebsstörungen und nach dem Ergebnis von Mitarbeiterbefragungen ist davon auszugehen, dass die gegebenenfalls nötigen Dekontaminierungsarbeiten am Füllort und auf Strecken der 750-m-Sohle erfolgreich waren im Sinne des Strahlenschutzes. Darum befindet sich das radioaktiv kontaminierte Material in Einlagerungskammern. Folglich muss das Aktivitätsinventar von Lösungen, die außerhalb der ELK auftreten, aus diesen Kammern stammen.

Grundlage des nachfolgend aufgeführten Sachstandes der Recherche zur Herkunft der Lösungen auf der 750- und 775-m-Sohle und zum qualitativen und quantitativen Ausmaß der radioaktiven Belastung von Lösungen und Festkörpern sind:

- Status-Bericht NMU /1/
- Gemeinsame Stellungnahme der ESK und SSK /2/
- Bericht über Betriebsstörungen während der Einlagerung /3/
- Bericht Lennartz & Mengel (08/2009) /4/,
- diverse vom Auftraggeber bereitgestellte Informationen und Unterlagen /5/ bis /17/, einschließlich des Risswerkes und
- eigene Beobachtungen.

Es wird zunächst das methodische Vorgehen bei der geochemischen Klassifizierung von Lösungstypen dargelegt. Anschließend erfolgt die Einteilung der Lösungen der 750-m-Sohle nach geochemischen Gesichtspunkten in drei Gruppen. Die Verteilung der Lösungsvorkommen nach Gruppen ermöglicht Einsichten in Migrationswege in der Südflanke und in die chemische Entwicklung der Lösungen im Verlaufe ihrer Migration (Kapitel 3). Schließlich wird in Kapitel 4 die Herkunft der

heute bekannten Radionuklidbelastung in relevanten Lösungen der 750 und der 775-m-Sohle dargestellt.

Nicht berücksichtigt werden Lösungen, die außer Tritium keine weitere Kontamination und offensichtlich auch keine hydraulischen Bezüge zu den kontaminierten Lösungen des südlichen und östlichen Teiles der 750-m-Sohle sowie der 775-m-Sohle aufweisen. Des Weiteren geht dieser Bericht nicht näher auf die Genese der Lösungen in Deckgebirgsschichten ein.

2. Geochemische Einteilung der Lösungen in Gruppen

2.1 Methodisches

Zur Charakterisierung der hochsalinaren Lösungen werden im hier bearbeiteten Vorhaben die chemischen Hauptkomponenten, genetisch aussagefähige Spurenelemente und Sr-Isotopendaten herangezogen. Mit Hilfe der chemischen Hauptkomponenten lassen sich im quinären System der Zustand und die Entwicklung hochsalinärer Lösungen nachzeichnen. Die Bestimmung der Sättigung an Mineralen erfolgt graphisch und rechnerisch mittels thermodynamischer Ansätze. Bei der chemischen Veränderung einer Lösung ändert sich auch deren Dichte. Beispielsweise kann eine an NaCl und CaSO₄ gesättigte Lösung mit der Dichte 1,2 g/cm³ durch Reaktion mit Carnallit und durch Eindunstung eine Dichte von $\geq 1,3$ g/cm³ erreichen. Dichtewerte und chemische Hauptkomponenten stehen für einige Lösungsvorkommen in guter Qualität und in guter zeitlicher Auflösung zur Verfügung.

Die Auswertung der Bromid- und Rubidium-Verteilung in hochsalinaren Lösungen erlaubt weitere Einsichten in die Entwicklung von Lösungen bei der Meerwassereindunstung, bei wetterbedingter Eindunstung und bei Reaktion mit Bodenkörpern. Allerdings ist die Datenbasis für Lösungen der Schachanlage Asse II hinsichtlich Rb und Br recht dürftig, da Rb nur selten bestimmt worden ist.

Grundsätzliche Bedeutung kommt den Spurenelementen Cs und Sr zu, da radioaktive Isotope dieser Elemente im eingelagerten Abfall vorliegen und ihr Verhalten auch Einsichten in die Migration der entsprechenden Radionuklide ermöglicht. Die Elemente Cs und Sr werden auf Grund ihrer Kompatibilität zu den Kristallgittern des Carnallits bzw. des Anhydrits und Polyhalits (sowie Gips) bei Fällung in diesen Mineralen angereichert. Andererseits kann in einer Lösung die Konzentration von Cs und Sr durch Auflösung der genannten Minerale auch deutlich ansteigen. Analysensätze mit diesen Spurenelementen gibt es bis jetzt nur in den Arbeiten von Schmidt (2006, Rb, Br und Sr) /5/ und Lennartz und Mengel (2008) /4/.

Während sich die Konzentrationen aller bisher genannten Elemente durch Ausfällung ändern, bleibt das Verhältnis ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr hiervon unberührt. Wegen dieses quasi inerten Verhaltens ist die Sr-Isotopie ein wertvoller Indikator für die Herkunft von hochsalinaren Lösungen. Ebenso wertvoll ist die Nutzung von Sr-Isotopenmischungen unterschiedlicher Komponenten. Hier lassen sich bei Kenntnis der

Konzentrationen die Isotopensignaturen der beteiligten Komponenten (Lösungen und Festkörper) ermitteln. Die Datenlage für saline Lösungen der Schachanlage Asse II ist beschränkt auf /5/.

2.2 Lösungsgruppen

Nach dem bisherigen Stand chemischer und isotopengeochemischer Untersuchungen und nach Durchsicht weiter unten genannter Unterlagen kann man grundsätzlich zwischen drei Lösungsgruppen auf der 750-m-Sohle unterscheiden:

