

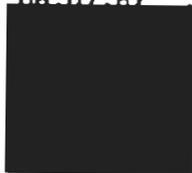
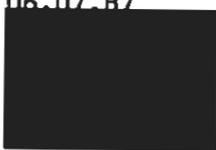


## DECKBLATT

EU 140	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	352136.31	-	MR	RB	0011	00

<b>Titel der Unterlage:</b> Probennahme 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	Seite:
	I.
	Stand:
<b>Ersteller:</b> Freie Universität Berlin	August 1985
	Textnummer:

Stempelfeld:

PSP-Element TP...9K/212854		zu Plan-Kapitel: 3.9.4	
		PL 06.07.87  Freigabe für Behörden	PL 06.07.87  Freigabe im Projekt

Diese Unterlage unterliegt ausschließlich dem Schutz des Erheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Versendung und darf vom Empfänger nur vertragsbezogen genutzt, veröffentlicht und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung der PTB.

# Revisionsblatt



EU 140	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	352136.31	-	MR	RB	0011	00

**Titel der Unterlage:**  
 Probennahme 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

Seite:  
 II.

Stand:  
 August 1985

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.

Institut für Angewandte Geologie der  
Freien Universität Berlin

Probenahme von repräsentativen Gesteinen und Wässern  
für den Standort Schachtanlage Konrad.  
Experimentelle Untersuchungen zum Sorptions-/  
Desorptionsverhalten der Gesteine für die Radionuklide  
Selen, Zirkon/Niob und Technetium.



August 1985

Auftragnehmer: Freie Universität Berlin  
Institut für Angewandte Geologie

Projektleiter:



Bearbeiter:



Titel: 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

Berichtszeitraum: 1.6.1983 - 31.5.1985

Berlin, August 1985

Der Bericht wurde im Auftrag der PHYSIKALISCH-TECHNISCHEN  
BUNDESANSTALT (PTB) erstellt.

## Zusammenfassung

Die am Institut für Angewandte Geologie der Freien Universität Berlin im Auftrage der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt durchgeführten Arbeiten zum Migrationsverhalten von Radionukliden in Gesteinen des Standortes Schachtanlage Konrad gliederten sich in zwei Abschnitte:

1. Probenahme von Fest- und Lockergesteinen sowie zugehöriger natürlicher Wässer.
2. Experimentelle Arbeiten zum Sorptionsverhalten von Radionukliden der Elemente Selen, Zirkon, Niob und Technetium.

Die Probenahme erfolgte mit dem Ziel, in Abstimmung mit der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt, der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, der Technischen Universität Braunschweig und der Grubenleitung der Schachtanlage Konrad, eine standortbezogene repräsentative Auswahl von Fest- und Lockergesteinen nebst zugehöriger Grund- bzw. Tiefenwässer in ausreichender Menge und qualitativ einwandfreier Form zu gewinnen und den gleichfalls mit Sorptionsuntersuchungen beauftragten anderen Arbeitsgruppen zur Verfügung zu stellen.

Die Gewinnung und der Versand erfolgte in drei verschiedenen Korngrößenfraktionen, die für die Untersuchungen einzusetzen waren.

Bei den experimentellen Arbeiten kamen methodisch verschiedene Untersuchungsverfahren zur Anwendung:

Zur Ermittlung von Sorptionsgleichgewichten zwischen den mit Radionukliden beaufschlagten natürlichen Wässern und den Fest- bzw. Lockergesteinen kamen Schüttelversuche zur

Anwendung, die jeweils einen Adsorptions- und Desorptionsversuch umfaßten. In diesem Rahmen wurde der Einfluß verschiedener Komplexbildner, die Veränderung der physiko-chemischen Bedingungen und verschiedene Parametervariationen (V/M-Verhältnis; Radionuklidkonzentration) in ihren Auswirkungen auf die Sorptionsgleichgewichte untersucht.

An einigen Gesteinen des Grubengebäudes wurde das Sorptionsverhalten in Umlaufsäulenversuchen betrachtet. Bei den mit verschiedenen Korngrößenfraktionen durchgeführten Untersuchungen wird das ruhende Gestein von den mit den Radionukliden beaufschlagten Wässern wiederholt umspült. Neben der ständigen Kontrolle der pH- und Eh-Werte war es möglich, das Verhalten der Radionuklide über einen längeren Zeitraum zu beobachten.

In Durchlaufsäulenexperimenten konnte das Sorptionsverhalten nach einer pulsformigen Radionuklidabgabe betrachtet werden. Als Vergleich zum Ausbreitungsverhalten der Radionuklide diente ein idealer Tracer. Verwendung fanden in Abhängigkeit von der Korngrößenfraktion unterschiedlich dimensionierte Säulenkörper.

In Diffusionsexperimenten erfolgte eine Betrachtung des diffusiven Transportes der Radionuklide durch die Festgesteine. Aus den zeitlichen Konzentrationsänderungen ließen sich Diffusions- und Verteilungskoeffizienten  $K_D$  bestimmen.

Aus den Gesteinen der Oberkreide und des Grubengebäudes wurden 12 verschiedene Festgesteine sowie ein Lockergestein (Quartär) gewonnen, die einen repräsentativen Querschnitt der im Bereich des Standortes Konrad auftretenden Gesteine bilden. Parallel erfolgte die Gewinnung natürlicher Wässer, die mit diesen Gesteinen in einem zumindest gleichgewichtsnahen Zustand standen.

Für Technetium lassen die aus Schüttelversuchen gewonnenen Ergebnisse für die Gesteine der Oberkreide gegenüber den Gesteinen des Grubengebäudes allgemein kleinere  $R_S$ -Werte erkennen. Bei den Gesteinen des Grubengebäudes kann insbesondere bei den Gesteinen Erzkalke, Fladentonstein und Heersumer Schichten ( $R_S > 1$ ) eine größere Festlegung beobachtet werden. Verschiedene Komplexbildner haben auf das Sorptionsverhalten des Technetiums in den untersuchten Konzentrationsbereichen keinen Einfluß.

Die in den Durchlaufsäulenversuchen erzielten Ergebnisse zeigen für die Gesteine der Oberkreide gegenüber den Gesteinen des Grubengebäudes, wie in den Schüttelversuchen kleinere  $K_D$ -Werte. Aus den an den Gesteinen des Grubengebäudes ermittelten Werten sind die hohen Retardationsfaktoren und  $K_D$ -Werte der Gesteine Erzkalke und Fladentonstein hervorzuheben, die erheblich über den in den Schüttelversuchen erzielten Werten liegen.

In den Umlaufsäulenversuchen zeigt sich beim Gestein Fladentonstein in allen drei betrachteten Korngrößenfraktionen innerhalb kurzer Zeit eine vollständige Festlegung des Radionuklids. Eine versuchte Remobilisierung war ohne Erfolg. Für die Gesteine Hangendes und Liegendes Erz konnte eine korngrößenabhängige Adsorption beobachtet werden. Während in der Kornfraktion 6-20mm in beiden Gesteinen eine vollständige Festlegung erkennbar war, ließen sich beim Hangenden Erz in der mittleren und kleinen Kornfraktion  $R_S$ -Werte  $< 1$  (ml/g) beobachten, während beim Liegenden Erz der  $R_S$ -Wert in der mittleren Kornfraktion  $\sim 1$  war. Die Heersumer Schichten, untersucht wurde die mittlere Korngrößenfraktion, zeigten einen  $R_S$ -Wert von  $\sim 4.5$  ml/g. Gegenüber den Schüttelversuchen sind die in den Umlaufsäulenversuchen erzielten Sorptionswerte deutlich größer.

Die nach Abschluß der Umlaufsäulenversuche durchgeführte Ermittlung der Konzentrations-Orts-Verteilung erbrachte über die Säulenlänge eine gleichmäßige Festlegung des Radionuklids im Gestein.

Die aus den Diffusionsversuchen ermittelten  $K_D$ -Werte sind im Vergleich zu den Sorptionswerten, ermittelt mit den anderen eingesetzten Untersuchungsverfahren deutlich kleiner. Einige Gesteine des Grubengebäudes lassen jedoch auch hier eine deutliche Festlegung des Radionuklids erkennen.

Das Radionuklid Selen weist in den Schüttelversuchen allgemein  $R_S$ -Werte  $< 1$  (ml/g) auf. In den Gesteinen der Oberkreide läßt sich mit der Zunahme der Mineralisation der natürlichen Wässer eine Abnahme der  $R_S$ -Werte erkennen. Die Zugabe der Komplexbildner EDTA bzw. waschaktiver Substanzen ist in den untersuchten Konzentrationsbereichen ohne Einfluß. Die Zugabe von Zitronensäure bewirkt in den Gesteinen der Oberkreide eine Abnahme der  $R_S$ -Werte. In den Durchlaufsäulenversuchen können für die Gesteine der Oberkreide allgemein  $K_D$ -Werte  $< 0.1$  (ml/g) beobachtet werden, während für die Gesteine des Grubengebäudes die  $K_D$ -Werte allgemein  $> 0.2$  (ml/g) sind. Die ermittelten Retardationsfaktoren sind für die Gesteine des Grubengebäudes i.a. gleichfalls höher. In den Umlaufsäulenversuchen ist in allen untersuchten Gesteinen nur eine geringe Festlegung erkennbar. Aus den Diffusionsversuchen ergaben sich allgemein sehr kleine  $K_D$ -Werte.

Die Radionuklide Zirkon und Niob weisen eine große Festlegung auf. Für Niob läßt sich bei den Gesteinen der Oberkreide mit zunehmender Mineralisation der eingesetzten Wässer eine Mobilisierung beobachten. Von den Komplexbildnern wirkt sich EDTA in dem untersuchten Konzentrationsbereich auf das Zirkon mobilisierend aus.

Verzeichnis der Abbildungen:

	Seite
Abb. 1: Lage der Probenahmepunkte für die Gesteine der Oberkreide	30
Abb. 2: Probenahme des Gesteins U/M Cenoman im Steinbruch Baddeckenstedt	31
Abb. 3: Lage der untertägigen Probenahmepunkte	33
Abb.3a- Lageskizzen zu den Entnahmepunkten 3d: in Abbildung 3	34- 37
Abb. 4: Kornsummenkurve des Versatzmaterials	38
Abb. 5: Darstellung der Analysenergebnisse der beprobten Wässer nach HEM/SCHOELLER	47
Abb.5a: Zeitabhängige Veränderung der Eh- pH-Werte des Hils sandsteines im Kontakt mit dem Hils-Wasser	49
Abb. 6: Aus den Grubengesteinen eluierbare Hauptinhaltsstoffe	52
Abb. 7: Aufbau(schematisch) der Durchlaufsäulen	57
Abb. 8: Aufbau der Umlaufsäulen(schematisch)	65
Abb. 9: Eingesetztes Diffusionsgefäß(schematisch)	68
Abb.10: Ermittlung der Zeitabhängigkeit für die Gleichgewichtseinstellung Gestein(Kornfraktion 0,2-2mm)/Wasser zur Festlegung der Schüttelzeit	70
Abb.11: Entwicklung der $R_S$ -Werte in Abhängigkeit von der Schüttelzeit für das Radionuklid Technetium (Korngrößenfraktion 6-20mm)	81
Abb.12: Einfluß der Konzentration des Radionuklids Technetium auf das Sorptionsverhalten für die Gesteine des Grubengebäudes/Wasser der Str.670	82
Abb.13: Einfluß der Konzentration des Radionuklids Technetium auf das Sorptionverhalten für die Gesteine der Oberkreide/Söhlde-Wasser	83
Abb.14: Einfluß der Konzentration des Radionuklids Selen auf das Sorptionverhalten für die Gesteine der Oberkreide/Söhlde-Wasser	84
Abb.15: Einfluß der Konzentration des Radionuklids Selen auf das Sorptionverhalten für die Gesteine des Grubengebäudes /Wasser der Strecke 670	93

	<u>Seite</u>
Abb.16: Abhängigkeit der $R_S$ -Werte vom V/M-Verhältnis für das Radionuklid Technetium; betrachtete Gesteine:Liegendes Erz, Fladentonstein; Wasser der Strecke 670	95
Abb.17: Abhängigkeit der $R_S$ -Werte vom V/M-Verhältnis für das Radionuklid Selen	96
Abb.18: Durchlaufssäule Lamarcki-Pläner, Fraktion 20-6mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 100cm	127
Abb.19: Durchlaufssäule Lamarcki-Pläner, Fraktion 6-2mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 50cm	128
Abb.20: Durchlaufssäule Rotpläner, Fraktion 20-6mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 100cm	129
Abb.21: Durchlaufssäule Rotpläner, Fraktion 6-2mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 50cm	130
Abb.22: Durchlaufssäule Rhotomag.-Pläner, Fraktion 20-6mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 100cm	131
Abb.23: Durchlaufssäule Rhotomag.-Pläner, Fraktion 6-2mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 50cm	132
Abb.24: Durchlaufssäule U/M Cenoman, Fraktion 20-6mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 100cm	133
Abb.25: Durchlaufssäule U/M Cenoman, Fraktion 6-2mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 50cm	134
Abb.26: Durchlaufssäule Lamarcki-Pläner, Fraktion 6-2mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 20cm	135
Abb.27: Durchlaufssäule U/M Cenoman, Fraktion 6-2mm Söhle-Wasser, Säulenlänge 20cm	136
Abb.28: Durchlaufssäule Kimmeridge, Fraktion 20-6mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 100cm	137
Abb.29: Durchlaufssäule Kimmeridge, Fraktion 6-2mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 50cm	138
Abb.30: Durchlaufssäule Liegendes Erz, Fraktion 20-6mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 100cm	139
Abb.31: Durchlaufssäule Liegendes Erz, Fraktion 6-2mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 50cm	140
Abb.32: Durchlaufssäule Erzkalke, Fraktion 20-6mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 100cm	141
Abb.33: Durchlaufssäule Erzkalke, Fraktion 6-2mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 50cm	142

	<u>Seite</u>
Abb.34: Durchlaufsäule Fladentonstein, Fraktion 20-6mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 100cm	143
Abb.35: Durchlaufsäule Fladentonstein, Fraktion 6-2mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 50cm	144
Abb.36: Durchlaufsäule Hang. Erz, Fraktion 6-2mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 20cm	145
Abb.37: Durchlaufsäule Heersumer Schichten, Fraktion 6-2mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 20cm	146
Abb.38: Durchlaufsäule Versatz, Fraktion <2mm Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 20cm	147
Abb.39: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Kimmeridge, Fraktion 20-6mm, Wasser der Strecke 670	150
Abb.40: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Kimmeridge, Fraktion 6-2mm, Wasser der Strecke 670	151
Abb.41: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Liegendes Erz, Fraktion 6-2mm, Wasser der Strecke 670	151
Abb.42: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Liegendes Erz, Fraktion 20-6mm, Wasser der Strecke 670	152
Abb.43: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Erzkalke, Fraktion 20-6mm, Wasser der Strecke 670	153
Abb.44: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Fladentonstein, Fraktion 20-6mm, Wasser der Strecke 670	154
Abb.45: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Erzkalke, Fraktion 6-2mm, Wasser der Strecke 670	155
Abb.46: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Fladentonstein, Fraktion 6-2mm, Wasser der Strecke 670	155
Abb.47: Konzentration-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Rotpläner, Fraktion 6-2mm, Söhlde-Wasser	156
Abb.48: Aufteilung der beobachteten Zeit-Konzentrations- Verteilung in zwei Teilpopulationen	157
Abb.49: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Hangendes Erz; Korngrößenfraktion 0,2-2mm; Säulenlänge 20cm	159

Abb.50: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Hangendes Erz; Korngrößenfraktion 2-6mm; Säulenlänge 50cm	159
Abb.51: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Hangendes Erz; Korngrößenfraktion 6-20mm; Säulenlänge 100cm	160
Abb.52: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Liegendes Erz; Korngrößenfraktion 0,2-2mm; Säulenlänge 20cm	162
Abb.53: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Liegendes Erz; Korngrößenfraktion 2-6mm; Säulenlänge 50cm	162
Abb.54: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Liegendes Erz; Korngrößenfraktion 6-20mm; Säulenlänge 100cm	163
Abb.55: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Heersumer Sch.; Korngrößenfraktion 2-6mm; Säulenlänge 50cm	164
Abb.56: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Fladentonstein; Korngrößenfraktion 0,2-2mm; Säulenlänge 20cm	166
Abb.57: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Fladentonstein; Korngrößenfraktion 2-6mm; Säulenlänge 50cm	166
Abb.58: Zeitabhängige Entwicklung der $R_S$ - und $R_D$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Fladentonstein; Korngrößenfraktion 6-20mm; Säulenlänge 100cm	167
Abb.59: Konzentration-Orts-Verteilung der Radionuklide Technetium und Selen in der 100cm Umlaufsäule; Gestein: Hangendes Erz; Korngrößenfraktion 6-20mm	169
Abb.60: Konzentration-Orts-Verteilung der Radionuklide Technetium und Selen in der 100cm Umlaufsäule; Gestein: Liegendes Erz; Korngrößenfraktion 6-20mm	169

	<u>Seite</u>
Abb.61: Konzentration-Orts-Verteilung der Radionuklide Technetium und Selen in der 50cm Umlaufsäule; Gestein: Fladentonstein; Korngrößenfraktion 2-6mm	170
Abb.62-67: Fladentonstein (Erzanschliffe; 80 bzw. 320fache Vergrößerung)	173-175
Abb.68: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lamarcki-Pl./Söhlde-Wasser	177
Abb.69: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lamarcki-Pl./Söhlde-Wasser	177
Abb.70: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lamarcki-Pl./Söhlde-Wasser	177
Abb.71: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lamarcki-Pl./Söhlde-Wasser	178
Abb.72: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rotpläner/Söhlde-Wasser	178
Abb.73: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rotpläner/Söhlde-Wasser	178
Abb.74: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rhotomag.-Pl./Söhlde-Wasser	179
Abb.75: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rhotomag.-Pl./Söhlde-Wasser	179
Abb.76: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rhotomag.-Pl./Söhlde-Wasser	179
Abb.77: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rhotomag.-Pl./Söhlde-Wasser	180
Abb.78: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Kimmeridge/Wasser der Strecke 670	180
Abb.79: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Kimmeridge/Wasser der Strecke 670	180

Abb.80: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Hang. Erz/ Wasser der Strecke 670	181
Abb.81: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Hang. Erz/ Wasser der Strecke 670	181
Abb.82: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Hang. Erz/ Wasser der Strecke 670	181
Abb.83: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Hang. Erz/ Wasser der Strecke 670	182
Abb.84: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lieg. Erz/ Wasser der Strecke 670	182
Abb.85: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lieg. Erz/ Wasser der Strecke 670	182
Abb.86: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lieg. Erz/ Wasser der Strecke 670	183
Abb.87: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lieg. Erz/ Wasser der Strecke 670	183
Abb.88: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Erzkalk-Serie/ Wasser der Strecke 670	183
Abb.89: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Erzkalk-Serie/ Wasser der Strecke 670	184
Abb.90: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Fladentonstein/ Wasser der Strecke 670	184
Abb.91: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Fladentonstein/ Wasser der Strecke 670	184
Abb.92: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Fladentonstein/ Wasser der Strecke 670	185
Abb.93: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Heersumer Sch./ Wasser der Strecke 670	185

	<u>Seite</u>
• Abb.94: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Heersumer Sch./Wasser der Strecke 670	185
Abb.95: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Cornbrash-Sdst./Wasser der Strecke 670	186
Abb.96: Zeitlicher Konzentrations-Verlauf(Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Cornbrash-Sdst./Wasser der Strecke 670	186
Abb.97: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Lamarcki-Pl.; Kontaktzeit RN-Lsg.-Gestein >200d	191
Abb.98: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Kimmeridge; Kontaktzeit RN-Lsg.-Gestein >200d	191
Abb.99: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Erzkalke; Kontaktzeit RN-Lsg.-Gestein >200d	191
Abb.100: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Erzkalke; Kontaktzeit RN-Lsg.-Gestein >150d	192
Abb.101: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Fladentonstein; Kontaktzeit RN-Lsg.-Gestein >200d	192
Abb.102: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Fladentonstein; Kontaktzeit RN-Lsg.-Gestein >150d	192
Abb.103: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Fladentonstein; Kontaktzeit RN-Lsg.-Gestein >150d	193