- Gruppe 1a Deckgebirgslösungen, welche kaum verändert auf der 750-m-Sohle ankommen.
- Gruppe 1b Deckgebirgslösungen, welche auf ihrem Weg durch die Südflanke eingedunstet oder durch Kontakt mit Versatz modifiziert worden sind.
- Gruppe 2a $MgCl_2$ -reiche Lösungen, die primär im Salzstock als Restlösungen der Meerwasser-Eindunstung vorhanden sind.
- Gruppe 2b $MgCl_2$ -reiche Reaktionslösungen, die als natürliche Lösungen der Gruppe 1 durch vollständigen Reaktionsumsatz mit Carnallit (Flöz und/oder Versatz) und Eindunstung diese Zusammensetzung angenommen haben.
- Gruppe 3a Technogene Lösungen aus dem Altversatz der Kali-Abbaue: Wegen der Zusammensetzung der Fabrik-Rückstände sollten diese ebenfalls $MgCl_2$ -reich sein und dürften sich chemisch nur gering von den natürlichen Lösungen der Gruppe 2 unterscheiden.
- Gruppe 3b Technogene Lösungen aus dem Betrieb: Nach der Durchsicht der Mitarbeiter-Befragungen /6/ und der Einlassung von (1980) /7/ sowie den Darlegungen von (2008) /8/ ist klar, dass es sich um natürliche Lösungen der Gruppen 1 oder 2 handelt, die bei technischen Maßnahmen überall verwendet wurden. Auch das zu Waschzwecken nach unter Tage verbrachte Frischwasser gehört zu dieser Gruppe. Grundsätzlich wurden nahezu alle bis Anfang 2005 in das Grubengebäude gelangten, nicht kontaminierten Lösungen für technische Zwecke verwendet /8/, insbesondere im Rahmen der Verfüllung der Abbaue in der Südflanke seit 1995.
- Gruppe 3c Technogene Lösungen aus dem Einlagerungsbetrieb/den Gebinden: Nach /9/ und /10/ sowie /8/ und insbesondere /3/ ist mit flüssigkeitsführenden Abfallgebinden sowie aus wasserführenden Gebinden ausgetretenen Lösungen zu rechnen. Wegen der fehlenden Dokumentation ist die Menge, Zusammensetzung und Verbreitung solcher Flüssigkeiten nicht bekannt.

Diese Einteilung ist nützlich, um zwischen natürlichen Transportpfaden und technischer Verbringung zu unterscheiden. Mittlerweile ist aber auch nach /9/ und /10/ klar, dass während des Abbaubetriebes und auch während des Einlagerungsbetriebes sämtliche natürlichen und technogenen Lösungsgruppen im Grubengebäude verteilt worden sind. So ist beispielsweise davon auszugehen, dass sich Anteile aller drei Lösungsgruppen in den Fahrbahnen aller Strecken und auch im Versatz

der 750-m-Sohle befinden. Solche Umstände können im Einzelfall die Klärung der Herkunft zusätzlicher Lösungen sehr erschweren.

2.3 Verteilung der Lösungsgruppen auf der 750-m-Sohle

Bevor die Herkunft der einzelnen Lösungsvorkommen diskutiert wird, erfolgt die räumliche Einordnung der unterschiedlichen Lösungsgruppen im Bereich der 750-m-Sohle.

1. Der Altversatz der Kali-Abbaue enthielt bei der Einbringung 10 bis 15 % technogene Lösungen (Gruppe 3), welche nach heutigem Kenntnisstand nicht radioaktiv kontaminiert sein können. Geochemische Daten dieser Lösungen liegen nicht vor. Es ist aber sehr wahrscheinlich, dass sie neben Halit, Anhydrit und evtl. Polyhalit an Kieserit und Carnallit bzw. Kainit und Sylvin gesättigt sind. Dies kann auch für die Lösungen im entsprechenden Versatz der 725-m-Sohle angenommen werden. Lösungen dieser Provenienz kommen als Träger der Kontamination im Bereich der ELK 12/750 in Betracht. Ihre Nuklidbelastung ist auf geringe Mengen Tritium beschränkt, welches sie aus der Grubenluft aufgenommen haben.

2. Die im Nordwesten der 750-m-Sohle auftretenden Lösungen enthalten ebenfalls nur Tritium aus der Grubenluft als Kontaminanten (z.B. Bereich um Kali-Abbau 14, Reichelt-Sümpfe). Es handelt sich um Lösungen der Gruppe 1 und 2. Herkunft und Entwicklung der Reichelt-Sümpfe wurden geochemisch umfassend von /5/ untersucht: Sie sind im Wesentlichen Reste eingedunsteten Meerwassers. Auch hier sind nach heutigem Kenntnisstand keine radioaktiven Kontaminationen außer Tritium aus der Grubenluft zu erwarten.

3. Lösungen im südwestlichen Bereich: Hier kommen vornehmlich Deckgebirgslösungen vor und zwar sowohl mit fast unverändertem geochemischen Fingerprint (Gruppe 1a) als auch in Form chemisch modifizierter Deckgebirgslösungen der Gruppe 1b. Weiterhin steht in diesem Bereich das Carnallit-Flöz an oder befindet sich in unmittelbarer Nachbarschaft zu den Strecken; dies erklärt das Auftreten von Lösungen der Gruppe 2 in diesem Bereich. Des Weiteren ist das gesamte Lösungsspektrum der Gruppe 3 im Bereich der 2. südlichen Richtstrecke nach Westen enthalten; dies gilt vermutlich auch für die versetzte südliche Richtstrecke nach Osten /10, 11/.

4. Die Lösungen im gesamten Bereich vor ELK 12/750 stammen nach übereinstimmenden Erkenntnissen von /1, 2, 4/ nicht aus weit migrierten Lösungen des nordwestlichen Kaliabbaufeldes, sondern sind aus dem Versatz der östlichen Kaliabbaue der 750- und der 725-m-Sohle herzuleiten. Sie gehören weitgehend zu den technogenen Lösungen der Gruppe 3, wenngleich die Beteiligung von natürlichen, salzstockinternen Lösungen aus dem Fließbereich des Kontakts K2C/Na3β nicht auszuschließen ist.

5. Die Lösung mit der höchsten bisher gemessenen ¹³⁷Cs-Aktivität ist aus der Messstelle L109 auf der 775-m-Sohle ausgetreten (Belgierstrecke). Chemische Analysen der Lösungen liegen nicht vor; die Dichte variiert zwischen 1.353 und 1.261 g/cm³, wobei die Dichte der Lösung im Verlaufe der beobachteten Zutrittszeit von März 1995 bis September 2005 generell geringer wurde. Eine Interpretation allein auf Grundlage der Dichte-Werte ist nicht möglich.

3. Herkunft der Lösungen auf der 750-m-Sohle

Nachfolgend werden die Migrationswege und die hydraulischen Verhältnisse beschrieben, die zur Bildung und zur Speicherung der Lösungsvorkommen an ihrem jetzigen Ort beitragen.