Verzeichnis der Tabellen:

	<u>Seite</u>
Tab. 1: Quantitative Mineralzusammensetzung der beprobten Festgesteine (nach SCHNEIDER/ZACHMANN,1984)	39
Tab. 2: Gehalte an org. C, carb. C und Schwefel in den beprobten Festgesteinen	40
Tab. 3: Mengenverteilung der Gesteinsproben an die verschiedenen Arbeitsgruppen	42
Tab. 4: Hydrochemische Zusammensetzung der beprobten Wässer	45
Tab. 5: Entwicklung der Eh- und ph-Werte während der Äquilibrierung des Hils-Wassers mit den Grubengesteinen	50
Tab. 6: In den Sorptionsversuchen eingesetzte Radionuklide	53
Tab. 7: Parameter der Umlaufsäulen	66
Tab. 8: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.7 \cdot 10^{-5}$ Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	71
Tab. 9: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.7 \cdot 10^{-5}$ Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	71
Tab. 10: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.7 \cdot 10^{-5}$ Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	72
Tab. 11: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.7 \cdot 10^{-5}$ Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	72
Tab. 12: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: $3.7 \cdot 10^{-5}$ Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	73
Tab. 13: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: $3.7 \cdot 10^{-5}$ Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	73

Tab. 14: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	74
Tab. 15: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	74
Tab. 16: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	76
Tab. 17: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	76
Tab. 18: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	77
Tab. 19: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	77
Tab. 20: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	78
Tab. 21: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	78
Tab. 22: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	79

Tab. 23: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: $3.7 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	79
Tab. 24: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $2.96 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 233.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	85
Tab. 25: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $2.96 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 233.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	85
Tab. 26: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $2.96 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 1000h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	86
Tab. 27: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $2.96 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 1000h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	86
Tab. 28: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $7.4 \cdot 10^3$ Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	87
Tab. 29: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $7.4 \cdot 10^3$ Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	87
Tab. 30: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $7.4 \cdot 10^3$ Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	88

Tab. 31: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $7.4 \cdot 10^3$ Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	88
Tab. 32: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: $6.7 \cdot 10^4$ Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	89
Tab. 33: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: $6.7 \cdot 10^4$ Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	89
Tab. 34: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: $6.7 \cdot 10^4$ Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	90
Tab. 35: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: $6.7 \cdot 10^4$ Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	90
Tab. 36: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $6.17 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	91
Tab. 37: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $6.17 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	91
Tab. 38: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $6.17 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	92
Tab. 39: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $6.17 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	92

- Tab. 40: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 2-6mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $2.96 \cdot 10^{-5}$  Bq/l; Schüttelzeit 332h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 97
- Tab. 41: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 2-6mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $2.96 \cdot 10^{-5}$  Bq/l; Schüttelzeit 332h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 97
- Tab. 42: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, eingestellt auf  $\text{pH} < 7$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \cdot 10^{-5}$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 98
- Tab. 43: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, eingestellt auf  $\text{pH} < 7$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \cdot 10^{-5}$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 98
- Tab. 44: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, eingestellt auf  $\text{pH} > 7$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \cdot 10^{-5}$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 99
- Tab. 45: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, eingestellt auf  $\text{pH} > 7$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \cdot 10^{-5}$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 99
- Tab. 46: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \cdot 10^{-5}$  Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 100

Tab. 47: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	100
Tab. 48: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	101
Tab. 49: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	101
Tab. 50: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670 - 1:2 verdünnt; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	102
Tab. 51: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670 - 1:2 verdünnt; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	102
Tab. 52: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670 - 1:2 verdünnt; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	103
Tab. 53: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670 - 1:2 verdünnt; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	103
Tab. 54: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Verhältnis V/M = 1 Kornfraktion 2-6mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	104

Tab. 55: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Verhältnis V/M = 1 Kornfraktion 2-6mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	104
Tab. 56: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Verhältnis V/M = 10 Kornfraktion 2-6mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 4.63 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	105
Tab. 57: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Verhältnis V/M = 10 Kornfraktion 2-6mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	105
Tab. 58: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; EDTA-Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	106
Tab. 59: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; EDTA-Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	106
Tab. 60: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; EDTA-Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	107
Tab. 61: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; EDTA-Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	107
Tab. 62: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; EDTA-Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	108

Tab. 63: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; EDTA-Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	108
Tab. 64: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; EDTA-Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	109
Tab. 65: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; EDTA-Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	109
Tab. 66: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartärs mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 50 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	111
Tab. 67: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 50 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	111
Tab. 68: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartärs mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 50 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	112
Tab. 69: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 50 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	112
Tab. 70: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartärs mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 5 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	113

Tab. 71: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 5 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	113
Tab. 72: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartärs mit Söhlde-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 5 mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	114
Tab. 73: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 5 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	114
Tab. 74: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartärs mit Söhlde-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 5 mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	115
Tab. 75: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 5 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	115
Tab. 76: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartärs mit Söhlde-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 5 mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	116
Tab. 77: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 5 mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	116

Tab. 78: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartärs mit Söhlde-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von Citronensäure, Konzentration: $8.3 \cdot 10^{-7}$ mol/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 338h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	117
Tab. 79: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von Citronensäure, Konzentration: $8.3 \cdot 10^{-7}$ mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 338h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	117
Tab. 80: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartärs mit Söhlde-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von Citronensäure, Konzentration: $8.3 \cdot 10^{-7}$ mol/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 338h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	118
Tab. 81: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von Citronensäure, Konzentration: $8.3 \cdot 10^{-7}$ mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 338h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	118
Tab. 82: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur $35^{\circ}\text{C}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 345h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	119
Tab. 83: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur $35^{\circ}\text{C}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 345h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	119
Tab. 84: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur $50^{\circ}\text{C}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 343h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	120
Tab. 85: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur $50^{\circ}\text{C}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \cdot 10^5$ Bq/l; Schüttelzeit 343h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	120

- Tab. 86: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur 50°C; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 343h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 121
- Tab. 87: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur 50°C; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 343h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 121
- Tab. 88: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Zugabe von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Konzentration: 10 E-6 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 122
- Tab. 89: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Zugabe von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Konzentration: 10 E-6 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 122
- Tab. 90: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Zugabe von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 123
- Tab. 91: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Zugabe von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 123
- Tab. 92: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Trägerung mit Na<sub>2</sub>SeO<sub>3</sub>\*5H<sub>2</sub>O, Konzentration: 10 E-8 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen. 124

Tab. 93: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Trägerung mit $\text{Na}_2\text{SeO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , Konzentration: $10 \text{ E-}8 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion $0.2\text{-}2\text{mm}$ ; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	124
Tab. 94: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Trägerung mit $\text{Na}_2\text{SeO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , Konzentration: $10 \text{ E-}5 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion $0.2\text{-}2\text{mm}$ ; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	125
Tab. 95: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Trägerung mit $\text{Na}_2\text{SeO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , Konzentration: $10 \text{ E-}5 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion $0.2\text{-}2\text{mm}$ ; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.	125
Tab. 96: Physikalisch-hydraulische Eigenschaften der Durchlaufsäulen	148
Tab. 97: Ergebnisse der Migrationsversuche mit Durchlaufsäulen	148
Tab. 98: Masse- und Volumenbezogene spez. Aktivitäten in den Umlaufsäulen	171
Tab. 99: Aus den Diffusionsversuchen ermittelte Diffusionskoeffizienten $D$ , Gesteinskapazitätsfaktoren und Verteilungskoeffizienten $K_D$ .	187

Inhaltsverzeichnis		Seite
	Zusammenfassung	
	Verzeichnis der Abbildungen	
	Verzeichnis der Tabellen	
1.	Einleitung	26
2.	Probenahme	27
2.1.	Probenahme von Gesteinen	27
2.1.1.	Ansprüche und Auswahlkriterien	27
2.1.2.	Probenahme von Gesteinen aus dem Deckgebirge	28
2.1.2.1.	Quartär	28
2.1.2.2.	Lamarcki-Pläner	29
2.1.2.3.	Rotpläner	29
2.1.2.4.	Rhotomagensis-Pläner	31
2.1.2.5.	Unter- bis Mittel- Cenoman	31
2.1.2.6.	Hils-Sandstein	32
2.1.3.	Probenahme von Gestein aus dem Grubengebäude	32
2.1.3.1.	Kimmeridge	32
2.1.3.2.	Hangendes Erz	34
2.1.3.3.	Liegendes Erz	35
2.1.3.4.	Erzkalkserie	36
2.1.3.5.	Fladentonstein-Serie	36
2.1.3.6.	Heersumer Schichten	36
2.1.3.7.	Cornbrash-Sandstein	37
2.1.3.8.	Versatzmaterial	38
2.1.4.	Sedimentpetrographische Untersuchung der Gesteine	38
2.1.5.	Verarbeitung, Behandlung und Versand des Probenmaterials	41
2.2.	Probenahme Wasser	41
2.2.1.	Salzwasser	43
2.2.2.	Süßwasser	44
3.	Hydrochemische Zusammensetzung der Wässer	44
4.	Laboruntersuchungen	48
4.1.	Voruntersuchungen zur Gleichgewichtseinstellung Gestein-Wasser	48
4.2.	Eingesetzte Radionuklide	51

	Seite
4.3. Schüttelversuche	53
4.3.1. Durchführung von Schüttelversuchen	53
4.3.2. Auswertung von Schüttelversuchen	56
4.4. Durchlaufsäulenversuche	56
4.4.1. Durchführung der Durchlaufsäulenversuche	56
4.4.2. Auswertung von Durchlaufsäulenversuchen	59
4.5. Umlaufsäulenversuche	63
4.5.1. Durchführung von Umlaufsäulenversuchen	63
4.5.2. Auswertung von Umlaufsäulenversuchen	66
4.6. Diffusionsversuche	67
4.6.1. Durchführung der Diffusionsversuche	67
4.6.2. Auswertung der Diffusionsversuche	68
5. Ergebnisse	70
5.1. Schüttelversuche	70
5.2. Durchlaufsäulenversuche	126
5.3. Umlaufsäulenversuche	158
5.4. Diffusionsversuche	176
6. Literatur	194

## 1. Einleitung

Die in der Zeit vom 1.6.1983 bis zum 31.5.1985 am Institut für Angewandte Geologie der Freien Universität Berlin im Auftrage der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt (PTB) durchgeführten Arbeiten hatten zum Ziel, anhand experimenteller Untersuchungen zum Migrationsverhalten von Radionukliden Aussagen über die Barriereigenschaften des Deckgebirges im Bereich des geplanten Endlagers Konrad zu gewinnen.

Die erste Arbeitsphase beinhaltete neben der, in Zusammenarbeit mit der PTB, der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), dem Institut für Geologie und Paläontologie der Technischen Universität Braunschweig, der Grubenleitung der Schachanlage Konrad und dem Institut für Tieflagerung der Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung getroffenen Auswahl repräsentativer Gesteine und zugehörige Wässer, die Probenahme der Gesteine und Wässer sowie die Aufbereitung und den Versand der entnommenen Wässer und Gesteine an drei weitere von der PTB mit Migrationsuntersuchungen beauftragte Arbeitsgruppen.

In der zweiten Arbeitsphase erfolgten die experimentellen Untersuchungen zum Migrationsverhalten mit Hilfe von Schüttel-, Umlaufsäulen-, Durchflußsäulen- und Diffusionsversuchen zur Ermittlung von Sorptionsverteilungs- und Diffusionskoeffizienten bzw. Retardationsfaktoren für die untersuchten Gesteine.

## 2. Probenahme

### 2.1 Probenahme von Gesteinen

Die Auswahl repräsentativer Gesteine für das Deckgebirge bzw. der im Grubengebäude anstehenden Schichtenfolgen und die Festlegung der Probenahmepunkte erfolgte in Zusammenarbeit mit den o.a. Behörden, Instituten bzw. der Grubenleitung, wobei das Institut für Geologie und Paläontologie der TU Braunschweig an der Auswahl der übertägigen Aufschlüsse für die Gesteine der Oberkreide beteiligt war und das IfT (GSF) den Entnahmepunkt für das quartäre Lockergestein festlegte.

#### 2.1.1. Ansprüche und Auswahlkriterien

Für die Untersuchungen zum Sorptionsverhalten von den Gesteinen im Deckgebirge und Grubengebäude des geplanten Endlagers Konrad gegenüber Radionukliden bestand zunächst die Aufgabe in der Beschaffung repräsentativer und homogener Proben für die experimentell arbeitenden Gruppen. Bei der Gewinnung und Verarbeitung von Lockergesteinsmaterial (Quartär) konnte die langjährige Erfahrung der an unserem Institut bestehenden Arbeitsgruppe bei der Probengewinnung aus dem Bereich des Salzstockes Gorleben eingebracht werden.

Für die zu beprobenden Festgesteine, in denen eine grundsätzlich unterschiedliche Grundwasserbewegung zu erwarten ist, war es erforderlich, Überlegungen anzustellen, in welcher Form die naturgegebenen Verhältnisse in Laborversuchen nachvollzogen werden können. Ausgehend von der Annahme einer primären Ausbreitung von Radionukliden über ein Kluftsystem, wurde erwogen, die Sorptionswerte nicht allein, wie üblich auf die Masse sondern auch auf die

Gesteinsoberfläche zu beziehen. Zu diesem Zweck wurden die Festgesteine schonend gebrochen und verschiedene Fraktionen mit ihren unterschiedlichen äußeren Oberflächen beprobt und allen Arbeitsgruppen zur Verfügung gestellt.

#### 2.1.2. Probenahme von Gesteinen aus dem Deckgebirge

Die Auswahl geeigneter übertägiger Aufschlüsse für die Entnahme von Gesteinen der Oberkreide aus dem Deckgebirge erfolgte anhand der von [REDACTED] (TU Braunschweig) in seinem Bericht vom 14.6.1983 dargelegten Vorschläge. Bei einer gemeinsamen Befahrung erfolgte vor Ort eine genaue Festlegung der einzelnen Entnahmepunkte.

Aus dem Deckgebirge wurden vier verschiedene Gesteinstypen ausgewählt. Auf die Beprobung des Hils-Sandsteines wurde verzichtet, weil die Aufschlüsse kein frisches Gestein darboten(s.a. Abs. 4.1.).

##### 2.1.2.1. Quartär

Am 7.6.1984 wurde die Lockergesteinsprobe aus dem Quartär entnommen. Der Ansatzpunkt der durchgehend gekernten Bohrung liegt auf dem Gelände der Stahlwerke Salzgitter, nahe dem Schacht Konrad II. Der beprobte Teufenbereich von 21.6 m - 35.6 m kennzeichnet sich durch eine Wechsellagerung von bindigen und sandigen Partien. Das vorher nicht erwartete reduzierende Milieu erforderte bei der Probenahme sowie bei der durchzuführenden Probenaufbereitung und Aufteilung (s.Abs. 2.1.4.) eine besondere Behandlung des Gesteins bezüglich des auszuschließenden Kontaktes mit dem Luftsauerstoff. Die Wechsellagerung von bindigen und sandigen Partien bedingte u.a. aus Gründen der Homogenisierung eine Aufteilung in eine stärker bindige und in eine sandige Teilprobe.

#### 2.1.2.2. Lamarcki-Pläner

Aus dem unteren Mittelturon wurde am 21.7.1983 in einem Steinbruch (r-Wert:3584780; h-Wert: 5783750) an der Straße Lesse-Söhlde (s.Abb.1) ein weißgrauer dichter Kalkstein beprobt.

Geologisch befindet sich der Steinbruch an der NW-Flanke der Lesser Mulde. Die gebankten Kalksteine fallen mit  $15-25^{\circ}$  nach SE ein. Vereinzelt treten zwischen den Kalksteinen dünne Mergelbänke auf. Das Probenmaterial wurde aus einem frischen Anschnitt dicht über der Steinbruchsohle entnommen. Bindiges Material aus Mergellagen wurde dabei soweit wie möglich ausgespart.

#### 2.1.2.3. Rotpläner

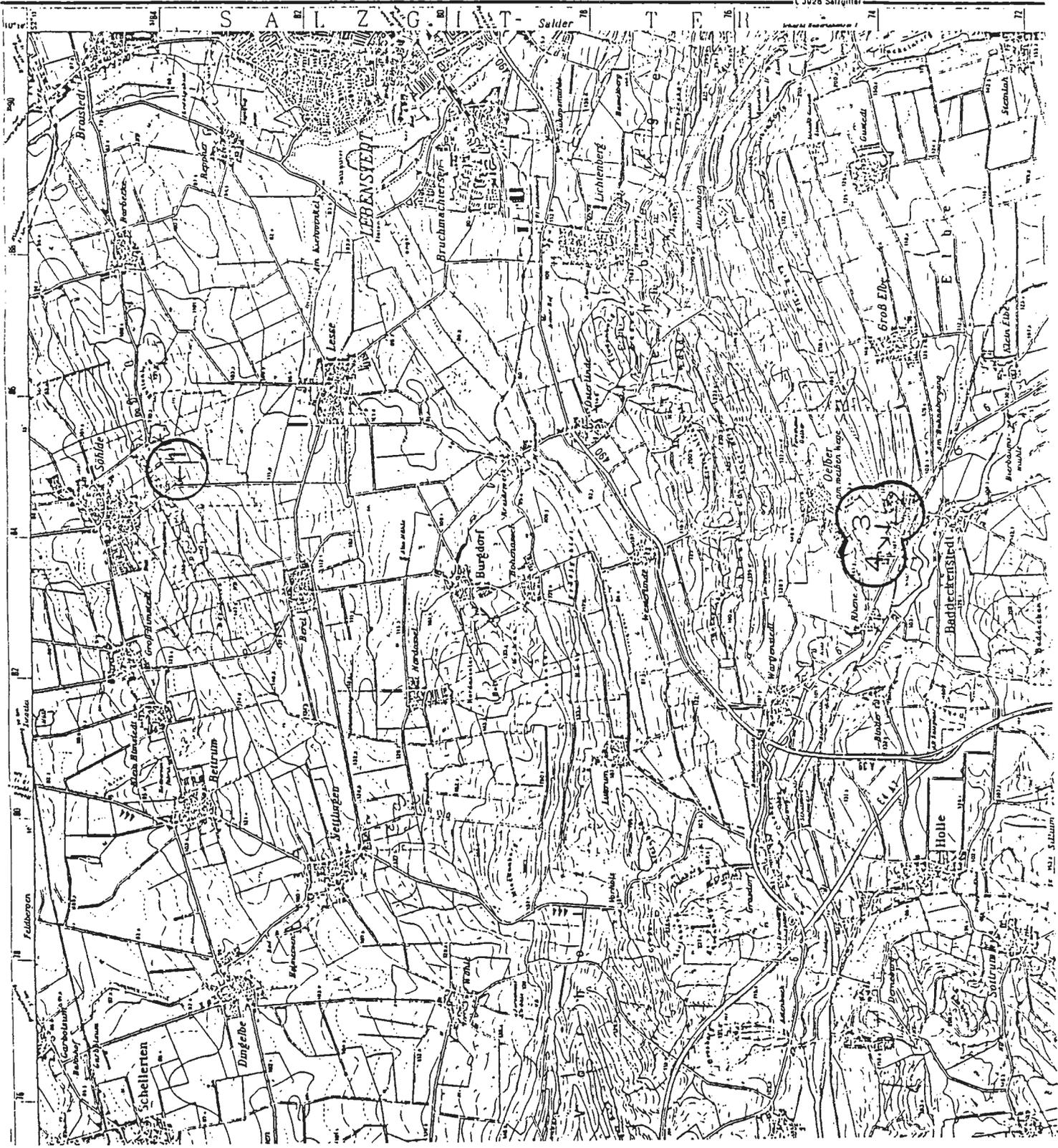
Am 6.7.1983 wurde in einem Steinbruch in Baddeckenstedt das untere Turon (Rotpläner) beprobt. Der Steinbruch (r-Wert:3584400; h-Wert:5773900) befindet sich an der Bundesstraße 6 nordwestlich des Ortsausganges (s.a.Abb.1). In diesem Steinbruch ist eine über 60 m mächtige Gesteinsfolge vom unteren (mittleren?) Cenoman bis zum unteren Turon aufgeschlossen. Der Entnahmepunkt befindet sich im östlichen Bereich des Steinbruches, wo, über eine Auffahrt zu erreichen, auf einer oberen Ebene die Rotpläner mit einer hier etwa 5 Meter mächtigen Gesteinsfolge aufgeschlossen sind. Bei dem Gestein handelt es sich um einen rotbraunen, flaserigen Kalkstein. Teilweise finden sich Einschaltungen grünlicher Tonmergelasern sowie Muschelfragmente. Zur Entnahme wurde mittels eines Schaufelbaggers ein frischer Aufschluß geschaffen.

# Probenahmeorte (überträge)

- 1 Lamarcki - Pläner  
U/M TURON
- 2 Rotpläner  
U TURON
- 3 Rhotomagensis - Pläner  
O CENOMAN
- 4 u/m Cenoman

Ausschnitt aus:  
Topographische Karte

Blatt L 3926



#### 2.1.2.4. Rhotomagensis-Pläner

Das obere Cenoman, die "Rhotomagensis Zone", wurde am 29.6.1983 gleichfalls in Baddeckenstedt beprobt. Im östlichen Bereich des Steinbruches, ca. 20 m vor der östlichen Steinbruchwand konnte aus der Steinbruchsohle mit einem Schaufelbagger vom Anstehenden frisches Probenmaterial herausgebrochen und verarbeitet werden. Bei dem Gestein handelt es sich um einen dichten, weißgrauen, massigen Kalkstein, der in etwa 10-20 cm mächtigen Bänken auftritt. Zwischengeschaltet finden sich dünne Mergellagen; auf den Klufflächen treten oft Dendriten auf.

#### 2.1.2.5. Unter- bis Mittel- Cenoman

Die Beprobung des unteren mittleren (oberen unteren?) Cenomans am 8.7.1983 erfolgte im westlichen Bereich des Steinbruches von Baddeckenstedt, ca. 2 m über der Steinbruchsohle. Mit Hilfe eines Schaufelbaggers wurde aus der Steinbruchwand frisches Probenmaterial gewonnen (s.a. Abb.2). Es handelt sich um einen grauen mergeligen

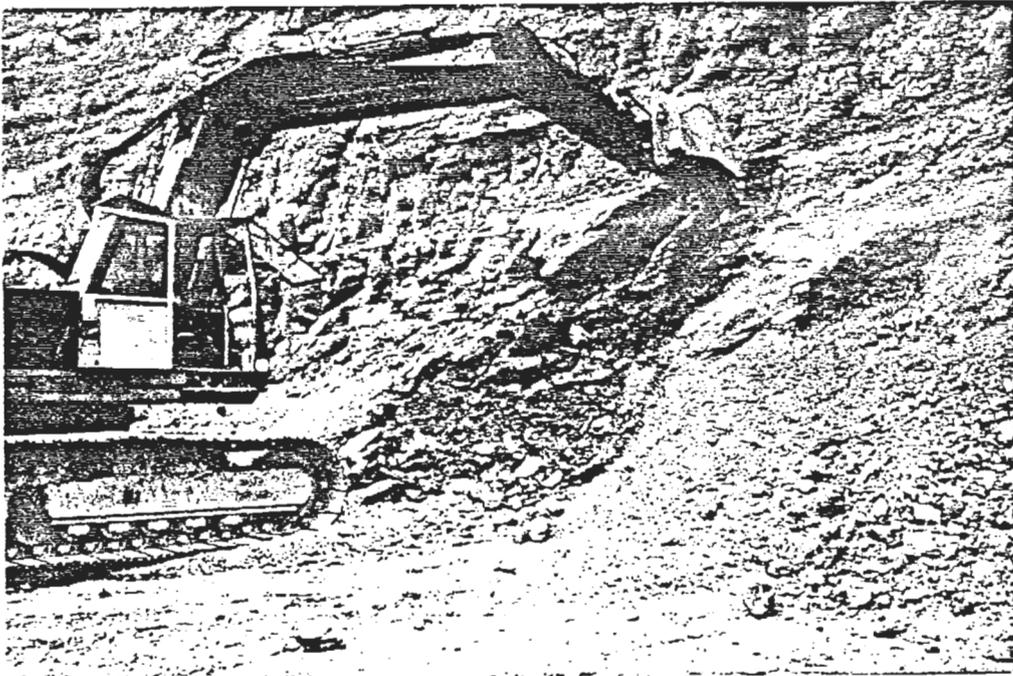


Abb. 2: Probenahme des Gesteins U/M Cenoman im Steinbruch Baddeckenstedt

Kalkstein; auf den Klufflächen, z.T. auch auf frischen Material, finden sich oxidische Beläge (Limonit). Unveränderter Pyrit konnte im Innern von Kluffkörpern erkannt werden.

#### 2.1.2.6. Hils-Sandstein

Auf die Beprobung der Unterkreide ("Hils-Sandstein") wurde nach Voruntersuchungen verzichtet, da die Entnahme eines den Verhältnissen im Bereich der Schachanlage Konrad entsprechenden Gesteins nicht möglich war (s.a.Abs. 4.1.).

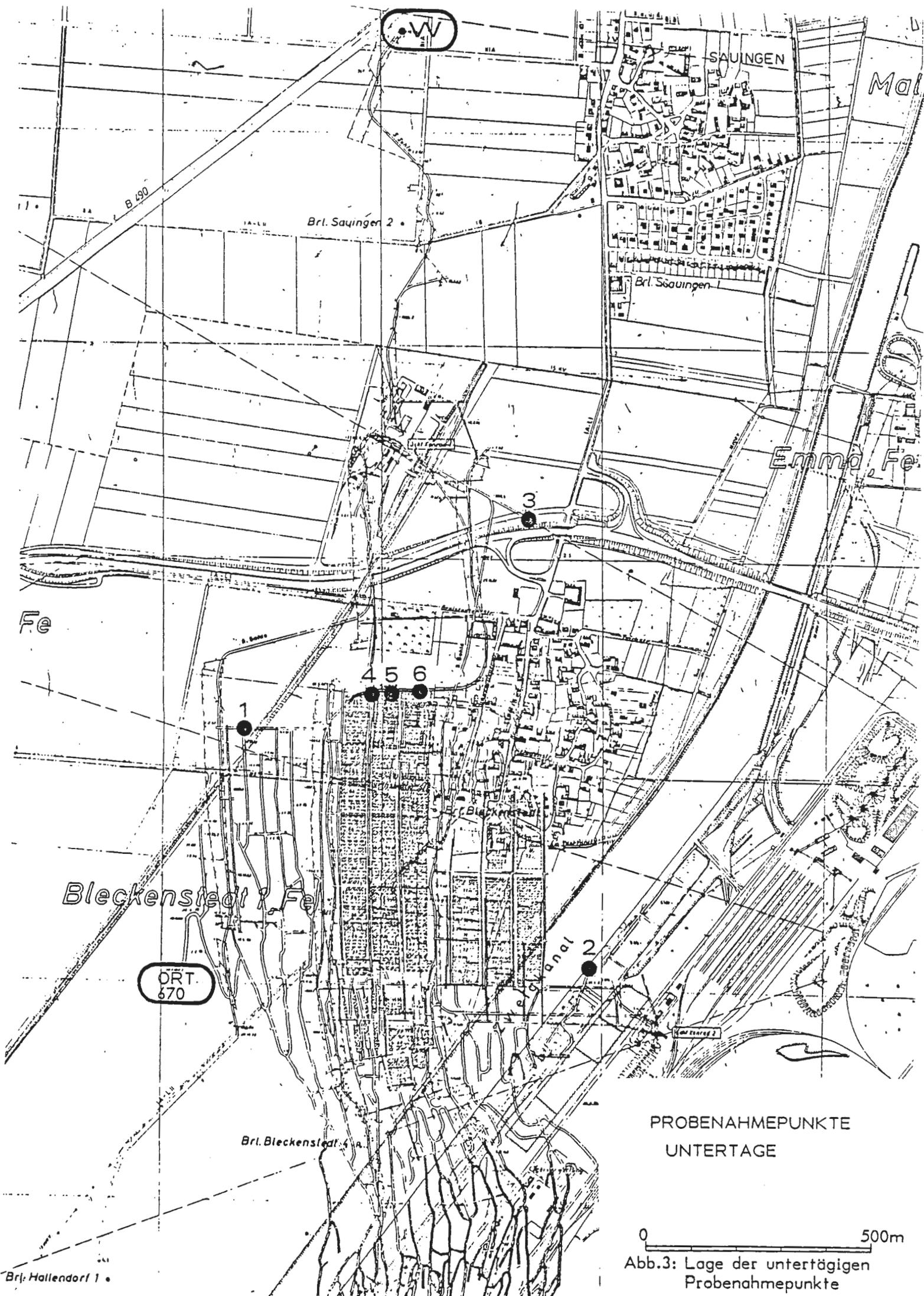
#### 2.1.3. Probenahme von Gestein aus dem Grubengebäude

Die Festlegung geeigneter untertägiger Probenahmepunkte erfolgte während einer gemeinsamen Befahrung mit Vertretern der Grubenleitung, der BGR und der PTB.

Die Verarbeitung der Gesteine geschah, wie unter Abs. 2.1.4. beschrieben, vor Ort in der Grube. Es wurden sechs verschiedene Gesteine und zusätzlich von der Grube zur Verfügung gestelltes Versatzmaterial beprobt.

##### 2.1.3.1. Kimmeridge

Auf der 3. Sohle (Süden), Schachtquerschlag, wurde am 5.8.1983 ein zwei Tage zuvor geschossener Abschlag beprobt (s.Abb. 3 Pkt. 3). Es handelt sich um einen massigen grauen



PROBENAHMEPUNKTE  
UNTERTAGE

0 500m  
Abb.3: Lage der untertägigen  
Probenahmepunkte

dichten Kalkstein, z.T. mit Schalenbruchstücken, der stratigraphisch dem Kimmeridge zuzuordnen ist. Die Einmessung des Entnahmepunktes erfolgte durch die Grubenmarkscheiderei.

Pkt.1 r-Wert: 96335.1662 h-Wert: 84103.4186 \*

Pkt.2 r-Wert: 96333.7766 h-Wert: 84099.0181

Höhe von Pkt. 1576: 900.6 m unter NN

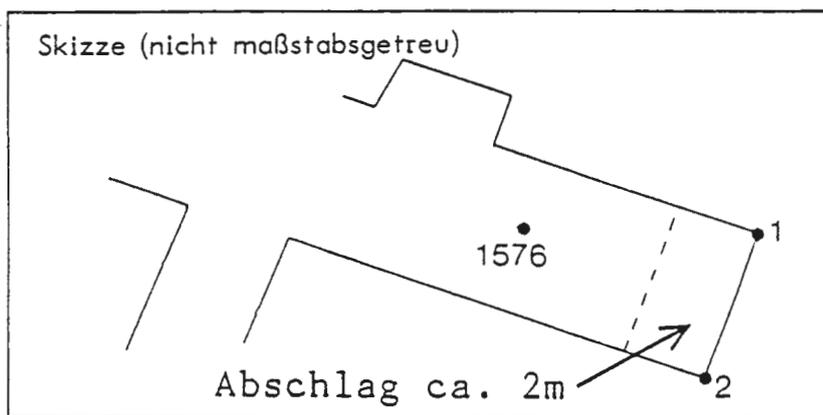


Abb. 3a: Lageskizze zu Entnahmepunkt 3 in Abb.3

\* Die Angabe der Werte in dieser Genauigkeit erscheint nicht erforderlich

#### 2.1.3.2. Hangendes Erz

Im hangenden Bereich des Lagers (Ort 360, Pkt. 2 in Abb.3) wurde am 4.8.1983 ein rotbrauner Eisenoolith beprobt, der neben den Ooiden deutliche Anteile von Schalenbruchstücken aufweist. Die Ausbildung des Lagers (ca. 2 m über der Firste das hangende Gebirge) zeichnet sich durch Einschaltungen von mm-starken Tonlagen aus. Die Probengewinnung erfolgte mit einem Schneckenbohrgerät. Eine erste Bohrung mußte nach 2 m abgebrochen werden, weil eine Tonlage erbohrt wurde.

Brl.1 r-Wert: 96471.8010; h-Wert: 83054-8918

Brl.2 r-Wert: 96472.3751; h-Wert: 83054.7154

Höhe Brl. 1: 774.768 m unter NN; Brl. 2: 774.668 m unter NN

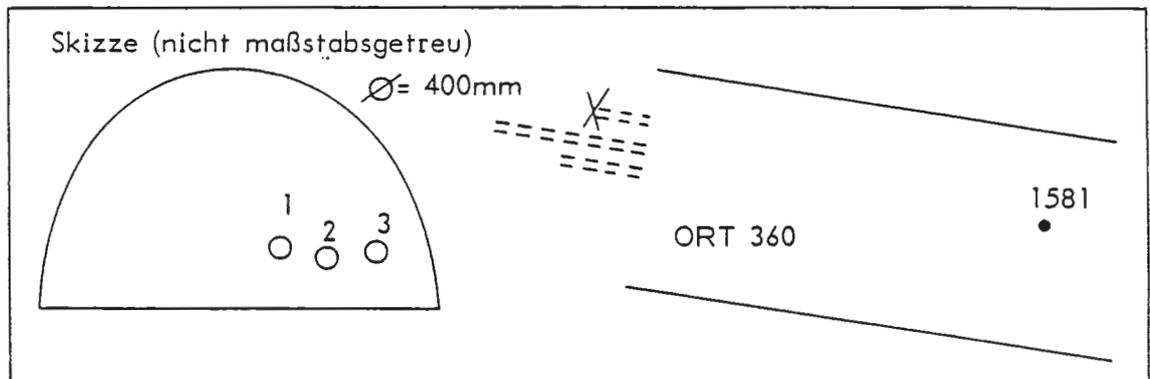


Abb. 3b: Lageskizze zu Entnahmepunkt 2 in Abbildung 3

### 2.1.3.3. Liegendes Erz

Im liegenden Bereich des Lagers (Entfernung zum Liegenden ca. 4 m) wurde am 3.8.1983 auf der 5. Sohle (Ort 522), Süden, ein gleichmäßig mittelkörniger rotbrauner Eisenoolith beprobt (s.Pkt.1 in Abb.3). Vereinzelt lassen sich größere Schalenbruchstücke erkennen. Die Gewinnung der Proben erfolgte mit dem Bohrgerät parallel zur Einfallrichtung.

r-Wert: 95685.4233; h-Wert: 83600.5192

Höhe : 1069.194 m unter NN

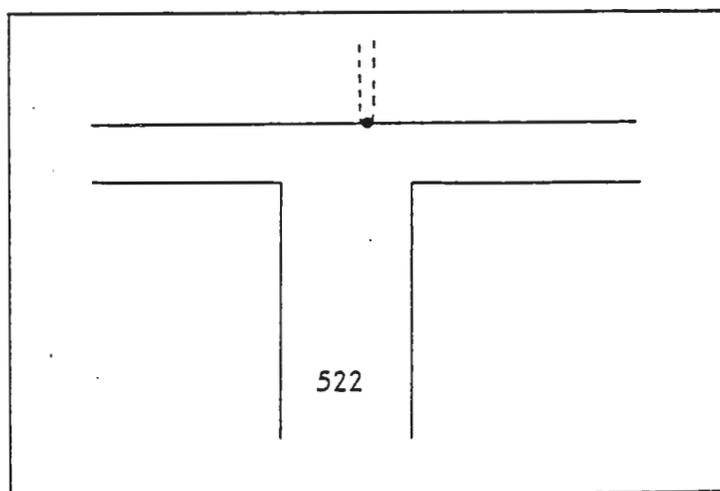


Abb. 3c: Lageskizze zu Entnahmepunkt 1 in Abb. 3

#### 2.1.3.4. Erzkalkserie

Im unteren Korallenoolith wurde am 17.8.1983 auf der 4. Sohle, Querschlag, ein Kalkstein beprobt, in dem rötliche und dunkelgraue Partien wechseln. Teilweise auftretende Schalenbruchstücke (im mm-Bereich) sind eingebettet in eine Matrix. Die Beprobung erfolgte in Streichrichtung mit dem Bohrgerät (s.Pkt.4 in Abb.3).Die Lage des Probenahmepunktes: r-Wert: 95980.9798; h-Wert: 83685.7090  
Höhe : 996.756 m unter NN(Lageskizze s.Abb.3d, Abs.2.1.3.6.)

#### 2.1.3.5. Fladentonstein-Serie

Im Liegenden der Erzkalkserie wurde am 18.8.1983 auf der 4.Sohle, Querschlag, die "Fladentonstein-Serie" des unteren Korallenooliths beprobt (Pkt.5 in Abb.3). Die Proben wurden in Streichrichtung (S) erbohrt. Es handelt sich um einen schwarz-grauen Tonstein, der rötlich gefärbte, elliptisch geformte Gerölle (?), umschließt. Eine Abtrennung der rötlich gefärbten Gesteinsanteile während der Siebung vor Ort war infolge der Bohrstaubbelegung der Oberflächen und der Lichtverhältnisse nicht möglich(Lageskizze s.Abb.3d, Abs. 2.1.3.6.).

r-Wert: 96023.1101; h-Wert: 83687.9351

Höhe : 997.015 m unter NN

#### 2.1.3.6. Heersumer Schichten

Im unteren Oxford wurden am 19.8.1983 auf der 4. Sohle, Querschlag (Pkt. 6 in Abb. 3), die Heersumer Schichten im Streichen erbohrt und beprobt. Sie bestehen hier aus einem

dunkelgrauen Kalkstein, in dem einzelne Ooide, z.T. auch traubenförmige Aggregate von Ooiden auftreten, die teilweise eine gelblich/braune Färbung zeigen. Der Bohransatzpunkt lag ca. 1.5 m über der Muschelbank (*Gryphea dilatata*).

r-Wert: 96083.5779; h-Wert: 83691.2846

Höhe : 997.332 m unter NN

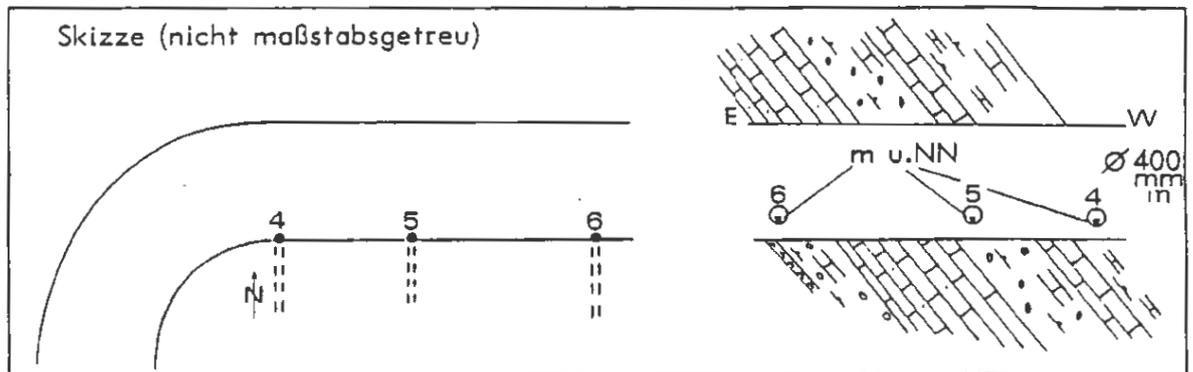


Abb. 3d: Lageskizze zu den Entnahmepunkten 4, 5 und 6 in Abb.3

#### 2.1.3.7. Cornbrash-Sandstein

Durch das Institut für Geologie und Paläontologie der Technischen Universität Braunschweig ( ) wurden zwei Proben des Cornbrash-Sandsteines zur Verfügung gestellt. Die beiden aus dem Erdölfeld Rühme stammenden Bohrkerne der BEB zeigten größere petrographische Unterschiede. Nur eine der beiden Proben (Kern 6, Kiste 5, 3.28 m) ließ sich mit dem beim Abteufen des Schachtes Konrad II erbohrten Cornbrash-Sandstein vergleichen. Die Kern-Stücke dieser Probe wurden von uns auf eine Korngröße < 2mm zerkleinert und in zwei verschiedene Korngrößenklassen aufgeteilt. Die Hauptfraktion mit Korndurchmessern von >0.063 mm und < 2mm wurde mit der gleichfalls anfallenden Kornfraktion <0.063 mm in etwa gleichen Mengen an die Arbeitsgruppen verteilt (s.a. Tab.1).