3.1. Bereich ELK 12/750

Abb. 1 zeigt in gelber Farbe die derzeit erkennbare Verteilung der kontaminierten Lösung. Nur ein geringer Anteil des gesamten Lösungsvolumens ist sichtbar bzw. zugänglich. Auch die vom Zugang zur ELK 12/750 nach Norden führende Strecke muss mit Lösung befüllt sein. Der mit Sturzversatz versehene nördliche Bereich dieser Strecke bietet Speichervolumina, die das Mehrfache des gegenwärtigen Sumpfinhaltes vor der Kammer betragen.

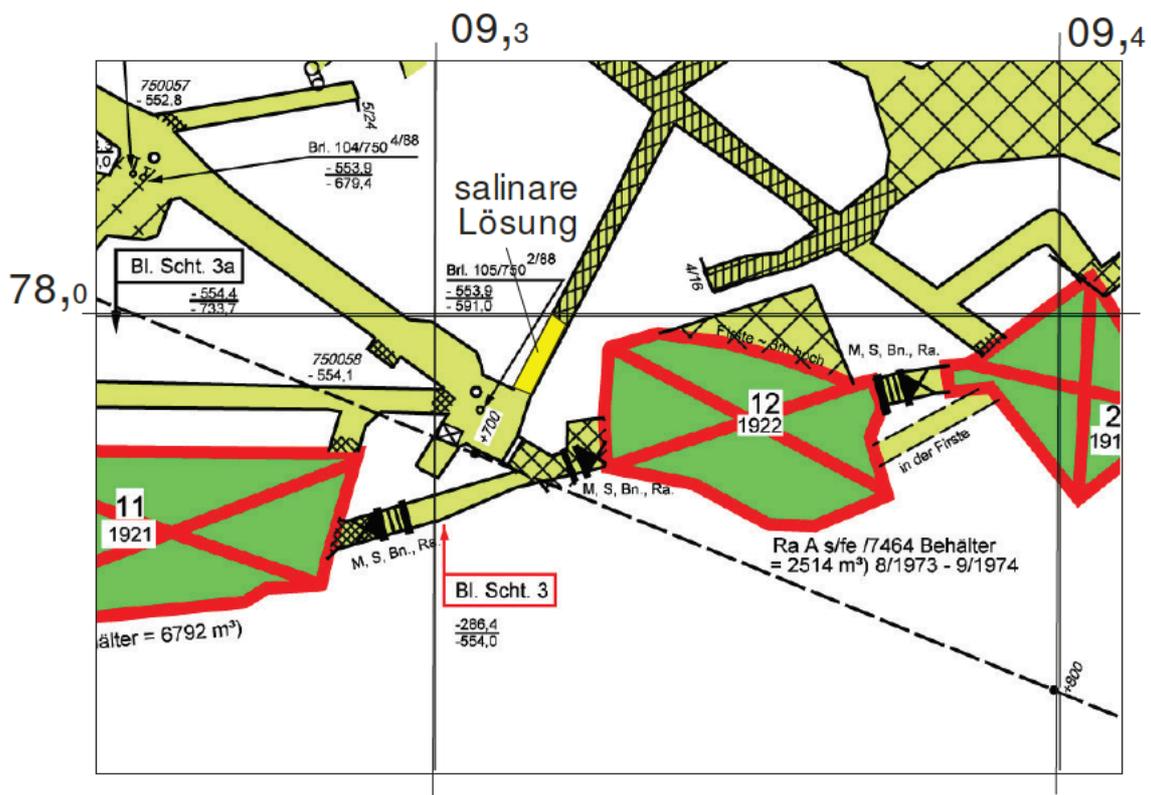


Abb. 1: Ausschnitt des Sohlenrisses der 750-m-Sohle im Bereich der ELK 12 mit Lage des sichtbaren Anteils der kontaminierten Lösung als gelb ausgehaltene Fläche.

Nach Verbringen der Lösung auf tiefere Sohlen bis etwa Mitte 2008 wurde beobachtet, dass der Pegelstand des Sumpfes durch Zufluss aus diesem Bereich wieder steigt /10,11/. Nach eigenen Beobachtungen im August 2008 stand der Pegel der Lösung ca. 1 m unterhalb des gegenwärtigen Pegelstandes (Februar 2009). Die gegenwärtigen Pegel der ersten vier Bohrungen in die Streckensohle der nördlichen Richtstrecke nach Osten (L4 bis L7) entsprechen in etwa dem gegenwärtigen Pegel des Sumpfes. Dies bedeutet, dass außer der sichtbaren Lösung im Sumpf und der sicher vorhandenen Lösung in der nördlich anschließenden Strecke auch in westlicher Nachbarschaft zu ELK 12/750 ein ausgedehntes hydraulisch kommunizierendes System vorhanden ist. Welches Reservoir den Pegel dieses Systems steuert, lässt sich nicht sicher nachweisen. Sicher

ist aber, dass die Lösung vor ELK 12/750 wetterbedingt eingedunstet ist. Hierbei wurde Carnallit und eventuell ein Sulfat-Mineral gefällt.

3.2 L2 bis L6 vor Abbau 3 und vor den ELK 4/750 bis 10/750

In der 2. südlichen Richtstrecke nach Westen der 750-m-Sohle sind in /13/ insgesamt 31 Messstellen verzeichnet (6 bis 17, 20, 22, 23, 25, 28, 30, 32, 33, 35, 36, 37, 104 sowie L1 bis L7).

Die Lösungen im Bereich der 2. südlichen Richtstrecke nach Westen (vor den ELK 4/750, 8/750 und 10/750) und diejenigen im unversetzten Streckenstummel der südlichen Richtstrecke nach Osten (vor Abbau 3) werden im Folgenden gemeinsam behandelt, da derzeit eine klare genetische Trennung zwischen diesen Vorkommen nicht möglich ist. Die Lage der Lösungssammelstellen L2, L3, L4 und L5 vor Abbau 3 im unversetzten Streckenstummel ist in Abb. 2 dargestellt.