### 2.1.3.8. Versatzmaterial

Das als Versatzmaterial deklarierte zerkleinerte Gestein, das von der Grube zur Verfügung gestellt wurde, stammt aus dem Vortrieb der Strecken 670, 402 und 360 im Lager. Die Aufbereitung seitens der Grube erfolgte mit einem Schlagwalzenbrecher, Kegelbrecher und Hammermühlen bis zu einer Korngröße  $< 8$  mm. Eine Abtrennung der Korngrößen  $> 2$  mm erfolgte durch Absieben und die Korngröße  $< 2$  mm wurde den Arbeitsgruppen zugeleitet. Die Kornsummenkurve des gesiebten Materials zeigt die Abb.4.

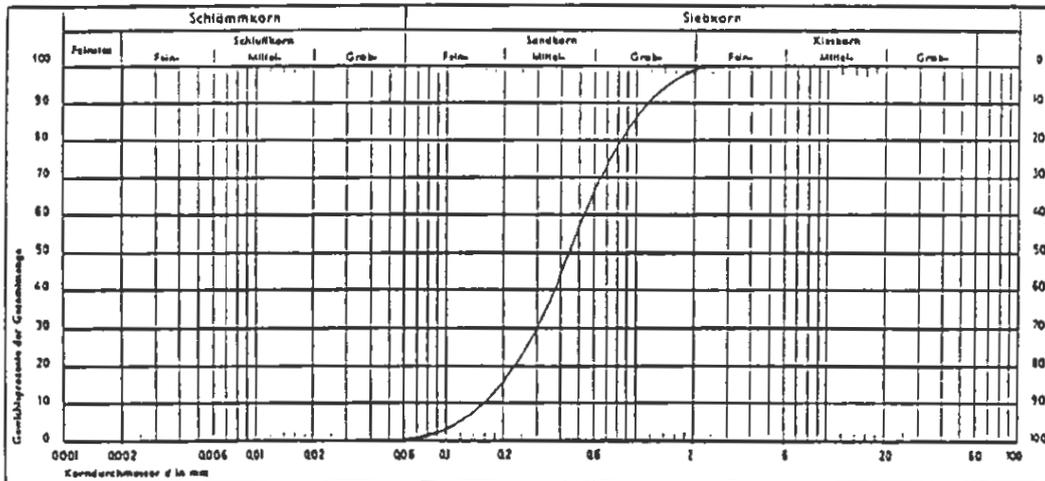


Abb. 4: Kornsummenkurve des Versatzmaterials

### 2.1.4. Sedimentpetrographische Untersuchung der Gesteine

Die beprobten Gesteine wurden im Auftrage der Physikalisch - Technischen Bundesanstalt sedimentpetrographisch durch [REDACTED] (TU Braunschweig) untersucht. Einen Teil der Untersuchungsergebnisse zeigen die Tab. 1 u. 2 .

Gestein	Gesamtmineralbest.(%)	Tonmineralbest.(%)
Lamarcki-Pl.	90.2% Karbonat(Calcit), 2% Quarz, ca. 8% Tonminerale	ca.8% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL)
Rotpläner	72.1% Karbonat(Calcit), 2% Quarz, ca.26% Tonminerale	ca.10% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL) ca.15% Kaolinit
Rhotomag.-PL.	91.7% Karbonat(Calcit), 2% Quarz ca. 7% Tonminerale	5% Illit 5% Kaolinit
Kimmeridge	75.5% Karbonat(Calcit), 3% Quarz ca.20% Tonminerale	ca.10% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL) ca.10% Kaolinit
Hang. Erz	30.5% Karbonate(Calcit, Dolomit), 15% Quarz, 40% Limonit(Ooide), ca.15% Tonminerale	ca. 5% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL) ca.10% Chlorit
Lieg. Erz	39.5% Karbonate(Calcit, Dolomit), 10% Quarz, 40% Limonit(Ooide), ca.10% Tonminerale	ca. 5% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL) ca.5% Kaolinit
Erzkalk-Serie	79.6% Karbonat(Calcit), 10% Quarz, ca.10% Tonminerale	ca.5% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL) ca.5% Kaolinit
Fladentonstein	60.3% Karbonat(Calcit) 10% Quarz, ca.30% Tonminerale	ca.10% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL) ca.20% Kaolinit
Heersumer Sch.	Fazies A: ca.65% Karb. (Calcit,Dolomit) ca.20% Limonit(Ooide) ca.5% Quarz,ca.10% Tonm.	ca.5% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL) ca.5% Kaolinit
	Fazies B: ca.26% Karbonate (Calcit,Dolomit) ca.74% Limonit, Quarz, Tonm.	Illit+ WL/Kaol. 1:1
Cornbrash-Sdst.	10-15% Karbonat(Calcit, Dolomit), 50% Quarz, 5% Feldspäte 2% Akzessorien,25% Tonm.	ca.10% Illit (+Illit/Mont- morillonit-WL) ca.20% Kaolinit

Tab.1: Quantitative Mineralzusammensetzung der beprobten Festgesteine (nach [redacted] 1984)

Gestein	C <sub>org.</sub>	C <sub>carb.</sub>	S
Lamarcki-Pläner	.06	10.64	.01
Rotpläner	.07	8.39	.01
Rhotomagensis-Pl.	.07	10.83	.01
U/M Cenoman	.13	8.7	.02
Kimmeridge	.53	8.37	.95
Hang. Erz	.19	3.44	.08
Lieg. Erz	.21	4.67	.14
Erzkalk-Serie	.76	8.7	.98
Fladentonstein	.73	7.09	1.18
Heersumer Sch.	.45	7.48 - 2.51	.55
Cornbrash-Sdst.	1.54	3.08	.62

Tab. 2: Gehalte an org. Kohlenstoff, carb. Kohlenstoff und Schwefel in den berobten Festgesteinen. (nach [redacted] 1984; alle Angaben in Gew.-%; .01 = unter der Nachweisgrenze)

### 2.1.5. Verarbeitung, Behandlung und Versand des Probenmaterials

Die Auftrennung der entnommenen Festgesteinsproben geschah vor Ort mittels Siebung in zwei Korngrößen:

1. 20 mm > Kornfraktion > 6 mm
2. 6 mm > Kornfraktion > 2 mm

Aus dem Gesteinsmaterial < 2 mm wurde im Institut für Angewandte Geologie in Berlin eine dritte Korngrößenklasse:

3. 2 mm > Kornfraktion > 0,2 mm

abgesiebt, wobei eine vierte Kornfraktion (< 0,2 mm) abfiel, die für Äquilibrierungsversuche und die Konditionierung der Wässer zu verwenden war. Neben dem Siebvorgang kam es im Institut in Berlin zur Probenmischung und Aufteilung der einzelnen Korngrößen für den Versand zu den einzelnen Arbeitsgruppen. In Ergänzung zu den gesiebten Festgesteinsproben wurden für Diffusionsversuche von jedem Gestein Handstücke ( $\phi > 10$  cm) geschlagen, die gleichfalls den einzelnen Arbeitsgruppen zugesandt wurden (s. Tab.3).

Die Verarbeitung der quartären Lockergesteinsprobe, vorliegend als Bohrkern in Kunststoffrohren, erfolgte unter Schutzgas in einer Handschuhbox. Die Wechsellagerung von sandigen und bindigen Partien bedingte eine Aufteilung in eine stärker bindige und eine sandige Teilprobe. Für die Homogenisierung und den Versand fand das an der gleichen Lokalität entnommene, zugehörige Grundwasser (s.a. Abs. 2.2.2.) Verwendung.

### 2.2. Probenahme Wasser

Die Entnahme der für die Sorptionsexperimente erforderlichen natürlichen Wässer geschah, soweit es möglich war, unter Ausschluß des Zutritts von Luftsauerstoff. Als Probengefäße

Gestein	IfR,GSF				SFG,Bamberg				Radiochemie,TUM				BGR,Hannover				TU Braunschweig			
Quartär,sandig	18				20				20				-				1.8			
Quartär,bindig	3.5				4.8				2.8				-				1.7			
Korngrößenfr.	I	II	III	IV	I	II	III	IV	I	II	III	IV	I	II	III	IV	I	II	III	IV
Lamarcki-Pl.	15	15	10	1	15	10	5	1.5	15	10	5	1.5	5	3	2	-	1	1	1	-
Rotpläner	15	15	10	1	15	10	5	1.5	15	10	5	1.5	5	3	2	-	1	1	1	-
Rhotomag.-Pl.	15	15	10	1	15	10	5	1.5	15	10	5	1.5	5	3	2	-	1	1	1	-
U/M Cenoman	15	15	10	1	15	10	5	1.5	15	10	5	1.5	5	3	2	-	1	1	1	-
Kimmeridge	15	15	15	1	15	15	15	1.5	15	15	15	1.5	5	5	5	-	1	1	1	-
Hang.-Erz	15	15	15	1	15	15	15	1.5	15	15	15	1.5	5	5	5	-	1	1	1	-
Lieg.-Erz	15	15	15	1	15	15	15	1.5	15	15	15	1.5	5	5	5	-	1	1	1	-
Erzkalke	15	15	15	1	15	15	15	1.5	15	15	15	1.5	5	5	5	-	1	1	1	-
Fladentonst.	15	15	15	1	15	15	15	1.5	15	15	15	1.5	5	5	5	-	1	1	1	-
Heersumer-Schichten	15	15	15	1	15	15	15	1.5	15	15	15	1.5	5	5	5	-	1	1	1	-
Korngrößenfr.	V		VI		V		VI		V		VI									
Cornbrash-Sandstein	0.1531		0.0102		0.1458		0.0108		0.1453		0.0122		-				-			
Korngrößenfraktion I	= <20mm u. >6mm								Angaben in kg											
" " " " II	= <6mm u. >2mm								IfR = Inst.f. Radiohydrometrie											
" " " " III	= <2mm u. >0.2mm								SFG = Staatliches Forschungsinst.											
" " " " IV	= <0.2mm								f. Geochemie, Bamberg											
" " " " V	= <2mm u. >0.063mm								TUM = Inst.f. Radiochemie der											
" " " " VI	= <0.063mm								Technischen Univ. München											

Tab.3 : Mengenverteilung der Gesteinsproben an die verschiedenen Arbeitsgruppen

finden Aluminiumfässer, innen mit Epoxyharz beschichtet, Verwendung. Die Fässer wurden ähnlich wie Waschflaschen in Reihe geschaltet, mit Stickstoffgas gespült und alsbald mit Probenwasser gefüllt. Für die Bestimmung einiger sauerstoffempfindlicher Parameter (pH-, Eh-Wert, Sauerstoffgehalt) erfolgte vor Ort der Anschluß einer Woulschen Flasche, in der diese Parameter im Durchfluß bestimmt wurden.

### 2.2.1. Salzwasser

Die Entnahme von hoch mineralisierten Wässern gestaltete sich schwieriger. In der Schachtanlage Konrad wurden auf der 5.Sohle, Nordstrecke (Punkt W in Abb.3), am Stoß aus einem Bohrloch einige Liter eines Wassers beprobt, von dem vorausgesetzt wird, daß es sich um ein originäres Wasser handelt. In Ermangelung ausreichender Mengen für die Durchführung experimenteller Untersuchungen wurde am 21.9.1983 im Schacht Konrad II über einen Schieber Standwasser aus dem Hils-Sandstein hinter der Schachtausmauerung beprobt (500 l), wobei durch parallel durchgeführte Analysen (vom Wasser der 5.Sohle, Nordstrecke) zu prüfen war, ob eine ersatzweise Verwendung infrage kam.

Beim Streckenvortrieb im Grubengebäude wurde bei Vorbohrungen in ca. 1240 m Teufe (Ort 670; vgl. Abb.3) am 24.10.1983 eine Kluft angefahren, die Wasser erbrachte, welches am 26.10.1983 (500 l) und 8.11.1983 (800 l) in größerer Menge gewonnen wurde. Ein völliger Ausschluß des Zutritts von atmosphärischen Sauerstoff war bei der Probenahme nicht möglich. Hinsichtlich der gelösten Stoffe zeigten die Untersuchungen, daß hier ein ähnliches Wasser vorliegt wie von der 5.Sohle, Nordstrecke.

Für die Versuche mit den Gesteinen der Oberkreide konnten keine hoch mineralisierten Wässer erschlossen werden.

### 2.2.2. Süßwasser

Bei der Untersuchung von Wasser aus dem Grundwasserbeobachtungsrohr 1272, NE des Geländes der Schachtanlage Konrad, ergaben sich hohe Nitrat-Gehalte als Fremdstoff. Deshalb erfolgte am 9.12.1983 die Beprobung eines Brunnens in Söhle, von wo einwandfreies Wasser reichlich zu erhalten war. Die Lage des Brunnens:

r-Wert: 84385 h-Wert: 83800

Es handelt sich um einen abgedeckten ca. 28 m tiefen, im Cenoman stehenden gemauerten Schachtbrunnen, der mit einer Unterwasserpumpe versehen ist. Insgesamt wurden über 1500 l Wasser entnommen.

Am 25.6.1984 erfolgte die Beprobung des der Quartär-Probe zugehörigen Wassers in der als Grundwasser-Beobachtungspegel ausgebauten Bohrung. Die Beprobung geschah während eines Pumpversuchs und das Wasser wurde am gleichen Tag den Arbeitsgruppen zugesandt.

### 3. Hydrochemische Zusammensetzung der Wässer

Von den an den entnommenen Wässern untersuchten Parametern (s.Tab.4) erfolgte die Bestimmung der Temperatur, der elektrischen Leitfähigkeit, des pH-Wertes, des Eh-Wertes, des freien Sauerstoffes (soweit infolge der Entnahmebedingungen sinnvoll), der freien Kohlensäure und des Hydrogenkarbonats direkt bei der Probenahme vor Ort.

In der Tab.4 sind die Analysenergebnisse der untersuchten Wässer aufgeführt. Da die Analytik derart hoch mineralisierter Wässer einige Schwierigkeiten bereitet,

Ort Geol. Pos.	5.Sohle/Nordstrecke Korallenoolith			Schacht Konrad II/Hils-S. Alb			Strecke 670 Korallenoolith		Söhle Cenoman		Gelände P. & S. Quartär	
Datum der Probenahme	18.8.1983			21.9.1983			26.10.1983		9.12.1983		25.6.1984	
Teufe (m)	1200			480			1244		28		21.8-25.8 u.28-46	
Dichte (g/cm <sup>3</sup> )	1.1409			1.1025			1.1417					
Temp. (°C)	45			25.4			47.2		8.2		18.7	
Leitf. 20° (mS/cm)	192			162			192		675 × 10 <sup>-3</sup>		1.175	
pH-Wert	5.85			6.1			6.0		7.2		6.97	
Eh-Wert (mV)	+ 165 (?)			+ 95			+ 195		+ 358		- 64	
CO <sub>2</sub> fr. (mg/l)	240			120			265		18		20	
Labor	1	2	3	1	2	3	1	2	1	2	1	2
Konz.-Angaben in	mg/l			mg/l			mg/l		mg/l		mg/l	
Li <sup>+</sup>	<u>2.1</u>			<u>1.1</u>			<u>1.2</u>		<u>0.02</u>		<u>0.048</u>	
Na <sup>+</sup>	<u>66500</u>	60000	64000	<u>54100</u>	51900			<u>62000</u>		<u>32</u>		<u>73</u>
K <sup>+</sup>	<u>260</u>			<u>118</u>				<u>214</u>		<u>4.1</u>		<u>?</u>
Cs <sup>+</sup>	<u>0.01</u>			<u>0.01</u>				<u>0.005</u>		<u>0.005</u>		<u>0.004</u>
Mg <sup>++</sup>	<u>2326</u>		2400	1356	1400			<u>2720</u>		<u>15</u>		<u>26.?</u>
Ca <sup>++</sup>	<u>12950</u>	12500	13000	<u>5050</u>	4800			<u>13200</u>		<u>130</u>		<u>186</u>
Sr <sup>++</sup>	<u>421</u>			<u>568</u>				<u>438</u>	<u>4.9</u>			<u>1.7</u>
Ba <sup>++</sup>	<u>0.07</u>			<u>0.88</u>				<u>0.053</u>	<u>0.015</u>			<u>0.11</u>
Fe <sup>++</sup> /Fe <sup>+++</sup>	3.2		<u>54.4</u>	9.1		<u>21.7</u>		<u>57</u>		<u>0.2</u>		<u>0.2</u>
Al <sup>+++</sup>	<u>0.037</u>			<u>0.038</u>				<u>0.021</u>	<u>0.007</u>			<u>0.015</u>
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	<u>65</u>			<u>51</u>				<u>62</u>	<u>0.02</u>			<u>0.06</u>
Mn <sup>++</sup>			<u>3.6</u>			<u>4.3</u>	<u>1.7</u>		<u>0.004</u>			<u>0.13</u>
F <sup>-</sup>			<u>94</u>			<u>50.5</u>				<u>3</u>		<u>1.8</u>
Cl <sup>-</sup>	<u>131600</u>	111600	120000	<u>95970</u>		93000		<u>125000</u>		<u>57</u>		<u>94.3</u>
Br <sup>-</sup>	<u>840</u>	800	812	<u>206</u>				<u>840</u>	<u>0.05</u>		n.n.	
J <sup>-</sup>	<u>28</u>			<u>?</u>				<u>25.3</u>	<u>0.002</u>		0.1	
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		<u>130</u>			<u>100</u>			<u>70</u>		<u>299</u>		<u>260</u>
SO <sub>4</sub> <sup>---</sup>	<u>594</u>	645	570	<u>316</u>		300		<u>767</u>		<u>129</u>		<u>377</u>
PO <sub>4</sub> <sup>---</sup> /PO <sub>4</sub> <sup>----</sup>	<u>0.15</u>			n.n.				<u>0.13</u>	<u>0.21</u>			<u>/0.06</u>
B / BO <sub>3</sub> <sup>---</sup>	<u>20.3</u>		23	<u>10</u>		8.8		<u>/100</u>	<u>/0.87</u>			<u>/5.1</u>
Se								<u>0.0006</u>	<u>&lt;0.0005</u>			
SiO <sub>2</sub>	<u>4</u>			<u>4.5</u>				<u>12.8</u>	<u>17.4</u>			<u>27</u>

n.n. = nicht nachweisbar  
 Labor 1 = Institut Fresenius  
 Labor 2 = Institut f. Angewandte Geologie der FUB  
 Labor 3 = Institut f. Wasser- Boden u. Lufthygiene (BGA)

\_\_\_\_\_ = als maßgeblich erachtete Werte

Tab. 4: Hydrochemische Zusammensetzung der beprobten Wässer

wurden die gleichen Wässer mehrfach, von verschiedenen Labors untersucht. Abb.5 zeigt eine graphische Darstellung der vorliegenden Ergebnisse. Die dargestellten Beziehungen lassen den ähnlichen Charakter der Salzwässer erkennen; die Unterschiede liegen hauptsächlich in der Gesamtmineralisation.