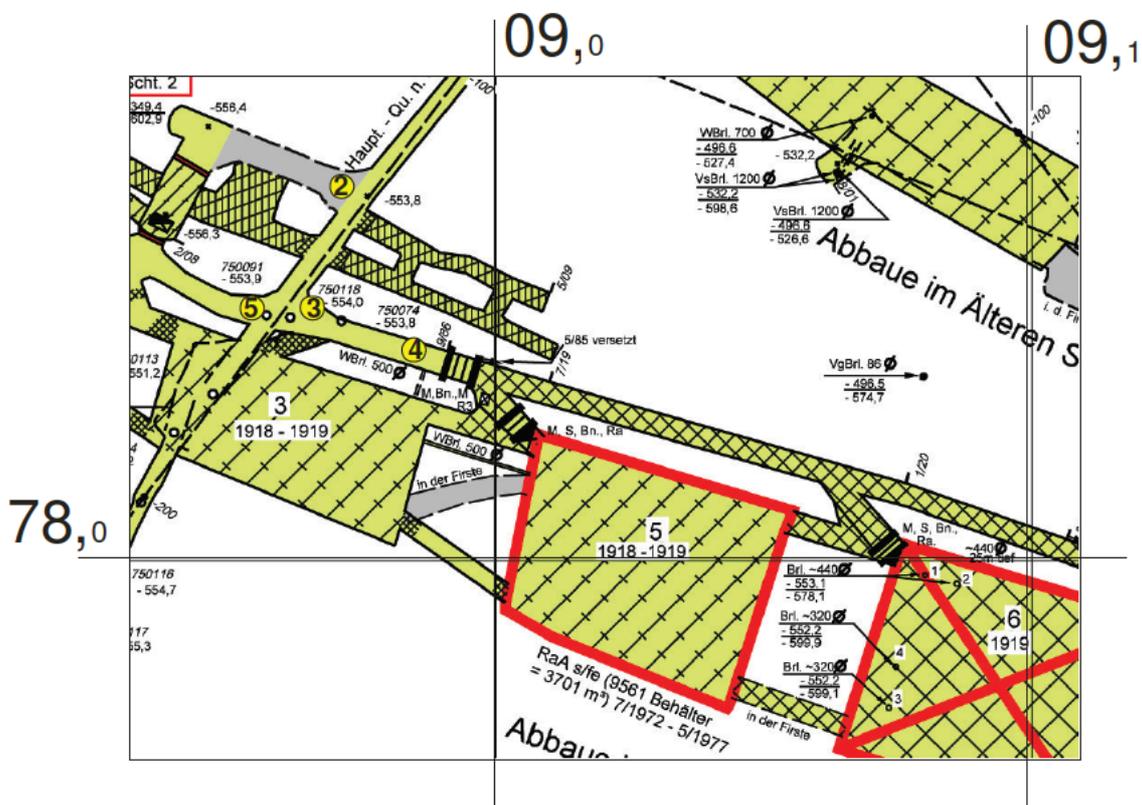


Abb 2.: Ausschnitt des Sohlenrisses der 750-m-Sohle mit Lage der Lösungssammelstellen 2, 3, 4 und 5 (gelbe Kreisflächen mit Nummern nach /13/) vor Abbau 3 auf der südlichen Richtstrecke nach Osten.

Die zahlreichen Lösungsvorkommen und Lösungssammelstellen des Schlitzes auf der 2. südlichen Richtstrecke nach Westen sind in Abb. 3 dargestellt.

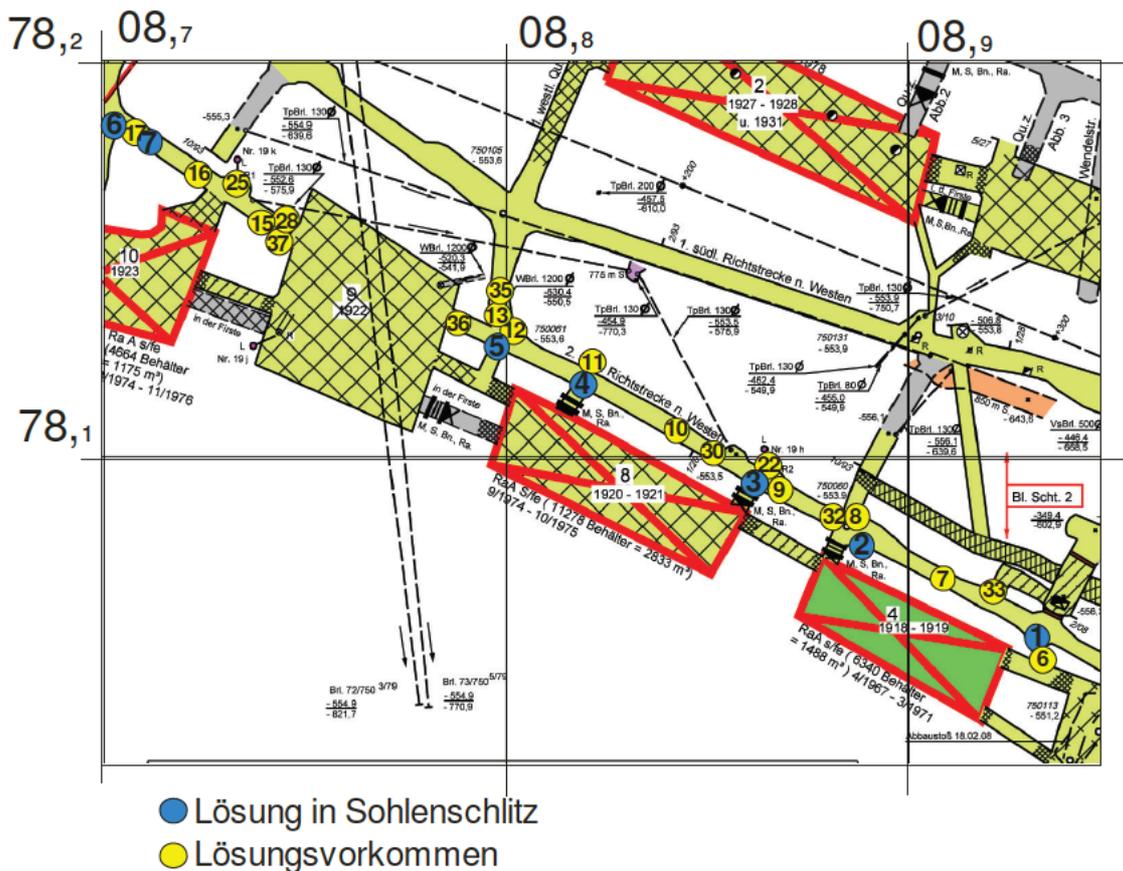


Abb. 3: Ausschnitt des Sohlenrisses der 750-m-Sohle mit Lage der Lösungssammelstellen (gelbe Kreisflächen mit Nummern nach /13/) und der Probennahmestellen des Sohlenschlitzes (blaue Kreisflächen mit Nummern nach /13/)