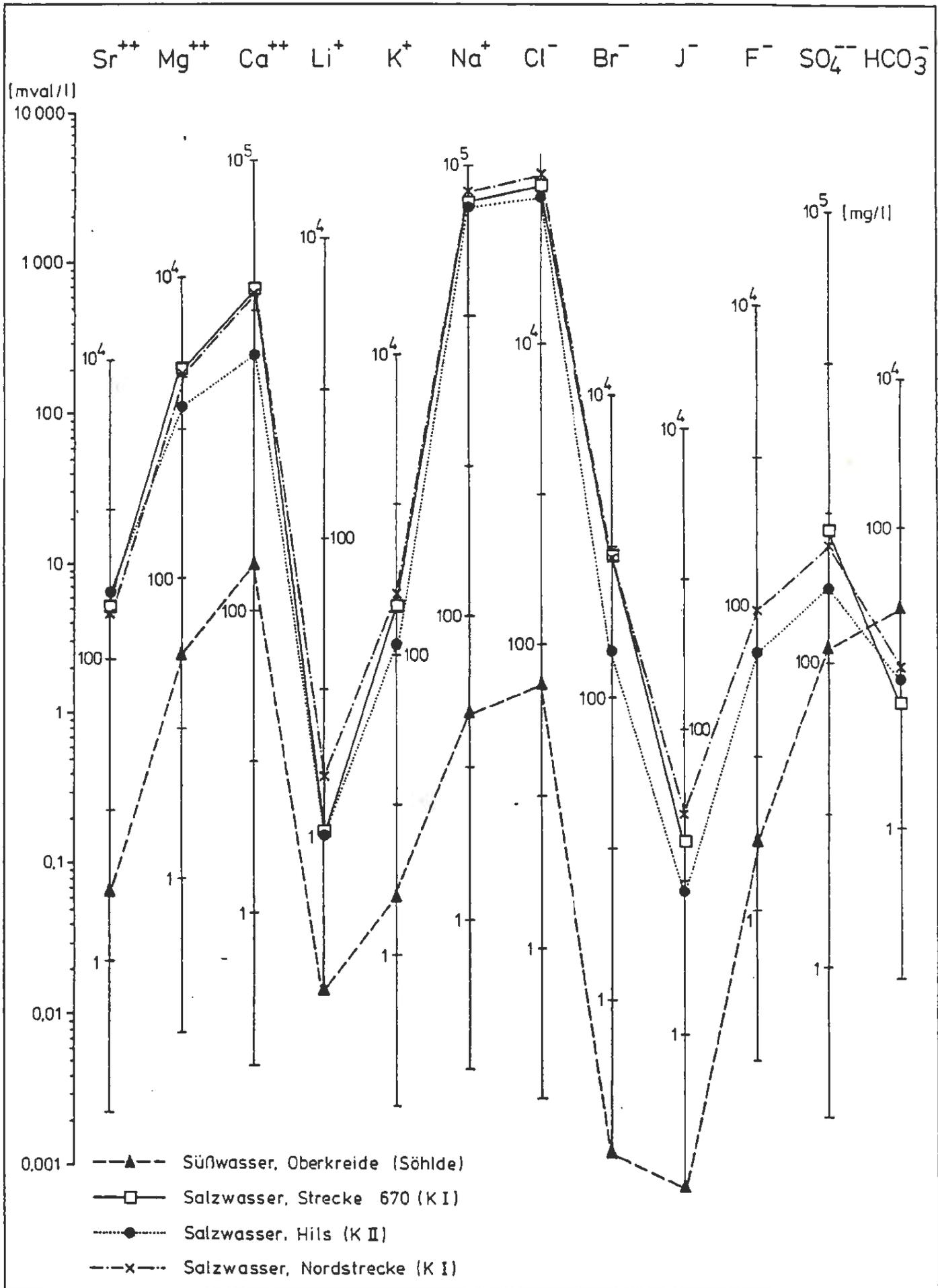


Abb. 5: Darstellung der Analysenergebnisse der beprobten Wässer in einem hydrochemischen Diagramm nach [redacted]

#### 4. Laboruntersuchungen

##### 4.1. Voruntersuchungen zur Gleichgewichtseinstellung Gestein-Wasser

Die Gleichgewichtseinstellung zwischen dem Hils-Sandstein, entnommen in der Grube Morgenstern als mögliches Äquivalent zum Hils-Sandstein im Bereich der Schachanlage Konrad, und dem im Schacht Konrad II entnommenen Hils-Wasser erbrachte eine zeitabhängige Veränderung der Eh- und pH-Werte (s. Abb. 5a). Die parallele Entwicklung (ca. 27 Tage) läßt am Ende des Beobachtungszeitraums Eh-Werte von +410 mV bei pH-Werten < 5 erkennen. Verwendet wurden zwei, nach makroskopischer Ansprache unterschiedlich stark verwitterte Sandsteine aus der Grube Morgenstern. Das Gestein wurde für die unter Stickstoff durchgeführten Versuche zur Erhöhung der Oberflächenaktivität mechanisch zerkleinert. Verbunden mit den Ergebnissen der Untersuchungen des  $Fe^{++}/Fe^{+++}$  Verhältnisses durch [REDACTED] (TU Braunschweig), die ebenfalls aufzeigen, daß der Hils-Sandstein in der Grube Morgenstern, ursächlich wohl aufgrund seiner Oberflächenexposition, als "nicht mehr frisch" anzusprechen ist, kamen wir zu der Empfehlung, auf eine Beprobung des Hils-Sandsteins aus der Grube Morgenstern zu verzichten.

In Vorbereitung der Schüttel- und Säulenversuche wurde das Hils-Wasser zur Gleichgewichtseinstellung mit den Feinanteilen (< 0,2 mm) der anderen Gesteine unter Sauerstoffabschluß geschüttelt. Die Entwicklung der Eh- und pH-Werte (Tab. 5) zeigt zwar z.T. ein unterschiedliches Verhalten, insgesamt aber die gleiche Tendenz hinsichtlich des Anstiegs der Eh-Werte (Anstieg zwischen 40 und 120 mV) während die pH-Werte nur eine sehr geringe Änderung aufweisen. Entsprechende Versuche mit dem zu einem späteren Zeitpunkt entnommenen Wasser vom Ort 670 zeigen eine vergleichbare Entwicklung. Die in dieser Form konditionierten Wässer wurden nachfolgend in den Schüttelversuchen eingesetzt.

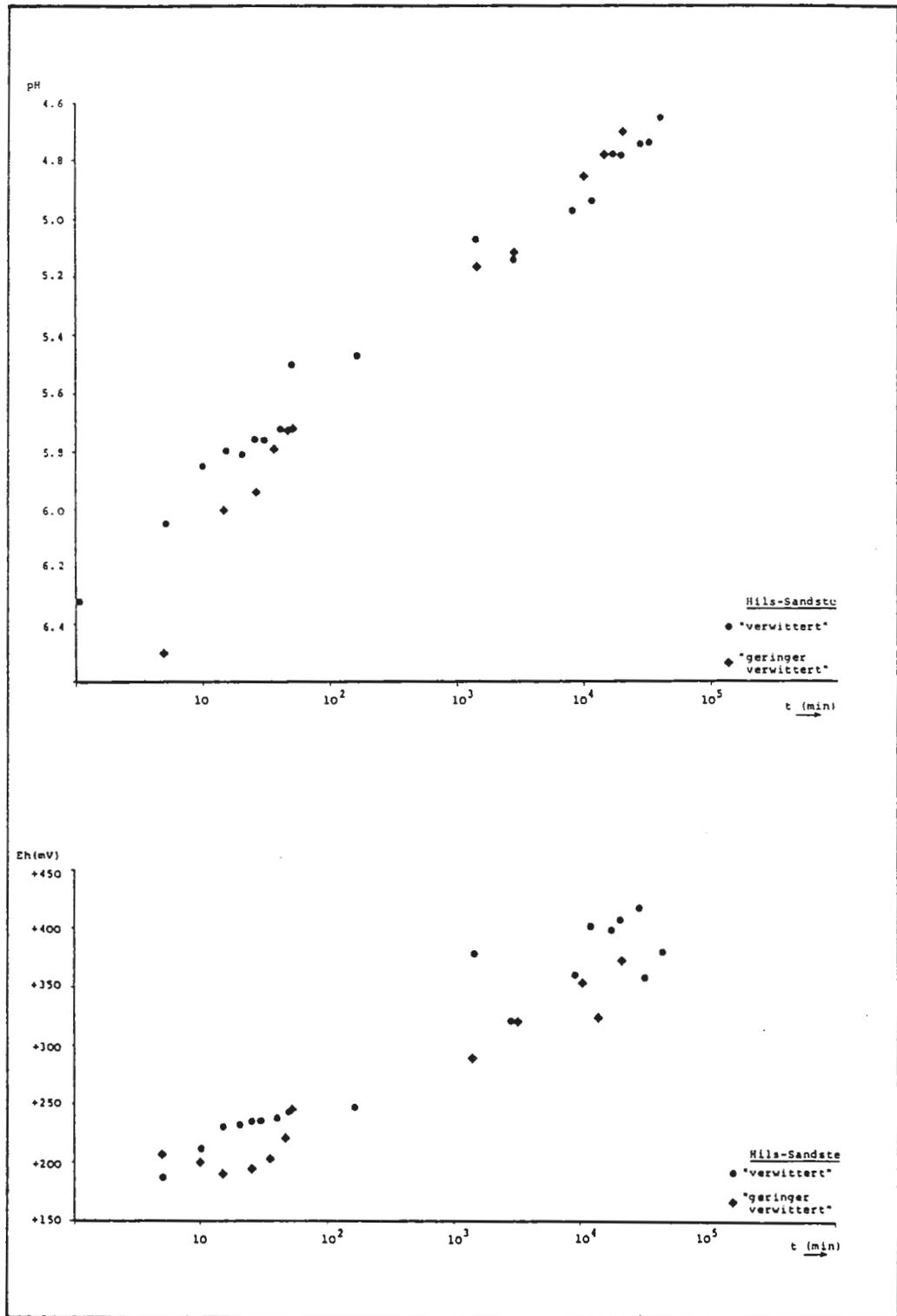


Abb. 5a: Zeitabhängige Veränderung der Eh- pH-Werte des Hils-Sandsteines im Kontakt mit dem Hils-Wasser

Gestein	Wasser	Datum	Uhrzeit	Temp. (°C)	pH	Eh (mV)	
Hangendes Erz	Hils	21.10.83	14 <sup>35</sup>	16.9	6.34	+216	
			14 <sup>40</sup>	16.9	6.30	+214	
			14 <sup>50</sup>	16.9	6.30	+210	
		31.10.83	15 <sup>40</sup>	16.9	6.46	+219	
			2.11.83	15 <sup>20</sup>	18.1	6.52	+254
			7.11.83	8 <sup>45</sup>	17.0	6.56	+284
			10.11.83	9 <sup>15</sup>	16.6	6.56	+307
			15.11.83	13 <sup>45</sup>	13.9	6.51	+323
15.12.83	14 <sup>40</sup>	12.6	6.49	+317			
Liegendes Erz	Hils	21.10.83	13 <sup>40</sup>	15.8	6.35	+211	
			13 <sup>50</sup>	15.8	6.36	+199	
		31.10.83	15 <sup>40</sup>	16.9	6.39	+208	
			2.11.83	15 <sup>40</sup>	18.1	6.55	+215
		7.11.83	9 <sup>10</sup>	17.0	6.66	+267	
		10.11.83	9 <sup>43</sup>	16.6	6.66	+246	
		15.11.83	14 <sup>00</sup>	13.9	6.55	+308	
		15.12.83	14 <sup>30</sup>	12.6	6.52	+259	
Erzkalk-Serie	Hils	25.10.83	17 <sup>00</sup>	15.9	6.53	+197	
		31.10.83	15 <sup>55</sup>	16.9	6.46	+185	
		3.11.83	15 <sup>50</sup>	17.9	6.62	+282	
		7.11.83	9 <sup>45</sup>	17.0	6.59	+282	
		10.11.83	10 <sup>50</sup>	16.6	6.62	+267	
		15.11.83	14 <sup>30</sup>	13.9	6.56	+304	
		15.12.83	14 <sup>00</sup>	12.6	6.50	+311	
Fladentonstein	Hils	25.10.83	16 <sup>45</sup>	15.9	6.54	+192	
		31.10.83	15 <sup>50</sup>	16.9	6.44	+208	
		3.11.83	13 <sup>30</sup>	17.7	6.48	+306	
		7.11.83	9 <sup>30</sup>	17.0	6.60	+277	
		10.11.83	10 <sup>35</sup>	16.6	6.62	+258	
		15.11.83	14 <sup>30</sup>	13.9	6.58	+309	
		15.12.83	13 <sup>30</sup>	12.6	6.46	+309	
Heersumer Schichten	Hils	25.10.83	17 <sup>15</sup>	15.9	6.33	+236	
		31.10.83	16 <sup>00</sup>	16.9	6.49	+223	
		3.11.83	14 <sup>03</sup>	17.9	6.51	+277	
		7.11.83	10 <sup>00</sup>	17.0	6.56	+289	
		10.11.83	11 <sup>00</sup>	16.6	6.59	+267	
		15.11.83	15 <sup>00</sup>	13.9	6.54	+280	
		15.12.83	14 <sup>12</sup>	12.6	6.47	+288	
Kimmeridge	Hils	25.10.83	16 <sup>30</sup>	15.9	6.60	+201	
		31.10.83	15 <sup>45</sup>	16.9	6.45	+215	
		2.11.83	14 <sup>50</sup>	18.2	6.65	+259	
		7.11.83	9 <sup>25</sup>	17.0	6.65	+258	
		10.11.83	10 <sup>15</sup>	16.6	6.69	+247	
		15.11.83	14 <sup>10</sup>	13.9	6.67	+248	
		15.12.83	14 <sup>28</sup>	12.6	6.53	+242	

Tab. 5: Entwicklung der Eh- und pH-Werte während der Äquilibration des Hils-Wassers mit den Grubengesteinen

Für eine Gleichgewichtsgewichtsbetrachtung zwischen den aus dem Grubengebäude entnommenen Gesteinen und dem eingesetzten Wasser erfolgte die Bestimmung einiger aus den Gesteinen eluierbarer Inhaltsstoffe. Hierzu wurden 100 Gramm zerkleinerter Festsubstanz mit 1000 ml entmineralisiertem Wasser 120 Stunden geschüttelt und nachfolgend die Inhaltsstoffe bestimmt. Die Ergebnisse (Abb. 6) zeigen für die untersuchten Hauptinhaltsstoffe zwischen dem hangenden und liegenden Erz nur vergleichsweise geringe Unterschiede. Die Chlorid-Werte sind in den liegenden Kalk- bzw. Tonsteinen deutlich geringer. Auffallend sind die hohen Calcium-, Fluorid- und vor allem die durch die S-Oxidation bedingten Sulfat-Werte beim Fladentonstein.

#### 4.2. Eingesetzte Radionuklide

In den experimentellen Untersuchungen wurde das Sorptionsverhalten der Radionuklide Technetium, Selen und Zirkon/Niob untersucht. Die genannten Radionuklide (vgl. Tab.6), eingesetzt als Gammastrahler mit Halbwertszeiten von wenigen Monaten, zeichnen sich durch hohe Nachweisempfindlichkeiten bei kurzen Meßzeiten aus.

Da Selen und Technetium in anionischer Form vorliegen und allgemein geringe Sorptionskoeffizienten erwarten lassen, wurden sie gemeinsam als Radionuklidgemisch aufgegeben.

Für die Ermittlung der für die Auswertung der Durchlaufsäulen erforderlichen hydraulischen Kenngrößen, wie der effektiven Porosität, der longitudinalen Dispersion und der Abstandsgeschwindigkeit, wurde der "ideale" Tracer Tritium in Form von  $^3\text{HHO}$  (Halbwertszeit 12.4a) eingesetzt. Die in einigen Säulenversuchen gegenüber anderen Radionukliden beobachtete Verzögerung des Tritiums erforderte unter Verwendung anderer Tracer eine Wiederholung der Durchläufe. Eingesetzt wurden hier Br-77 (Halbwertszeit 56h) als NaBr und Cr-51 als EDTA-Komplex (Halbwertszeit 27.7d).

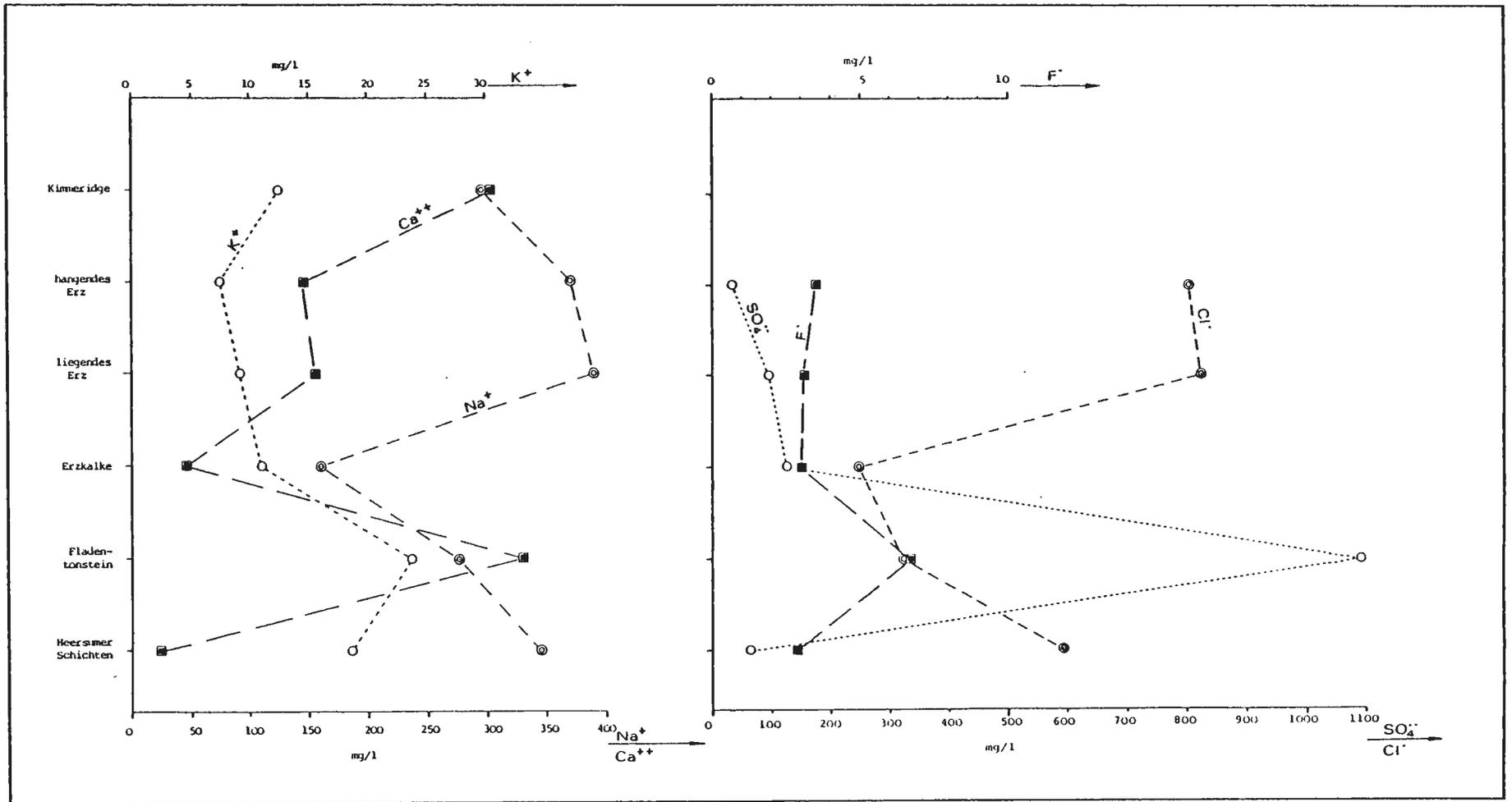


Abb. 6: Aus den Grubengesteinen eluierbare Hauptinhaltsstoffe

Die Aufgabe bzw. Zugabe der Radionuklidlösungen erfolgte in neutralisierter und filtrierter ( 450 nm) Form. Bei den Durchlaufsäulen erfolgte durch die Zugabe von ca. 3-5 ml Radionuklidlösung, entsprechend einer Schichtdicke von ca. 1 mm, eine pulsförmige Radionuklidabgabe.

Radionuklid	Halbwertszeit (Tage)	Chemische Zusammensetzung	Lieferant
Tc-95 m	61	$\text{NH}_4\text{TcO}_4$	NEN,Dreieich
		$\text{NaTcO}_4$	KFK,Karlsruhe
Se-75	120,4	$\text{Na}_2\text{SeO}_3$	Amersham Buchler Braunschweig
Zr-95	64,4	Zr u. Nb als	Rohstoffein- fuhr
Nb-95	35,15	Oxalatokomplex in saurer Lösung	Düsseldorf

Tab. 6: In den Sorptionsversuchen eingesetzte Radionuklide

#### 4.3. Schüttelversuche

##### 4.3.1. Durchführung von Schüttelversuchen

Die Ermittlung von Sorptionsdaten aus Schüttelversuchen erfordert allgemein im Vergleich zu Säulenversuchen einen technisch und apparativ geringeren Aufwand. Bei den durchgeführten Schüttelversuchen kam eine Rotations-schüttelmaschine mit einer anfänglichen Kapazität von 30 Proben, die später erweitert wurde auf 56 Proben, zum Einsatz. Die Drehung der aus Polyäthylen bestehenden 100 ml-Probenbecher erfolgte im Abstand von 5 Minuten über Kopf, wobei die Drehung innerhalb weniger Sekunden erfolgte.

Bei den Schüttelversuchen wurde allgemein ein Verhältnis von flüssiger zu fester Phase von 2.5 eingestellt. Bei der Gesteinsfraktion mit der Korngröße  $> 0,2$  mm und  $< 2$  mm kamen 10 g Gestein (Trockengewicht) zur Einwaage, während bei der Gesteinsfraktion mit der Korngröße zwischen 6 mm und 20 mm 25g Festsubstanz eingewogen wurden.

Bei jeder Versuchsdurchführung wurden 4 Becher parallel geschüttelt, wobei in 3 Bechern die gleiche Gesteins-Wasser-RN-Lösung-Zusammensetzung vorlag, während ein Becher als Referenzbecher nur mit dem zugehörigen Wasser und der RN-Lösung gefüllt wurde. Nach Abschluß des Sorptionsversuches zentrifugierten wir die Probenbecher für 10 Minuten bei 3000 Umdrehungen. Von der überstehenden Flüssigkeit wurden 10 ml abpipettiert und in Meßröhrchen umgefüllt. Weitere 10 ml wurden abpipettiert, mit 450 nm-Millipore-Filtern filtriert und in Meßröhrchen umgefüllt. Die entnommene Lösungsmenge von 20 ml wurde durch die Zugabe von 20 ml inaktiver Lösung ergänzt und die Desorption begonnen. Nach Ablauf einer dem Sorptionszeitraum entsprechenden Zeitdauer wiederholte sich die o.b. Verfahrensweise. Bei den Schüttelversuchen mit den beiden größeren Kornfraktionen (20 mm - 6 mm und 6 mm - 2 mm) wurde mit zunehmender Schüttelzeit eine Zunahme des Feinkornanteils beobachtet. Dies führte zu einer nicht beabsichtigten Vereinheitlichung der Korngrößen. Zur Vermeidung dieses Effektes wurde deshalb versucht, die Gesteine der Kornfraktion 20 mm - 6 mm bewegungsfrei zu schütteln, d.h. die Gesteine von den Radionuklid-Lösungen umspülen zu lassen. Zu diesem Zweck wurde die zuvor mit dem zugehörigen Wasser gewaschene Kornfraktion zwischen zwei Edelstahlsieben arretiert. In Abhängigkeit von der Zeit konnte eine deutlich verbesserte Erhaltung der Ausgangskorngröße beobachtet werden. Die zeitliche Einstellung des Sorptionsgleichgewichtes wurde durch eine Variation der Schüttelzeiten untersucht. Die Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration, die allgemein bei  $3.7 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$  lag, wurde bei höherer und geringerer Konzentration untersucht. Der Einfluß der Änderung der Volumen/Masse-

Verhältnisse wurde durch Versuche bei einem V/M-Verhältnis von 10 bzw. 1 untersucht. Beobachtungen zur Auswirkung der Änderung des pH-Wertes erfolgten durch die Einstellung verschiedener pH-Werte (pH 4 und pH 9). Insbesondere die pH-Werte im sauren Bereich konnten über die Versuchsdauer nicht gehalten werden, da die karbonathaltigen Gesteine eine Neutralisation bewirkten.

Die Abdeckung der Schüttelmaschine durch eine Haube aus Acrylglas ermöglichte neben dem Arbeiten in einer sauerstofffreien Stickstoffatmosphäre das Einbringen eines thermostatgeregelten Heizelementes unter diese Haube, wodurch der Temperatureinfluß auf das Sorptionsverhalten untersucht werden konnte. Hierzu wurden neben den Untersuchungen bei 20°C, Versuche bei 35°C und 50°C durchgeführt. Der Einfluß der nachfolgend aufgeführten Substanzen auf das Sorptionsverhalten wurde durch deren Zugabe in den angegebenen Konzentrationsbereichen untersucht:

EDTA	10 E-3 mol/l
waschaktive	
Substanzen (Alkylbenzosulfonat)	5 und 50 ppm
Citronensäure	8 E-7 mol/l
Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub>	10 E-8 und 10 E-6 mol/l
Na <sub>2</sub> SeO <sub>3</sub> (Trägerung)	10 E-8 und 10 E-5 mol/l

Für die Gesteine der Oberkreide, die mit dem gering mineralisierten Wasser aus Söhlde zu untersuchen waren, wurde der Einfluß der Mineralisation auf das Sorptionsverhalten durch parallele Versuche mit dem Wasser der Strecke 670 in verschiedenen Konzentrationen untersucht.

#### 4.3.2. Auswertung von Schüttelversuchen

Die Auswertung der Schüttelversuche erfolgte nach folgenden Gleichungen

$$R_S = \frac{A_0}{A_S} - 1 \cdot \frac{V}{M} \quad \left[ \frac{\text{ml}}{\text{g}} \right] \quad (1)$$

Entsprechend gilt für die Desorption:

$$R_D = \frac{V (A_0 - A_D) - (V_E \cdot A_S)}{M \cdot A_D} \quad \left[ \frac{\text{ml}}{\text{g}} \right] \quad (2)$$

$A_0$  = Aktivität Referenzbecher nach Sorption

$A_S$  = Aktivität Gest.-becher nach Sorption

$A_D$  = Aktivität Gesteinsbecher nach Desorption

$V$  = eingesetztes Volumen

$M$  = Trockeneinwaage Gestein

$V_E$  = nach Sorption entnommenes Volumen

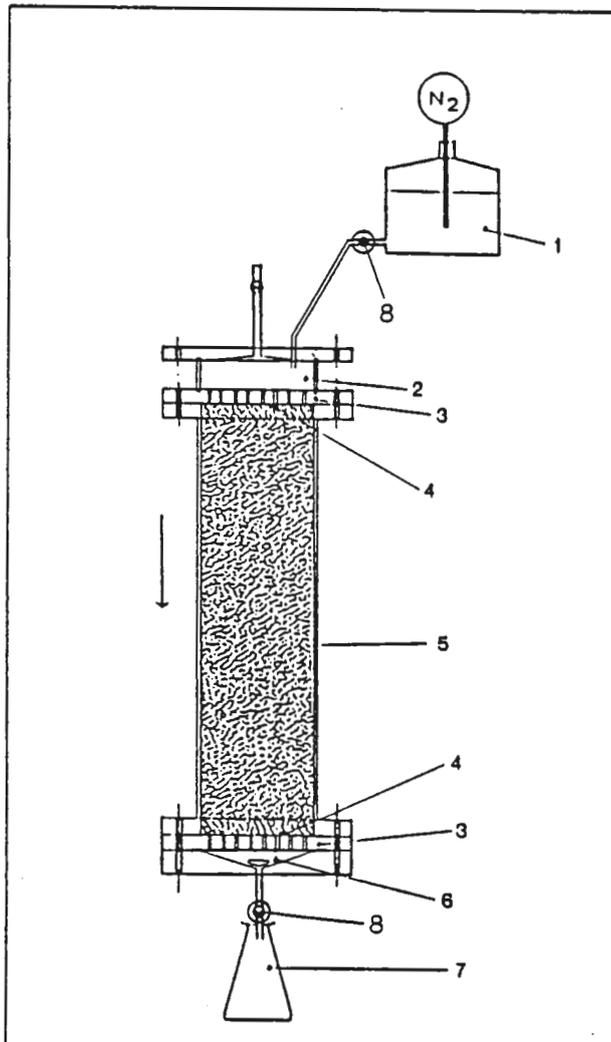
#### 4.4. Durchlaufsäulenversuche

##### 4.4.1. Durchführung der Durchlaufsäulenversuche

Als Säulenkörper wurden vertikal angeordnete Rohre ( $\varnothing 100$  mm) aus Hart-PVC mit angeschweißten Flanschen verwendet. Die Säulenfüllung schloß an den Enden je ein Feinfilter und eine 15 mm starke Lochplatte ein.

Am oberen Ende der Säule dient eine Kammer zur Verteilung des zulaufenden Wassers, zur Aufgabe der Radionuklide und deren gleichmäßiger Verteilung über den Säulenquerschnitt. Am Fuß der Säule wird das ablaufende Wasser in einem konisch auf das Auslaufventil hinführenden Hohlraum gesammelt.

Zur Wasserversorgung stand je eine Mariotte'sche Flasche bereit, der Durchsatz durch die Säule wurde durch die Ventile im Zulauf sowie im Auslauf geregelt (s.a.Abb. 7).



- 1 Mariotte'sche Flasche
- 2 Vorkammer (Verteiler)
- 3 Siebplatte
- 4 Feinsieb (Nylongaze)
- 5 Säulenkörper
- 6 Ablaufsammler
- 7 Auffanggefäß
- 8 Ventile f. Zulaufregelung

Abb. 7: Aufbau (schematisch) der Durchlaufsäulen

Von den drei vorhandenen Kornfraktionen kamen die Korngrößenklasse 6-20mm in 100cm-Säulen und die Korngröße 2-6mm in 50- und 20cm-Säulen zum Einbau. Der Einsatz der Kornfraktion 0,2-2mm erwies sich nach Vorversuchen, infolge der geringen Durchlässigkeiten, als nicht sinnvoll.

Bei der Förderung des Probenmaterials, bei dessen Aufbereitung und beim Transport entstanden Feinkornstäube durch mechanischen Abrieb, welche die Gesteinsoberfläche im Versuchsaufbau erheblich vergrößert hätte. Vor dem Einbau in die Säulen wurde deshalb das Gestein in dem jeweiligen Formationswasser behutsam gewaschen. Dieser Waschvorgang geschah ein bis mehrmals je nach Ausmaß des Feinkornanteils (besonders die Oberkreide-Gesteine bedurften intensiver Aufbereitung - wobei die leicht aufschlammbaren Mergel-Kalk-Steine mit wechselnden Tongehalten nur vorsichtig im Waschwasser bewegt wurden).

Anschließend wurde das Probenmaterial in Lagen von ca. 10-15 cm unter Wasser durch Klopfen an den Säulenzylinder eingerüttelt. Der Füllvorgang geschah "kopfüber" von oben nach unten und das für den Einbau verwandte Wasser wurde mehrmals während des Füllvorganges ersetzt.

Nach Verschuß der Säule folgte ein Durchspülvorgang mit Waschwasser, mit dem ein nochmaliges Ausschwemmen von Feinkorn bewirkt wurde. Die Entfernung dieser abgelagerten Feinstkornanteile geschah nach der Demontage des Säulenkopfes (bei Einbau und Spülung unten). Um die Lufteinschlüsse in den Poren zu beseitigen wurde an die gesteins- und wassergefüllte Säule ein Unterdruck angelegt.

Zur Einstellung eines konstanten Durchflusses und zur Säulenstabilisierung wurden die Säulen ein bis zwei Wochen vor der Radionuklid-Aufgabe inaktiv betrieben.

Die Aufgabe der Nuklide geschah in der Vorkammer (Zulauf-Verteiler) am Kopfende bei abgesenkten Wasserspiegel. Die mittels einer radial versprühenden Kanüle verteilte RN-Nuklid-Lösung wurde dort mit dem einige mm hoch über der Siebplatte stehenden Wasser vermischt und daraufhin in die Siebplatte eingelassen. Nach dem Wiederauffüllen der Vorkammer begann der Versuch.

#### 4.4.2. Auswertung von Durchlaufsäulenversuchen

Zur Ermittlung der Konzentrations-Zeit-Verteilung werden am Auslauf der Säule der Durchsatz und die Aktivität des Tracers im Ablaufvolumen bestimmt.

Hieraus ergeben sich die Durchbruchkurven und als Summenkurven die kumulativen Verteilungen über dem ablaufenden Volumen.

Das Auswerteverfahren läßt die mittlere Abstandsgeschwindigkeit aus der Zeit vom Versuchsbeginn bis zum Durchgang des Schwerpunktes (Median oder 50%-Wert) der wiedergefundenen Menge des Tracers erkennen. Daneben wird die Standardabweichung nach der Anpassung an eine symmetrische Normalverteilung im graphischen Verfahren bestimmt.

Zur Ermittlung der Retardationsfaktoren werden an ein und derselben Probe zwei Versuche unternommen. Der Transport eines (keinen Verzögerungen unterliegenden) Tracers wird verglichen mit der Wanderungsbewegung des R-Nuklids in dem zu untersuchenden porösen Medium.

Die Bestimmung der einzelnen Parameter erfolgte nach folgenden Gleichungen:

### Säulenkenngößen

Trockenraumdichte  $\gamma = \frac{M_G}{V_S} \quad (\text{g/cm}^3) \quad (3)$

$M_G$  = trockene Gesteinsmasse

$V_S$  = Säulenvolumen

Porenvolumen  $n = \frac{V_S - V_G}{V_S} \cdot 100 \quad (\%) \quad (4)$

$V_G$  = Gesteinsvolumen

$V_G = \frac{M_G}{\rho}$  ;  $\rho$  = spez. Dichte

### Hydraulische Kenndaten

Filtergeschwindigkeit  $V_f = \frac{Q}{A} \quad (\text{m/sec}) \quad (5)$

$Q$  = Durchsatz  $(\text{m}^3/\text{s})$

$A$  = Säulenquerschnitt  $(\text{m}^2)$

Abstandsgeschwindigkeit  $V_a = \frac{L}{t_{50}} \quad (\text{m/sec}) \quad (6)$

$L$  = Säulenlänge  $(\text{m})$

$t_{50}$  = Zeitpunkt des Durchgangs  
von 50% der im Auslauf  
gemessenen Traceraktivität  
(s)

effektives  
Porenvolumen

$$n_{\text{eff}} = \frac{V_f}{V_a} \cdot 100 \quad (\%) \quad (7)$$

longitudinaler  
Dispersionskoeffizient

$$D_L = \frac{V_a^2 (t_{84} - t_{16})}{8 t_{50}} \quad (\text{cm}^2/\text{sec}) \quad (8)$$

$t_{16}, t_{84}$  = Zeitpunkt des  
Durchgangs von 16%  
bzw. 84% der im  
Ablauf gemessenen  
Traceraktivität  
(= Standardabweichung  
um den Medianwert)

Dispersionslänge

$$L_D = \frac{D_L}{V_a} \quad (\text{cm}) \quad (9)$$

#### Parameter des Migrationversuches mit Radionukliden

Filtergeschwindigkeit

$$V_{f,RN} = \frac{Q_{RN}}{A} \quad (\text{m/sec}) \quad (10)$$

Abstandsgeschwindigkeit

$$V_{a,RN} = \frac{L}{t_{50,RN}} \quad (\text{cm/sec}) \quad (11)$$

Anpassung der Abstandsgeschwindigkeiten aus  
Vorversuch und Radionuklid-Durchlauf

korrigierte Abstandsgeschwindigkeit  
aus dem Vorversuch mit idealem  
Tracer

$$V_a^* = \frac{V_{f,RN}}{n_{eff}} \quad (\text{m/sec}) \quad (12)$$

Retardationsfaktor

$$R_f = \frac{V_a^*}{V_{a,RN}} \quad (13)$$

Konzentrations-  
verteilungskoeffizient

$$K_D = \frac{n_{eff} (R_f - 1)}{\gamma} \quad (\text{cm}^3/\text{g}) \quad (14)$$

Ermittlung der Abstandsgeschwindigkeit bei starker  
Sorption über die Konzentrations-Orts-Verteilung  
nach Zerlegung der Säulen

Abstandsgeschwindigkeit

$$V_{a,RN} = \frac{x_{50}}{t} \quad (\text{m/sec}) \quad (15)$$

$x_{50}$  = Länge vom Säulen-  
anfang bis zum 50%-  
Wert der Restaktivitäts-  
verteilung

$t_{50}$  = Versuchsdauer

Bei Festlegung von 50% der Restaktivität in der obersten Scheibe wird  $x_{50}$  interpoliert nach:

$$x_{50} = x_p \frac{-\ln 2}{\ln(1 - p/100)} \quad (\text{cm}) \quad (16)$$

$x_p$  = Dicke der Scheibe

$p$  = prozentualer Anteil der  
in  $x_p$  enthaltenen Rest-  
aktivität

#### 4.5. Umlaufsäulenversuche

##### 4.5.1. Durchführung von Umlaufsäulenversuchen

Neben den Schüttel- und Durchlaufsäulenversuchen wurden exemplarisch mit einigen Gesteinen des Grubengebäudes Umlaufsäulenversuche durchgeführt. Zum Einbau kamen die Gesteine: Hangendes Erz, Liegendes Erz und Fladentonstein in allen drei Kornfraktionen, während das Gestein Heersumer Schichten nur in einer Kornfraktion ( $6 \text{ mm} > \phi > 2 \text{ mm}$ ) eingebaut wurde. In Abhängigkeit von der Korngröße erfolgte der Einbau in längenmäßig unterschiedlich dimensionierten Säulen. Für die kleinste Kornfraktion (0,2 mm - 2 mm) wurden Säulen mit einer Länge von 20 cm, für die mittlere Kornfraktion (2 mm - 6 mm) Säulen mit einer Länge von 50 cm und für die größte Kornfraktion (6 mm - 20 mm) Säulen mit einer Länge von 100 cm eingesetzt.

Den prinzipiellen Aufbau der Umlaufsäulen zeigt die Abb.8 . Infolge der bei der mittleren und groben Kornfraktion auftretenden Feinstkornbelegung auf den Oberflächen wurden diese Fraktionen vor dem Einbau in die Säulenkörper mit dem zugehörigen Wasser gewaschen (vgl. Abs. 4.4.1.). Der Einbau erfolgte zur Erzielung der größten Lagerungsdichte lagenweise (unter Wasserbedeckung) durch Einrütteln. Dabei wurden die Gesteine durch den Anschluß einer Wasserstrahlpumpe evakuiert.

Nach dem Einbau des Gesteins und dem Anschluß der peripheren Technik liefen die Säulen zur Gleichgewichtseinstellung zwei Wochen, während der die pH-Eh-Wert-Entwicklung im zirkulierenden Wasser beobachtet wurde. Diese Aufzeichnung der physiko-chemischen Bedingungen in der Säule erfolgte auch weiterhin nach der Aufgabe der Radionuklide Technetium und Selen.