Es existiert eine große Fülle von chemischen und radiometrischen Daten dieser Lösungen. Den vollständigsten Datensatz zur Geochemie von Lösungen erhält man bei Schmidt (2006) /5/. Dieser soll exemplarisch für die Herkunft der benachbarten Lösungsstellen diskutiert werden. Eine räumliche Zuordnung zu Lösungsgruppen oder einen räumlichen Gradienten in der Lösungszusammensetzung gibt es allerdings zwischen L6 im Nordwesten und L2 im Südosten nicht. Vielmehr sind drei Typen zu unterscheiden:

Typ 1: Lösung L6 vor Kammer 10 stimmt chemisch gut mit der Deckgebirgslösung auf der 658-m-Sohle überein. Die Lösungen aus dem Bereich der Fahrbahn vor den Kammern 4 und 8 sind uneinheitlich. Hier treten sowohl extrem Mg-reiche wie auch NaCl-dominierte Lösungen auf. Letztere (L2, L3, L4) haben ihren Ursprung vermutlich in den Deckgebirgslösungen. Diese Lösungen gehören zu den Gruppen 1 und 2.

Typ 2: Die Lösungen aus Rolloch 2 und der Tropfstelle TrL2 (Entfernung zu L3 weniger als 15 m) sind Mg-reich. Sie gehören zur Gruppe 2 und haben ihre derzeitige Zusammensetzung wahrscheinlich aus Reaktion von Deckgebirgslösungen mit dem benachbarten Kali-Flöz-Material erhalten. Ähnliches kann für die sehr Mg-reiche Lösung L10 gelten: Neben der Reaktion mit Flöz-Material kommt auch eine

extreme Eindunstung von Deckgebirgslösung zur Erklärung ihrer jetzigen Zusammensetzung in Betracht.

Typ 3: Die Lösungen der Probennahmepunkte L2 und L4, nicht aber L3, können hinsichtlich ihrer Entstehung sowohl als Rest eindunstender Deckgebirgslösung als auch durch Reaktion NaCl-dominierter Lösung mit Carnallit gedeutet werden; sie gehören damit zu den Gruppen 1 und 2. Die Herkunft der Lösung in L3 ist chemisch am ehesten mit einer veränderten Deckgebirgslösung zu erklären. Der gegenwärtige Pegel von L3 ist bis zum Überlauf ca. 45 cm unter Fahrbahnunterkante gestiegen. Die Pegel in den benachbarten Bohrungen L2 und L4 steigen gegenwärtig kaum und sind niedriger als der in L3. Dies bedeutet das Fehlen einer hydraulisch kommunizierenden Auflockerungszone in diesem Bereich der Fahrbahndecke. Daher kann der Zufluss nach L3 nur aus einem höher gelegenen Pegel eines benachbarten Lösungsreservoirs kommen, das hydraulisch mit L3 in Verbindung steht. In Betracht kommt die Auflockerungszone der ELK 8/750 und 4/750 und ein Reservoir an der nördlichen Wand der Strecke. Da mit dem Pegel auch die Aktivität von ^{137}Cs gestiegen ist und neuerdings neben Cs auch radioaktives Tc, Sr, Po und Pb gefunden werden, ist die Herkunft der Lösung in L3 eher aus einem kontaminierten Bereich der Auflockerungszone von ELK 8/750 und/oder ELK 4/750 sowie dem oberen Fahrbahnbereich in unmittelbarer Nachbarschaft zu sehen.

Die Mehrzahl dieser Lösungsvorkommen auf der 750-m-Sohle stammt aus nicht gefassten Deckgebirgslösungen der höher gelegenen Sohlen. Von dort sind sie mehr oder weniger verändert auf der 750-m-Sohle angekommen. Es ist nicht auszuschließen, dass die Migration der Deckgebirgslösungen auch die Einlagerungskammern 4 und 8 erfasst hat. Im unmittelbar benachbarten Abbau 9/750 ist jedenfalls Deckgebirgslösung vorhanden.

3.3 L109 auf der 775-m-Sohle

Vollständige chemische Analysen von L109 sind nicht verfügbar. Nach Angaben des Bereiches Strahlenschutz der Schachanlage Asse II reicht die Dichte der Lösung von 1.353 bis 1.261 g/cm³. Lösungen dieser Dichte können technisch bedingt sein, sie sind auch vereinbar mit einer NaCl-dominierten Lösung vom Typ Deckgebirgslösung aus dem westlichen Bereich der 532-m-Sohle. Auch für den östlichen Bereich der 532-m-Sohle ist ein Lösungszutritt aus dem Deckgebirge in die Südflanke nach dem jetzigen Stand nicht auszuschließen:

Nach /11/ gab es in den Jahren 1956 bis mindestens 1961 Lösungszutritte in Kammer 9 auf der 532-m-Sohle. Diese werden in der Chronologie von Schauer mann (2008) /9/ nicht vermerkt, sind aber im Riss der 532-m-Sohle als L10 ausgewiesen. Kühn et al. (1967) /12/ hatten L10 als Reste eingedunsteter Meerwasser beurteilt. Nach den chemischen Analysen dieser Lösungen /10/ und nach /11/ ist diese Deutung sicher falsch. Vielmehr besteht eine interessante Gemeinsamkeit mit den Lösungszutritten des Jahres 1988 weiter westlich (L19, Abbaureihe 3, 574-m-Sohle): L19 auf der 574-m-Sohle und L10 auf der 532-m-Sohle haben die gleiche Dichte und gleiche Mg-, Cl- und Na-Gehalte.

K und SO₄ stimmen jedoch nicht überein. Wenn also im westlichen Bereich der Südflanke Deckgebirgslösungen von 574 nach 750-m-Sohle migriert sind, lässt sich nicht ausschließen, dass auch in der östlichen Südflanke Zutrittslösungen vom Typ L10/532 bis auf die 750-m-Sohle gelangt sind. Unter Kammer 9/532 liegt auf der 750-m-Sohle die ELK11/750. Eine von der südlichen Richtstrecke nach Osten aus gestoßene Schrägbohrung in Richtung Sohle ELK 11/750 traf im Bereich der Auflockerungszone dieser Kammer Lösung an. Es ist daher gegenwärtig nicht auszuschließen, dass auf der 750-m-Sohle nicht nur in die Kammern des westlichen Bereichs Deckgebirgslösungen migriert sind sondern auch in die Kammern des östlichen Teils.

Wie Abb. 4 zu entnehmen ist, befindet sich L 109 nicht unter dem Zugang zur ELK 6/750 und nicht unter der südlichen Richtstrecke nach Osten der 750-m-Sohle sondern unterhalb der ELK 6/750. Falls in diese Kammer Gebinde mit wässrigen Lösungen eingebracht worden sind wie in /3/ und /8/ beschrieben, können erhebliche Mengen des Lösungsmittels Wasser in diesem Bereich vorhanden sein. Dieses Wasser hat sich nach Austritt aus dem Gebinde sofort an Halit gesättigt, ist damit chemisch NaCl-dominiert und gehört zum Lösungstyp 3c.

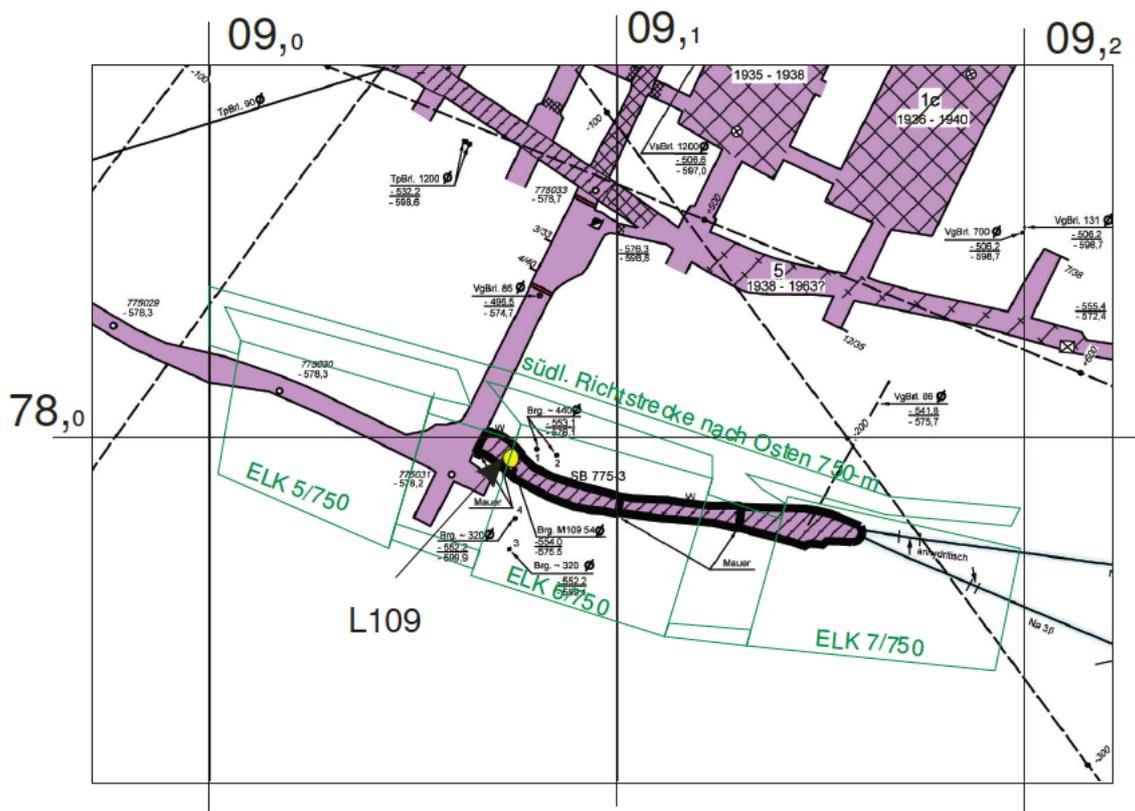


Abb. 4: Lage des Lösungsvorkommens L109 auf der 775-m-Sohle (gelbes Symbol) und darauf projizierte Umriss der ELK 5, 6, und 7 der 750-m-Sohle (grüne Umriss).

4. Herkunft der bisher bekannten Kontamination

4.1 Bereich ELK 12/750

Dieser Sumpf wird vom Strahlenschutz der Schachtanlage regelmäßig überprüft. Die Nuklidbelastung durch α -, β - und γ -Strahlung emittierende Nuklide ist gut dokumentiert. Die Auswertung archivierter Unterlagen, die Interpretation eigener Messwerte vom August 2008 und rezenter Protokolle des Strahlenschutzes der Schachtanlage Asse II /13/ einschließlich der in Auftrag gegebenen Daten aus /14/ ergeben ein sehr klares Bild: Danach kann das heutige Inventar an ^{137}Cs nicht aus Kontamination der Fahrbahn der Strecke stammen, sondern ist eindeutig auf die in Kammer 12 eingelagerten Abfälle zurückzuführen. An gasförmigen Nukliden wird Tritium und ^{14}C freigesetzt; in Lösung befinden sich nachweislich die künstlichen Nuklide ^{60}Co , ^{90}Sr sowie ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{210}Po und ^{210}Pb . Nur ^{137}Cs liegt über der Freigrenze. Der Pegel des Sumpfes erreichte nach dem Abpumpen von Lösung wieder seinen ursprünglichen Stand; gleichwohl wird für ^{137}Cs und ^{60}Co ein systematischer Anstieg beobachtet. Die Aktivitätskonzentration für ^{137}Cs stieg dort von 3 Bq/g im Dezember 2003 auf 68 Bq/g im Juni 2007 an. Im März 2009 wurde eine ^{137}Cs - Aktivitätskonzentration von 20 Bq/g gemessen.

Einen weiteren bisher kaum in seinem Ausmaß einzuschätzenden Kontaminationsträger bilden die Festkörper am Boden des Sumpfes vor ELK 12/750: Hier haben /4/ 5-fach höhere ^{137}Cs - und /14/ ca. 10-fach höhere ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration analysiert als in den überstehenden Lösungen; für ^{90}Sr wird eine ca. 50-fach höhere Aktivitätskonzentration im Bodenkörper analysiert. Daher muss zusätzlich zu dem bereits nachgewiesenen Carnallit auch eine kleine Menge Anhydrit oder Polyhalit im Bodenkörper vorhanden sein. Co und Tc scheinen dagegen bei der Fällung von Carnallit und von Ca-Sulfat nicht bevorzugt in die Festkörper zu gehen: Die Aktivitäten von ^{60}Co und ^{99}Tc sind in der Lösung höher als im Bodenkörper.