Nach der Radionuklidaufgabe wurde bis zur Einstellung eines Sorptionsgleichgewichtes wöchentlich eine filtrierte (450 nm) und eine unfiltrierte Probe abgezogen, gemessen und wieder dem Kreislauf zugeführt. Nach Abschluß des Sorptionsversuches erfolgte für den Desorptionsversuch ein Austausch des zirkulierenden aktiven Wassers durch inaktives Wasser. Parallel liefen Referenzsäulen ohne Gestein, u.a. zur Ermittlung der Gerätesorption. Die sich in den einzelnen Säulen ergebenden Parameter zeigt die Tab.7

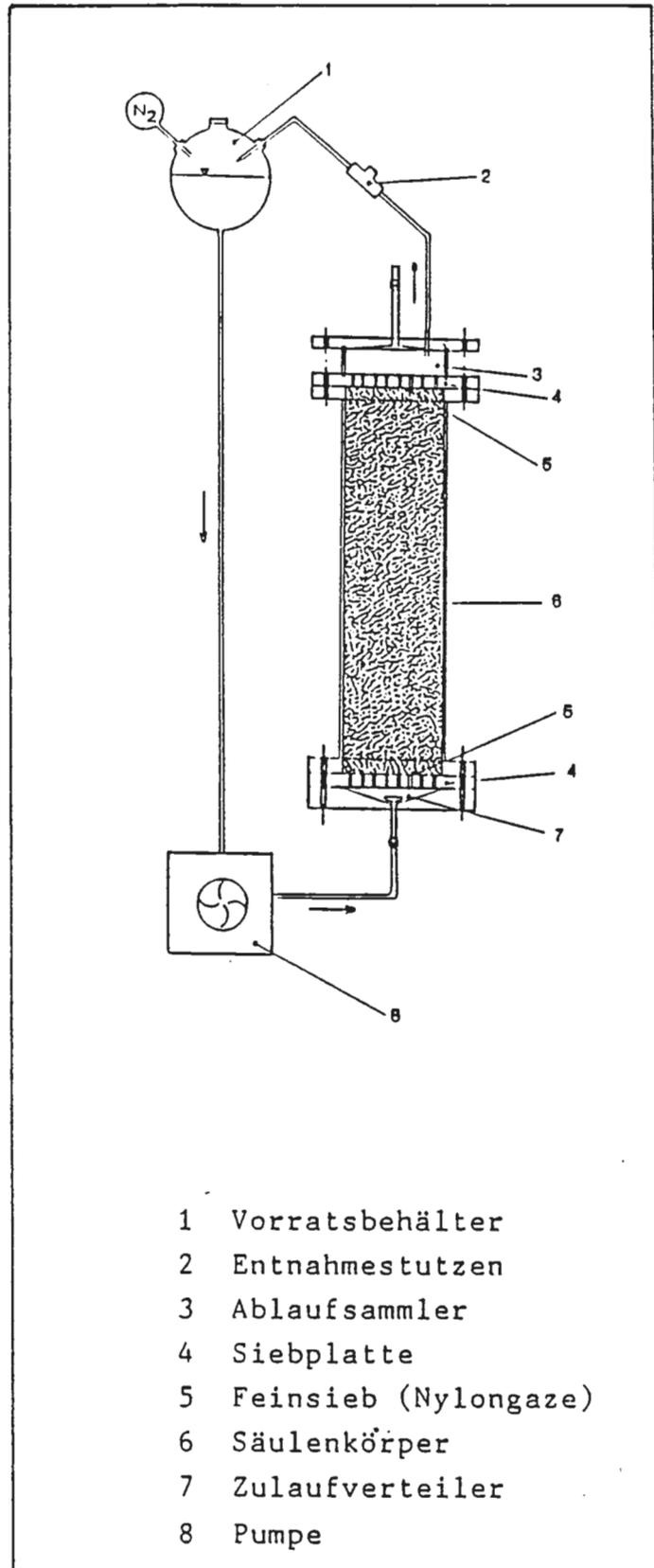


Abb. 8: Aufbau der Umlaufsäulen (schematisch)

Gestein	Korn- größen frakt. (mm)	Säulen- länge (cm)	Vol./Masse Verhältn.	Zeit f. einen Umlauf (h)	Aufgabe Aktiv. ( $\mu\text{Ci}$ )
Hang.Erz	0,2-2	20	0,68	9,25	3
	2 -6	50	0,53	16,72	8
	6 -20	100	0,44	28,37	10
Lieg.Erz	0,2-2	20	0,72	9,39	3
	2 -6	50	0,59	17,28	8
	6 -20	100	0,36	25,98	10
Fladen- tonstein	0,2-2	20	0,7	8,86	3
	2 -6	50	0,52	15,62	8
	6 -20	100	0,45	26,75	10
Heersumer Schichten	2 -6	50	0,57	16,72	8

Tab. 7: Parameter der Umlaufsäulen

#### 4.5.2. Auswertung der Umlaufsäulenversuche

Die Auswertung der Umlaufsäulenversuche erfolgte analog den Auswertungen für die Schüttelversuche (s.Abs. 4.3.2; Gleichung 1 und 2). Für die Berechnung der spez. Aktivität in Bezug auf gleiche Volumina ist jedoch eine Korrektur der in Referenzsäulen gemessenen Aktivität erforderlich:

$$A_0 = \frac{V_R}{V_S} \cdot A_R \quad (17)$$

$A_0$  = Korrigierte Aktivität Referenzsäule

$V_R$  = Umlaufwasser Volumen Referenzsäule

$V_S$  = Umlaufwasservolumen der gesteinsgefüllten Umlaufsäule

$A_R$  = gemessene Aktivität Referenzsäule

#### 4.6. Diffusionsversuche

##### 4.6.1. Durchführung der Diffusionsversuche

Das Ziel der Diffusionsversuche liegt in der Bestimmung des zeitlichen und mengenmäßigen Eindringens der untersuchten Radionuklide in die verschiedenen Festgesteine.

Die Untersuchung des Diffusionsverhaltens der eingesetzten Radionuklide Se-75 und Tc-95m gegenüber den verschiedenen Gesteinen erfolgte über die Betrachtung der zeitlichen Konzentrationsänderung. Verwendet wurde ein Diffusionsgefäß (s. Abb.9), das aus zwei Hälften gleicher Volumina besteht. Zwischen diese Hälften wurden die Gesteine, vorliegend als in Epoxydharz eingegossene und parallel geschnittene Scheiben mit einer Dicke zwischen 4,4 mm und 10 mm, eingebaut. Vor dem Einbau erfolgte unter Vakuum eine Wassersättigung des Porenraumes.

Eine mehrwöchige Stabilisierung der Systeme, in waagerechter und unveränderter Position mit dem Wasser der Strecke 670 bzw. Söhle-Wasser ging der Radionuklidaufgabe voraus. Die Konzentrationsänderung der auf eine der beiden Gefäßhälften aufgegebenen jeweils zwei Radionuklide wurden in beiden Gefäßen über die Zeit gemessen. Nach Abschluß der Versuche wurden die Gefäße demontiert. An einem Teil der Gesteinsplättchen wurden Auslaugungsversuche durchgeführt, während die Gesteine, die keinen Durchbruch zeigten, nach dem Trocknen abgefräst wurden, um einen Einblick in die räumliche Konzentrationsverteilung zu erhalten.

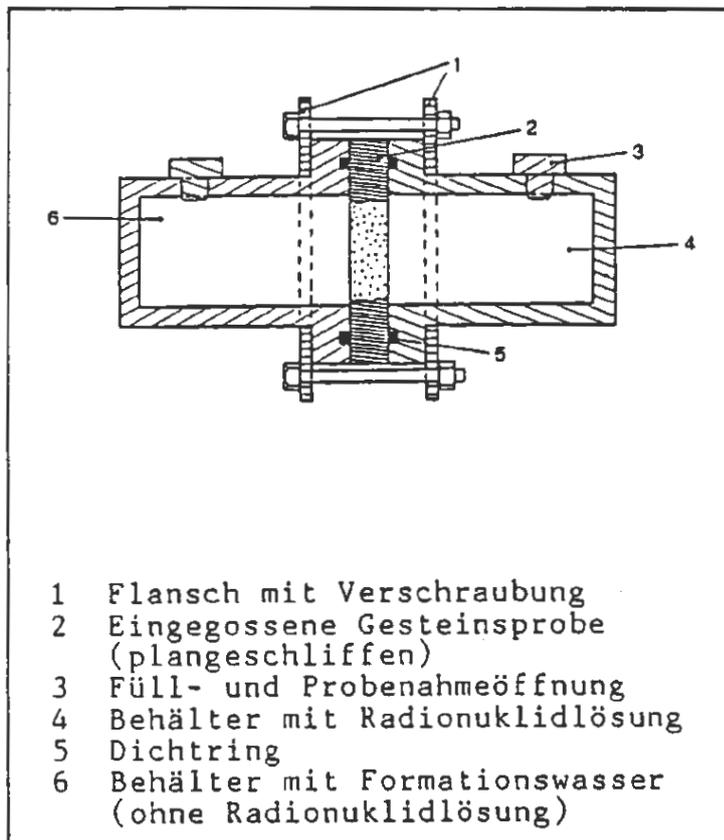


Abb. 9: eingesetztes Diffusionsgefäß (schematisch)

#### 4.6.2. Auswertung der Diffusionsversuche

Unter der Annahme der Vernachlässigung der versuchsbedingten, jedoch unwesentlichen Veränderung der Ausgangskonzentration in der aktiven Gefäßhälfte kann der Diffusionskoeffizient nach [REDACTED] (1982) aus dem linearen Anstieg der Durchbruchkurve ermittelt werden (Gl.18). Der für die Ermittlung des Verteilungskoeffizienten  $K_D$  erforderliche Gesteinskapazitätsfaktor errechnet sich nach Gl.19, wobei sich die Durchbruchzeit durch Extrapolation auf die Radionuklidkonzentration Null aus der Durchbruchkurve ergibt. Der Verteilungskoeffizient errechnet sich unter Verwendung der Porosität, der Trockenraumdichte und des Gesteinskapazitätsfaktors nach Gl.20:

$$D = \frac{\frac{V \cdot l}{F} \cdot \frac{c_2'' - c_2'}{c_1}}{t_2'' - t_2'} \quad (\text{cm}^2 \text{s}^{-1}) \quad (18)$$

$$\alpha = \frac{6 \cdot t \cdot D}{l^2} \quad (19)$$

$$K_D = \frac{\alpha - n}{\rho} \quad (\text{cm}^3/\text{g}) \quad (20)$$

In den Gl.18 - 20 bedeuten:

D = Diffusionskoeffizient ( $\text{cm}^2 \text{s}^{-1}$ )

V = Volumen des Probengefäßes (= 14.5 ml)

l = Gesteinsdicke (cm)

F = Gesteinsfläche ( $\text{cm}^2$ )

$c_1$  = Radionuklidkonz. Versuchsbeginn (nCi/ml)

$c_2'$

$c_2''$  = Radionuklidkonzentration zur Zeit  $t_2'$   
und  $t_2''$  in der inaktiven Gefäßhälfte

$\alpha$  = Gesteinskapazitätsfaktor

t = extrapolierte Durchbruchzeit (s)

n = Porosität

$\rho$  = Gesteinsdichte ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )

Die Frage des Auswerteverfahrens für die Diffusionsversuche ist zum Zeitpunkt des Abschlusses dieses Berichtes noch in der Diskussion.

## 5. Ergebnisse

### 5.1. Schüttelversuche

Für die Ermittlung der zum Einstellen eines Sorptionsgleichgewichtes erforderlichen Schüttelzeiten wurden Versuche mit verschiedenen Schüttelzeiten durchgeführt, deren Ergebnisse die Abb. 10 zeigt. In den Tab. 8-15 sind die Ergebnisse der Schüttelversuche für die Kornfraktion 0,2-2 mm dargestellt. Für das Radionuklid Technetium kann in den Gesteinen der Oberkreide allgemein ein geringerer Rückhalt erkannt werden. Die Gesteine des Grubengebäudes Erzkalke und Heersumer Schichten zeigen  $R_S$ -Werte  $>1$ . Die vergleichbaren Sorptionswerte des

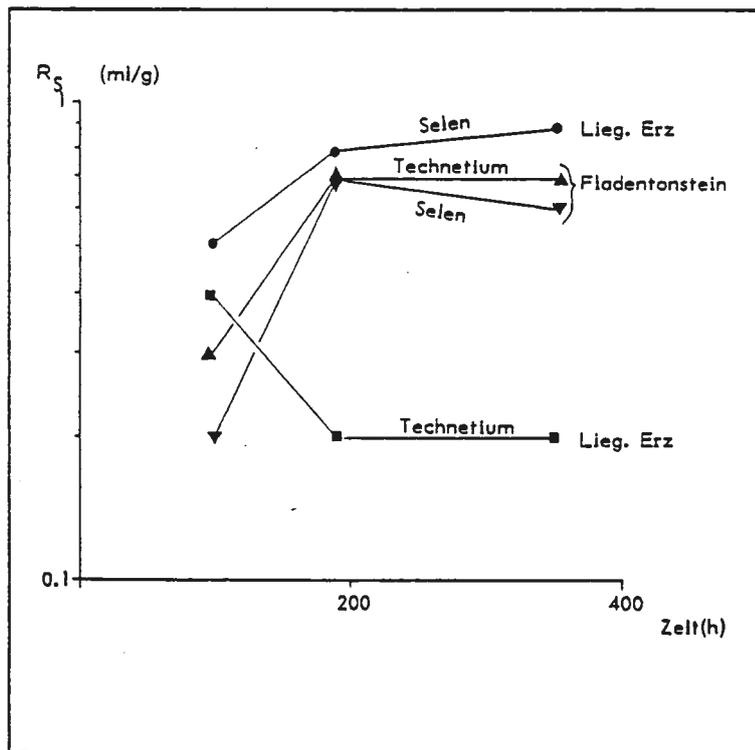


Abb. 10: Ermittlung der Zeitabhängigkeit für die Gleichgewichtseinstellung Gestein (Kornfraktion 0,2-2mm)/Wasser zur Festlegung der Schüttelzeit

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr.	0.1	0.38	0.58	2.7
Rotpläner	" "	0	0.11	1	5.9
Rhotomagensis-Pl.	" "	0.03	0.03	0.81	3.6
U/M Cenoman	" "	0	0	0.4	3.1

Tab. 8: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert)  
für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-  
Wasser, Kornfraktion 0,2-2mm, Aufgabeaktivität  
der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l;  
Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr.	0.33	1	0.38	0.53
Hang. Erz	" "	0.15	0.33	0.81	2
Lieg. Erz	" "	0.3	0.5	0.9	2.7
Erzkalk-Serie	" "	1.2	3.5	0.3	1.4
Fladentonstein	" "	0.48	0.89	0.68	2
Heersumer-Sch.	" "	1.7	2.1	0.64	1.8
Versatz-Material	" "	0.11	0.75	0.9	3.1

Tab. 9: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert)  
für die Gesteine des Grubengebäudes mit Wasser  
der Strecke 670, Kornfraktion 0,2-2mm, Aufgabeaktivität  
der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l;  
Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert	0.24	0.97	0.72	3.5
Rotpläner	" "	0.04	0.32	1	6.4
Rhotomagensis-Pl.	" "	0.17	0.72	0.9	4.3
U/M Cenoman	" "	0	0	0.51	3.4

Tab. 10: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser, Kornfraktion 0,2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert	0.38	1.5	0.31	0.69
Ilang. Erz	" "	0.1	0.14	0.82	2.1
Lieg. Erz	" "	0.24	0.33	0.93	3
Erzkalk-Serie	" "	1.3	4.1	0.38	2
Fladentonstein	" "	0.29	0.45	0.54	1.6
Heersumer-Sch.	" "	1.8	2	0.63	1.7
Versatz-Material	" "	0.26	1.5	1	3.5

Tab. 11: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine des Grubengebäudes mit Wasser der Strecke 670, Kornfraktion 0,2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr.	2.2	0.19	89	42
Rotpläner	" "	3.2	1.2	70	30
Rhotomagensis-Pl.	" "	6.7	4.2	115	115
U/M Cenoman	" "	5	4.7	20	17

Tab. 12: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser, Kornfraktion 0,2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95 : 3.7 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr.	3.4	4.4	5	69
Ilang. Erz	" "	21	18	34	19
Lieg. Erz	" "	22	23	29	27
Erzkalk-Serie	" "	2.9	2.6	3.6	1.6
Fladentonstein	" "	5.3	6.8	7.9	11
Heersumer-Sch.	" "	15	13	27	13
Versatz-Material	" "	13	5	25	6.2

Tab. 13: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine des Grubengebäudes mit Wasser der Strecke 670, Kornfraktion 0,2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95 : 3.7 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert	2.9	0.95	92	37
Rotpläner	" "	1.9	0.06	58	30
Rhotomagensis-Pl.	" "	5.4	2.4	156	65
U/M Cenoman	" "	5.4	4.4	20	18

Tab. 14: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser, Kornfraktion 0,2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95 : 3.7 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert	1.2	1	0.99	0
Hang. Erz	" "	13	12	26	16
Lieg. Erz	" "	5.2	5.2	6.6	4.6
Erzkalk-Serie	" "	2.1	1.1	3	0.63
Fladentonstein	" "	3.8	4.6	7.1	11
Heersumer-Sch.	" "	11	8.4	21	10
Versatz-Material	" "	13	5	25	6.2

Tab. 15: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine des Grubengebäudes mit Wasser der Strecke 670, Kornfraktion 0,2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95 : 3.7 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Hangenden Erzes, Liegenden Erzes und des Versatzes sind auf die petrographisch ähnliche Zusammensetzung dieser Gesteine zurückzuführen. Diese zeigt sich auch im Sorptionsverhalten des Selen, wo diese Gesteine die höchsten  $R_S$ -Werte der Gesteine des Grubengebäudes zeigen.

Die in Tab. 12-15 angeführten Sorptions- und Desorptionswerte für die Radionuklide Zirkon und Niob weisen auf eine geringe Festlegung hin, die in weiteren Versuchen mit diesen Radionukliden nicht bestätigt werden konnten. Die Ursache für diese geringen Werte liegt wahrscheinlich in der Art der Neutralisation der Radionuklide. Vor der Nuklidabgabe auf die Batch-Becher wurde der in saurer Lösung vorliegende Zr/Nb-Oxalatokomplex neutralisiert und anschließend filtriert (450 nm). Bei der Neutralisation mit Natronlauge kam es zu einer starken Hydrolyse des Zirkons und Niobs, die nur eine sehr geringe Restaktivität in den filtrierten Lösungen erbrachte. Durch die Zugabe eines Phosphatpuffers bei der Neutralisation konnte eine erheblich größere Aktivitätsausbeute erzielt werden, die offensichtlich durch das Vorliegen kleinerer Teilchengrößen bei den Hydrolyseprodukten hervorgerufen wurde. Bezogen auf eine Aufgabeaktivität von  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l liegen die  $R_S$ -Werte bei gemessenen durchschnittlichen Aktivitäten nach dem Versuch von ca.  $1.85 \cdot 10^3$  Bq/l bei einem  $R_S$ -Wert von ca. 500.