Die Verbreitung und die Höhe der Kontamination in der Strecke vor ELK 12/750 wird im AP II dieses Vorhabens abschließend geklärt. Im Ergebnis wird eine Bilanz der Nuklidfreisetzung aus ELK 12/750 stehen, welche auch eine quantitative Aussage zu den gelösten und im Bodenkörper außerhalb der Kammern befindlichen künstlichen Nukliden ermöglicht.

4.2 L2 bis L10 vor ELK 4/750 bis 10/750

Alle Lösungen führen Tritium und ^{14}C . Die ^3H -Aktivitätskonzentration liegt in den Lösungen aus L2, L3 und L4 zwischen $1 \cdot 10^6$ und $4 \cdot 10^6$ Bq/L und ist damit auf demselben Niveau wie die im Sumpf vor ELK12/750 ($3 \cdot 10^6$ Bq/L ^3H). Die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration ist aber in L2 bis L4 sehr viel niedriger als die im genannten Sumpf. An künstlichen Radionukliden wurde neben ^{137}Cs noch ^{60}Co , ^{90}Sr , ^{99}Tc , ^{210}Po und ^{210}Pb nachgewiesen, allerdings in geringeren Konzentration als in der Lösung vor ELK 12/750. Die Verteilung des Nuklidinventars in den einzelnen Lösungen ist nicht einheitlich. Eine systematische Reihung von Nuklidkonzentration entlang der Strecke ist nicht zu verzeichnen. Die Nuklidkonzentrationen sind in den Lösungen einer einzelnen Bohrung nicht immer konstant: Während beispielsweise L4 ein konstantes Niveau von 1000 Bq ^{137}Cs pro L Lösung aufweist, steigt in L3 das

^{137}Cs um das 10-fache binnen 8 Monaten (05/2008 bis 12/2008) von ca. 100 auf 1000 Bq/L an /14/. Interessant ist auch hier das Verhältnis von Aktivitätskonzentrationen in Lösung gegenüber Bodenkörper: /14/ ist zu entnehmen, dass im Bodenkörper von L4 die ^{90}Sr -Aktivitätskonzentration 150-fach höher ist als in der Lösung und dass die ^{137}Cs -Aktivitätskonzentration etwa doppelt so hoch ist wie die der Lösung.

Da das Bild der Nuklidausbreitung noch unvollständig ist, kann man nicht ausschließen, dass die in Lösung befindlichen Radionuklide aus den ELK 4/750 und/oder 8/750 stammen. Insbesondere die hohen ^3H -Aktivitätskonzentrationen vor diesen Kammern deuten auf eine solche Herkunft hin. Schmidt (2009) /15/ vermutet einen Fehler in den Angaben zum Nuklidinventar /16/; das Tritium-Inventar dieser Kammern könnte demnach sehr viel höher sein als bisher vermutet. Ob die übrigen in Lösung befindlichen künstlichen Nuklide aus den Kammern stammen oder auf Kontaminationen der Strecke zurückzuführen sind, werden geochemische und radiometrische Analysen der Lösungen und der zugehörigen Bodenkörper (Bohrkerne) im AP III zeigen.

4.3 L109 auf der 775-m-Sohle

Da die Lösung aber aus einer Bohrung stammt, welche von der Belgierstrecke aus nach oben in Richtung Kammer 6 gestoßen worden ist, ist anzunehmen, dass das Radionuklidinventar aus dieser Kammer stammt. Allerdings kann man auch nicht ganz ausschließen, dass das ^{137}Cs aus Kontaminationen der Strecke vor dem oder im Zugang zu ELK 6/750 stammt (gemäß Bechthold 1980) /7/. Der zeitliche Verlauf der ^{137}Cs -Aktivität ist zusammen mit der Dichte der Lösungen aus der Messstelle L109 auf der 775-m-Sohle in Abb. 5 dargestellt. Bei der Entwicklung der Lösungsdichte fällt in der Jahresmitte 1999 eine Spitze auf, bei der es sich um einen einzelnen Messwert (vom 15.7.1999) handelt, der als Ausreißer eingestuft werden kann.

Insgesamt bleibt unklar, ob die Lösung zur Gruppe 1 oder zur Gruppe 3 gehört; die mit der Zeit niedriger werdende Dichte der Lösung schließt eine Beteiligung von NaCl-dominierten Lösungen des Deckgebirgszutrittes nicht aus (siehe Kapitel 3). Die Abnahme der Dichte könnte sowohl durch den Verbrauch von Carnallit auf dem Fließweg durch eine NaCl-dominierte Lösung als auch durch eine Variation des Mischungsverhältnisses von MgCl_2 -reichen und NaCl-dominierten Lösungen hervorgerufen worden sein. Darüber hinaus könnte auch die Höhe der Eindunstung in Abhängigkeit von der Zutrittsrate in der Strecke selbst eine Rolle gespielt haben. Das Versiegen des Zutritts könnte insgesamt ein Hinweis darauf sein, dass ein begrenztes Lösungsreservoir in ELK 6/750 leer gelaufen ist.

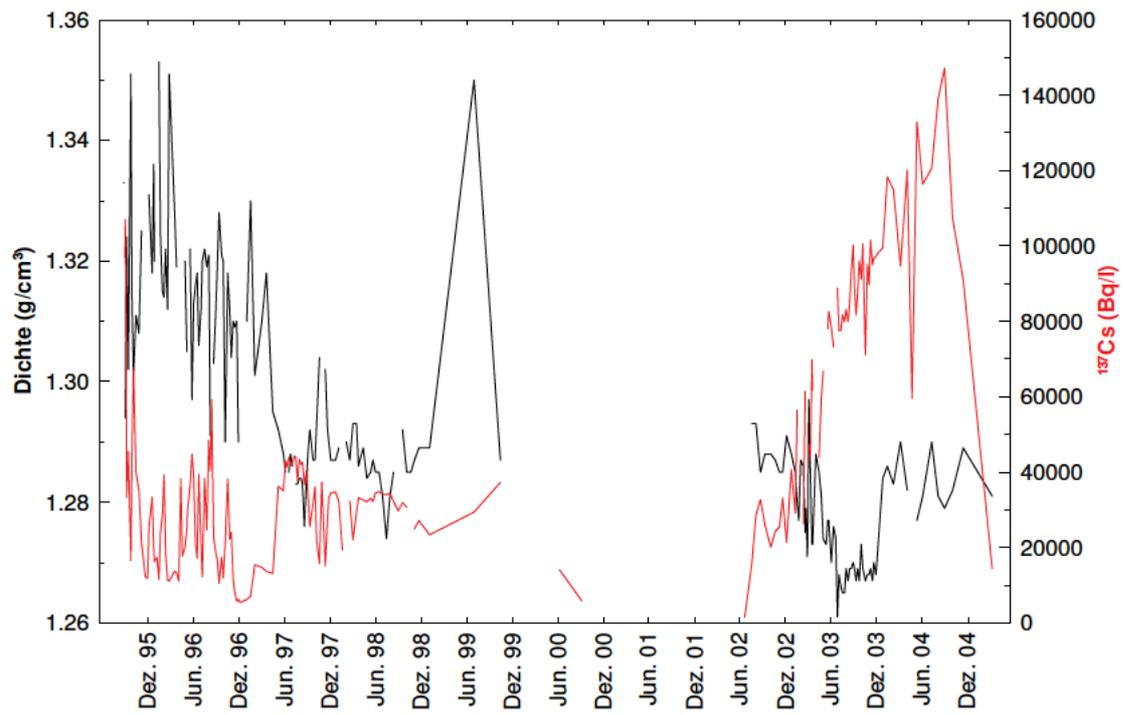


Abb. 5: Zeitlicher Verlauf der ¹³⁷Cs-Aktivität und der Dichte der Lösungen aus L109 (775-m-Sohle).

Falls es Rückstellproben gibt, werden diese in AP III geochemisch und radiometrisch analysiert.

5. Schlussbemerkungen

Die Auswertung der zugänglichen Informationen zeichnet derzeit kein klares Bild zum Zustand der 750-m-Sohle hinsichtlich Kontamination und Lösungsherkunft. Wir gehen davon aus, dass in den Einlagerungskammern eine nicht näher einzugrenzende Zahl zerstörter Behälter liegt, aus deren Inhalt durch Zutrittslösungen oder durch Kontakt mit anderen Lösungen Nuklide freigesetzt werden. Der Umstand, dass auch eine nicht näher einschätzbare Zahl von Fässern mit flüssigem Inhalt eingelagert worden ist, erschwert die Interpretation von Lösungszusammensetzungen. Des Weiteren wird berichtet /4, 5, 6/, dass kontaminiertes Material von den betroffenen Strecken abgespitzt und entsorgt worden ist. Nähere Informationen zur Feuchtigkeit und zum Verbleib dieses Salzmaterials liegen aber nicht vor. Falls es unverpackt in eine Einlagerungskammer verbracht worden ist, liegt somit eine weitere Quelle für die in Lösung befindlichen Radionuklide vor. Eine weitere Unsicherheit in der Einschätzung der Kontaminationsverbreitung liegt in der Möglichkeit begründet, dass Nuklid-belastete Lösung für technische Zwecke benutzt worden oder aus anderen Gründen im Grubengebäude transportiert worden ist, beispielsweise die Verbringung von ^{137}Cs -haltiger Lösung aus dem Sumpf vor ELK 12/750 und in Kammer 11/700.

Die Herkunft der Lösung und der Kontamination im Sumpf 12 vor ELK 12/750 ist qualitativ geklärt. Es fehlt aber an einer quantitativen Aussage zur räumlichen Verteilung der Kontamination. Die dazu nötigen geochemischen und radiometrischen Daten werden in AP II erhoben und entsprechend ausgewertet. Die Herkunft der Lösungen im westlichen Bereich der Südflanke auf der 750-m-Sohle ist ebenfalls grundsätzlich geklärt. Hier fehlt aber der Nachweis der Herkunft ihrer Kontamination. Hierzu dienen die Arbeiten im AP III, mit denen insbesondere durch geochemische und radiometrische Untersuchungen von Lösungen und Festkörpern die Entwicklung der Kontamination und die Herkunft der künstlichen Radionuklide geklärt werden sollen.

6. Verzeichnis der herangezogenen Unterlagen

- /1/ Statusbericht des Niedersächsischen Ministerium für Umwelt und Klimaschutz über die Schachtanlage Asse II vom 1.9.2008.
- /2/ ESK SSK (2008) Gemeinsame Stellungnahme der ESK und SSK zur Schachtanlage Asse II.
- /3/ Betriebsstörungen bei der Einlagerung. Bericht auf der Homepage des BfS.
www.bfs.de/de/endlager/asse/sicherheit/betriebsstoerungen
- /4/ Lennartz und Mengel (2008) Bericht an BMBF: Herkunft der kontaminierten Lösung vor Kammer 12 auf der 750-m-Sohle der Schachtanlage Asse II.
- /5/ Schmidt (2006) Geochemische Untersuchungen zur Herkunft salinärer Lösungen: Sr- und Pb-Isotope als Tracer in Lösungen des FB Asse.
- /6/ (2008) HMGU-Bericht vom 7.8.2008: Befragungen ehemaliger und langjähriger Mitarbeiter der Schachtanlage Asse II.
- /7/ (1980) INE-Notiz zur Befahrung am 10.9.1980.
- /8/ Aktennotiz (2008).
- /9/ (2008): Chronologie des Lösungszutritts.
- /10/ ERCOSPLAN (2003) GSF-Bericht: Geochemische Bewertung der Salzlösungszutritte im Bergwerk Asse II.
- /11/ (Asse-GmbH), (IELF, TU Clausthal) (2009):
Zusammenstellung der Salzlösungs- und Gaszutritte im Grubengebäude der Schachtanlage Asse II.
- /12/ Kühn, Borchert, Klarr (1967) Studie über die bisherigen Laugenzuflüsse auf den Asse-Schächten und die Gefahr eines Wasser- oder Laugeneinbruches in das Grubengebäude des Schachtes II. GSF-Bericht.
- /13/ (2008) HMGU-Bericht vom 13.2.2008: Überwachung der Lauge auf Kontamination aus dem Bereich der südlichen Richtstrecke auf der 750-m-Sohle im Rahmen des betrieblichen Strahlenschutzes. (inkl. Datensammlung)
- /14/ Brenk Systemplanung, Aachen (2008) Standortbezogene Freigabe von Zutrittslösungen aus der Schachtanlage Asse (Rev. 00).
- /15/ Schmidt (2009) Stellungnahme an die ESK/SSK vom 22.1.2009 zum Tritium-Inventar des Bergwerks Asse II.
- /16/ GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH (2002). Bestimmung des nuklidspezifischen Aktivitätsinventars der Schachtanlage Asse. Abschlussbericht.