Die Tab. 16-23 zeigen die entsprechenden  $R_S$ -Werte für die Kornfraktion 6-20mm. Die  $R_S$ -Werte nach der Filtration sind für das Radionuklid Selen bei den Gesteinen der Oberkreide gegenüber der Kornfraktion 0,2-2 mm (vgl. Tab. 11) deutlich geringer. Gleiches gilt für die Gesteine des Grubengebäudes mit Ausnahme der Erzkalkserie und des Fladentonsteines, die sich etwa entsprechen. Die Sorptionswerte für Technetium zeigen bei den Gesteinen der Oberkreide, dem Lamarcki- und

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr.	0	0.07	0.08	0.17
Rotpläner	" "	0.49	0.9	0.22	0.42
Rhotomagensis-Pl.	" "	0	0.07	0.18	0.3
U/M Cenoman	" "	0.78	1.8	0.3	1.2

Tab. 16: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser, Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr.	0.15	0.82	0.15	0.63
Hang. Erz	" "	0.73	1.6	0.07	0.05
Lieg. Erz	" "	0.92	3	0.12	0.89
Erzkalk-Serie	" "	0.48	1.9	0.31	1.3
Fladentonstein	" "	1.7	3.7	0.65	2.2
Heersumer-Sch.	" "	1.5	2.5	0.3	1.1

Tab. 17: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine des Grubengebäudes mit Wasser der Strecke 670, Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert	0	0	0	0
Rotpläner	" "	0.46	0.81	0.17	0.29
Rhotomagensis-Pl.	" "	0.03	0.11	0.16	0.11
U/M Cenoman	" "	0.87	2.1	0.22	1

Tab. 18: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser, Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert	0.16	0.77	0.21	0.78
Hang. Erz	" "	0.69	1.5	0.3	0
Lieg. Erz	" "	0.9	3.1	0.1	0.52
Erzkalk-Serie	" "	0.8	2.3	0.39	1.5
Fladentonstein	" "	1.7	3.8	0.59	2.1
Heersumer-Sch.	" "	1.5	2.6	0.29	1

Tab. 19: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine des Grubengebäudes mit Wasser der Strecke 670, Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr.	5	>1000	26	43
Rotpläner	" "	2	5.1	36	42
Rhotomagensis-Pl.	" "	10	>1000	16	23
U/M Cenoman	" "	4.4	8.7	51	84

Tab. 20: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser, Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95 : 3.7 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr.	0	0	12	21
Hang. Erz	" "	7.5	10	77	301
Lieg. Erz	" "	5.1	7.5	3	3.9
Erzkalk-Serie	" "	3.8	1.2	17	28
Fladentonstein	" "	0.21	0.03	0	0
Heersumer-Sch.	" "	2	2.4	32	66

Tab. 21: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine des Grubengebäudes mit Wasser der Strecke 670, Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95 : 3.7 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert	9.2	6.3	27	45
Rotpläner	" "	1.9	2.6	35	51
Rhotomagensis-Pl.	" "	11	14	15	24
U/M Cenoman	" "	4.9	5.4	51	87

Tab. 22: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser, Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert	12	>1000	16	163
Hang. Erz	" "	12	>1000	76	328
Lieg. Erz	" "	5	18	4	10
Erzkalk-Serie	" "	14	11	17	86
Fladentonstein	" "	1.2	1.3	0.5	0
Heersumer-Sch.	" "	12	6.4	65	165

Tab. 23: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine des Grubengebäudes mit Wasser der Strecke 670, Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95 :  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 358h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Rhotomagensis-Pläner und den Gesteinen des Grubengebäudes Kimmeridge und Erzkalke vergleichsweise kleinere Sorptionswerte, während Rotpläner, U/M Cenoman, Hangendes Erz, Liegendes Erz und Fladentonstein größere Werte aufweisen. Lediglich das Gestein Heersumer Schichten weist einen, auf die Kornfraktion 0.2-2mm bezogen, vergleichbaren Wert auf.

Betrachtungen über die Zeitabhängigkeit für die Sorptionsgleichgewichtseinstellung bei der Kornfraktion 6-20mm ermöglichen die Tab. 24-27. Die Abhängigkeiten für die Gesteine Fladentonstein und Liegendes Erz (für Tc-95m s. Abb. 11), lassen erkennen, daß eine wesentlich längere Zeit für die Gleichgewichtseinstellung erforderlich ist. Als eine Ursache kann sicherlich die Diffusion der Radionuklide in die größeren Gesteinsbruchstücke angesehen werden.

Die Tab. 28-35 weisen die bei geringer Radionuklidkonzentration (Tc u. Se:  $7.4 \cdot 10^3$  Bq/l; Zr u. Nb:  $6.7 \cdot 10^4$  Bq/l) ermittelten  $R_S$ - und  $R_D$ - Werte aus. Für das Radionuklid Technetium kann für die Gesteine des Grubengebäudes eine allgemein höhere Festlegung erkannt werden (s. Abb. 12). Auffallend sind hier wie auch beim Selen die vergleichsweise (Tab. 9 u. 11) durchweg größeren  $R_D$ -Werte. Die Gesteine der Oberkreide zeigen für das Technetium keine größeren Unterschiede; es findet eine geringe Festlegung statt (s. Abb. 13). Für das Radionuklid Selen treten bei den Gesteinen des Grubengebäudes kaum Unterschiede bei den  $R_S$ - Werten gegenüber den Versuchen mit Konzentrationen von  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l auf (vgl. a. Abb. 13). Für die Gesteine der Oberkreide zeigt Selen bei geringer Radionuklidkonzentration kleinere  $R_S$ - Werte (vgl. Abb. 14).

Zirkon und Niob lassen meist hohe  $R_S$ - und  $R_D$  - Werte erkennen. Lediglich Niob weist mit zwei Ausnahmen geringere Sorptionswerte auf, die wahrscheinlich mit bedingt sind durch das hoch mineralisierte Wasser. Die höheren Sorptionswerte nach der Filtration weisen auf eine grob disperse Verteilung hin.

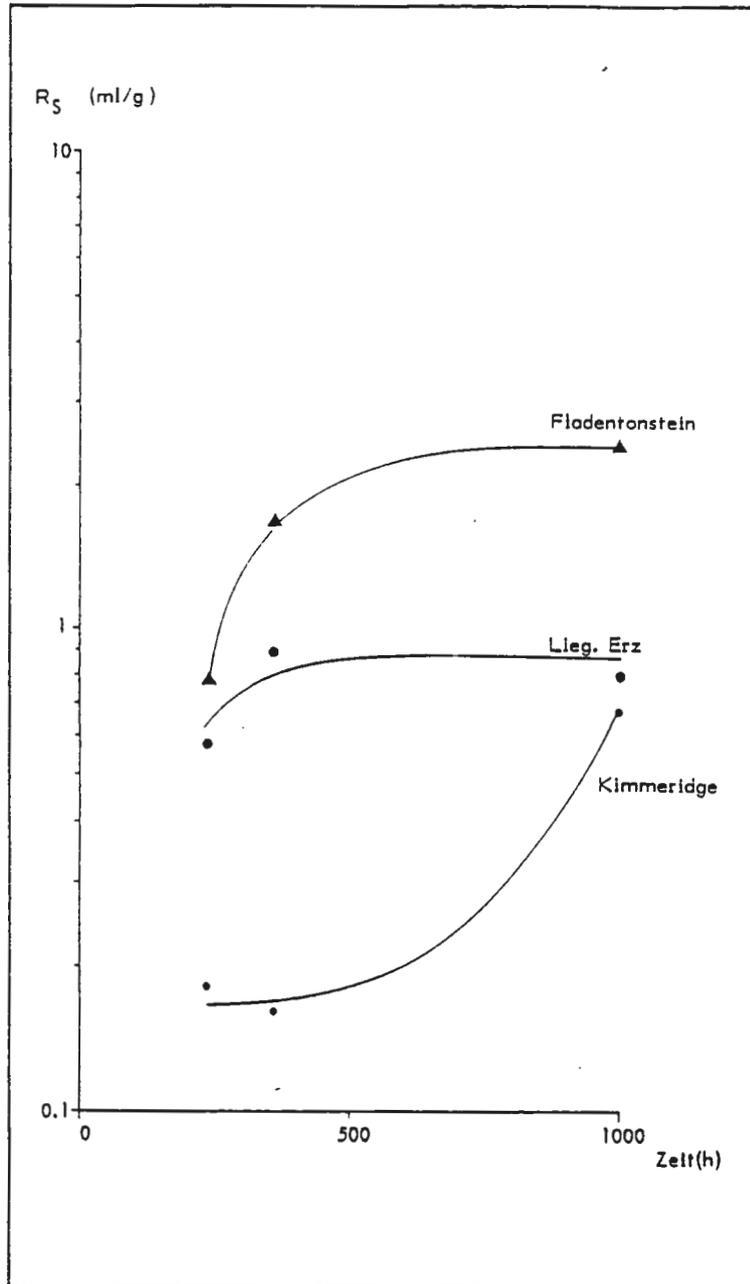


Abb. 11: Entwicklung der  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit von der Schüttelzeit für das Radionuklid Technetium (Korngrößenfraktion 6-20mm)

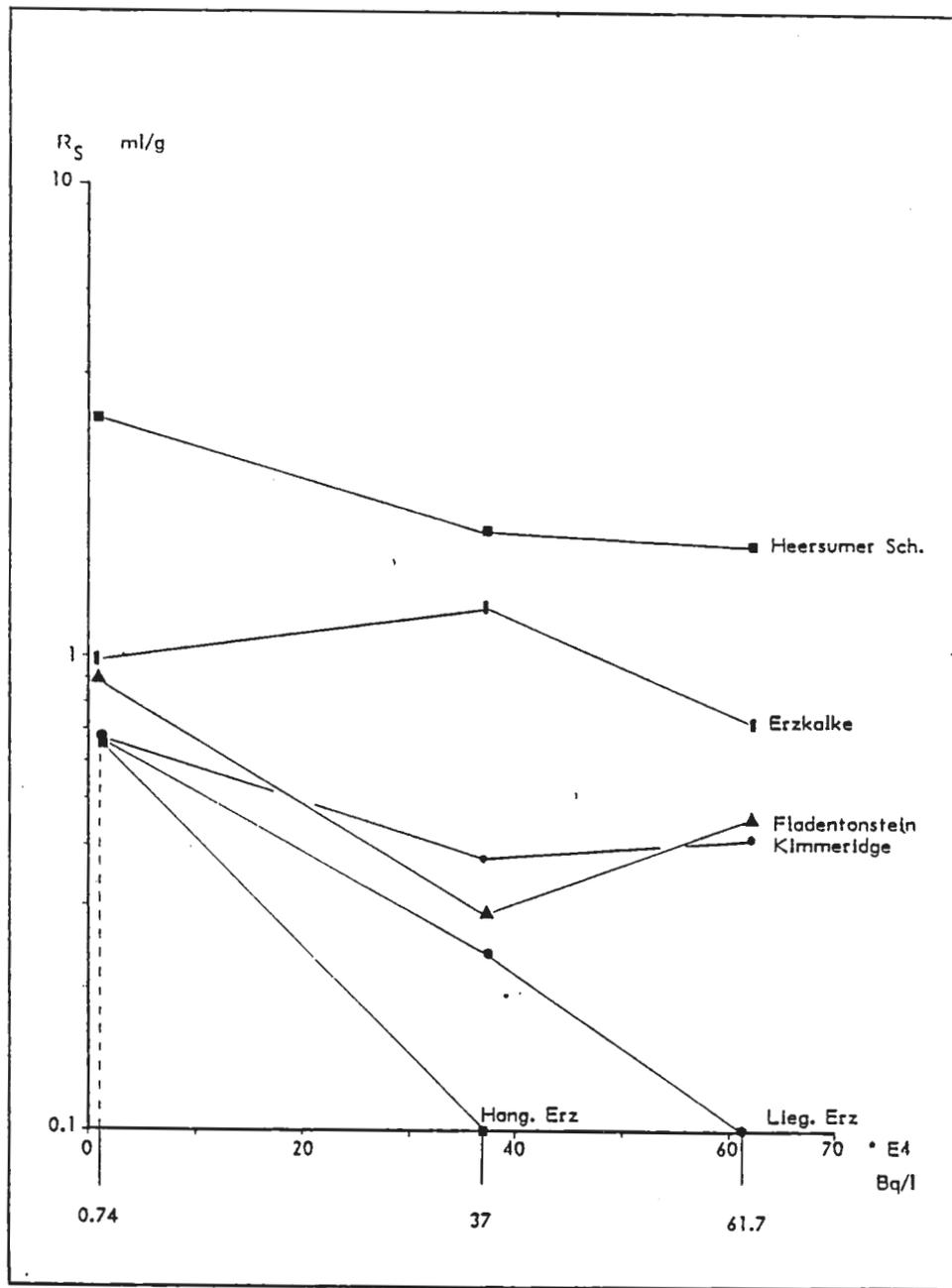


Abb. 12: Einfluß der Konzentration des Radionuklids Technetium auf das Sorptionsverhalten für die Gesteine des Gruben- gebäudes/ Wasser der Strecke 670

Die Tab. 36-39 zeigen die Ergebnisse bei einer höheren Radionuklidkonzentration ( $6.17 \cdot 10^5$  Bq/l). Technetium läßt in den Gesteinen der Oberkreide kaum eine Festlegung erkennen (Abb. 13). Für die Gesteine des Grubengebäudes kann kein deutlicher Einfluß der erhöhten Radionuklidkonzentration

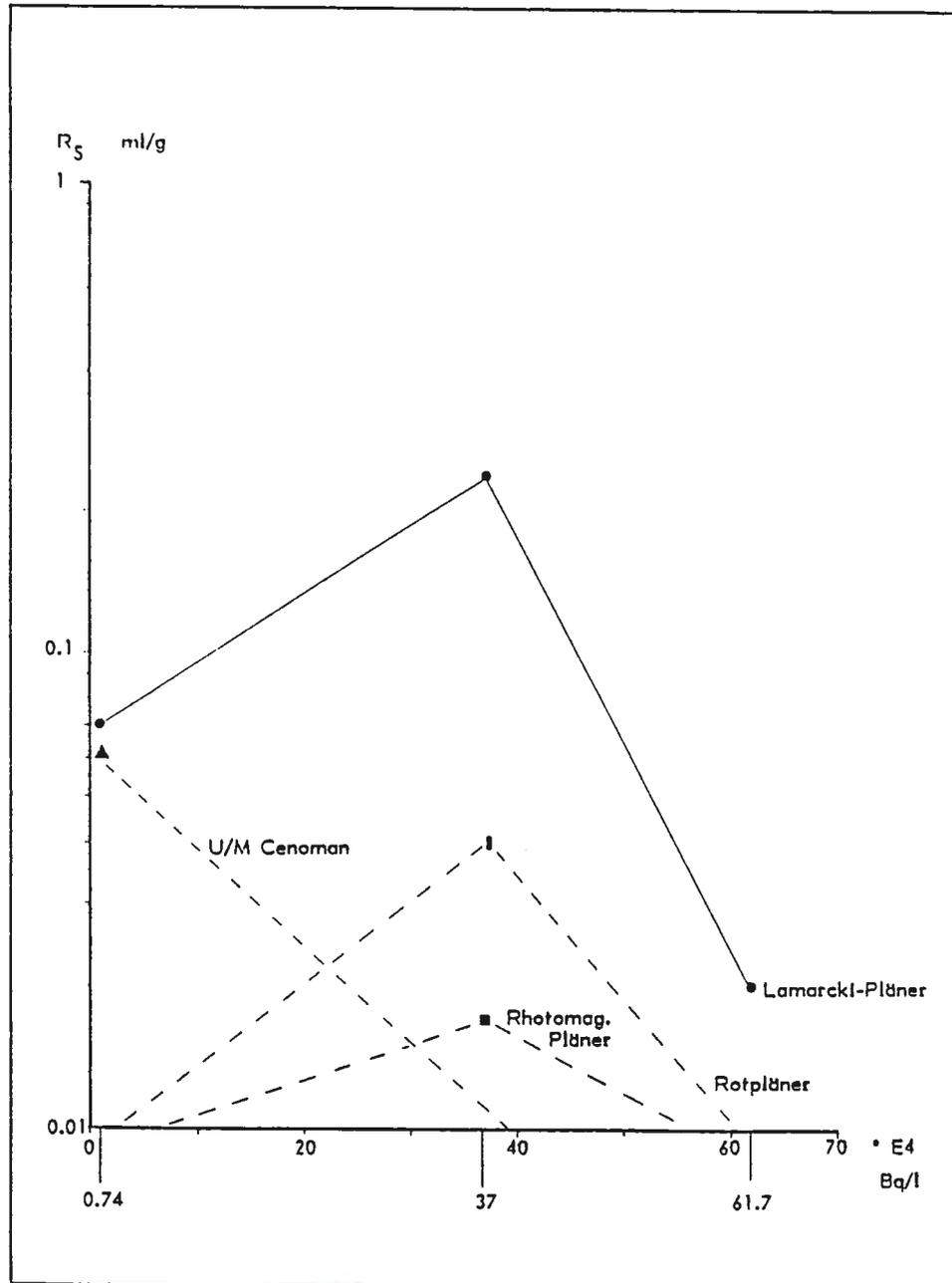


Abb. 13: Einfluß der Konzentration des Radionuklids Technetium auf das Sorptionsverhalten für die Gesteine der Oberkreide/Söhle-Wasser.

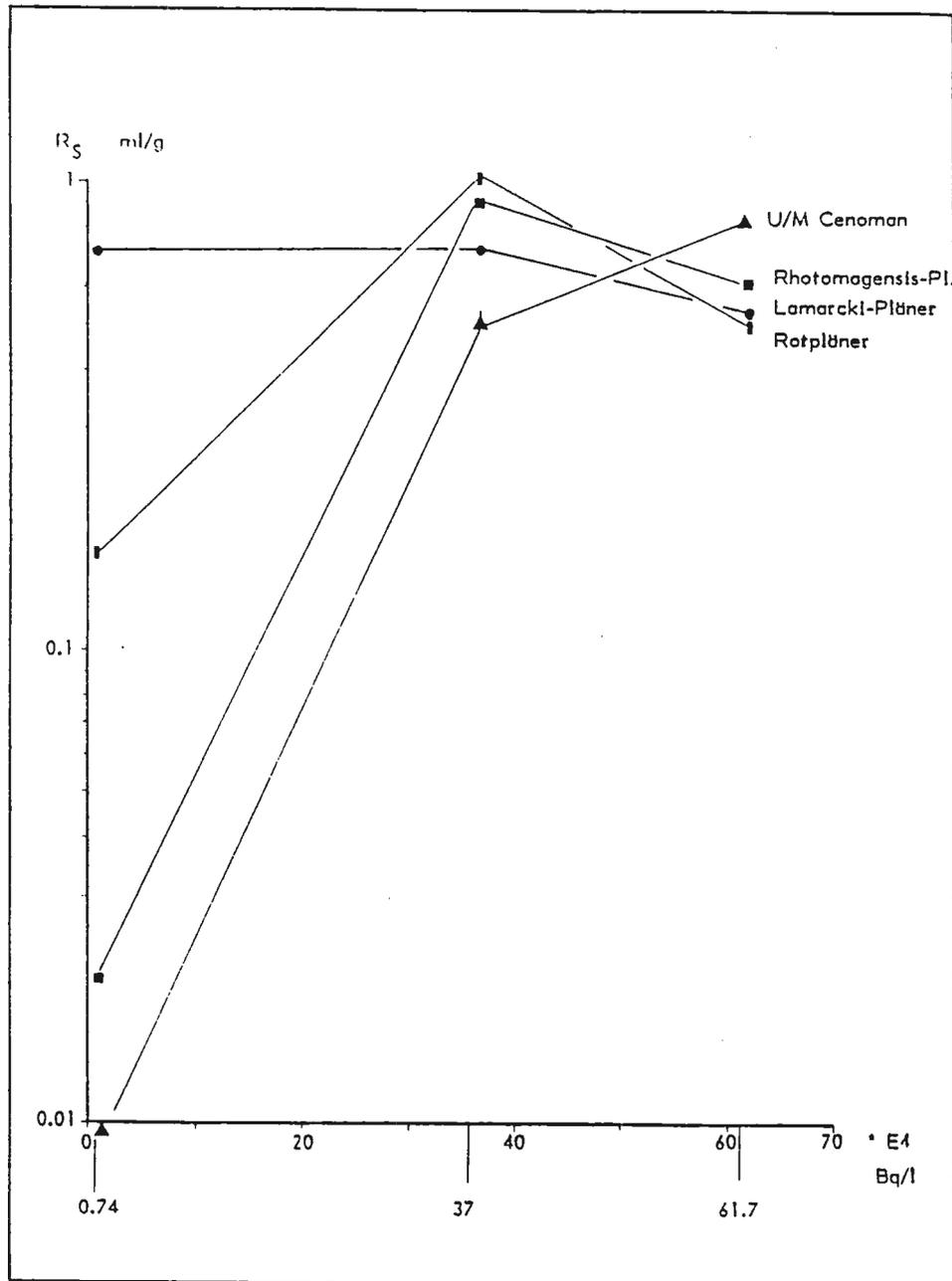


Abb. 14: Einfluß der Konzentration des Radionuklids Selen auf das Sorptionsverhalten für die Gesteine der Oberkreide/Söhle-Wasser.

erkannt werden; beim Liegenden Erz und dem Versatz sind jedoch kleinere Werte erkennbar. Für Selen kann gegenüber den Versuchen bei Konzentrationen von  $3.7 \cdot 10^5$  Bq/l allgemein keine Veränderung der  $R_S$ -Werte erkannt werden, nur beim

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. 233.5 h	0	0	0	0
Rotpläner	" "	.11	0	.02	0
Kimmeridge	" "	.45	0	.06	0
Lieg Erz	" "	.54	0	.23	0
Fladentonstein	" "	1.03	.7	.43	0

Tab. 24: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 2.96 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 233.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert 233.5 h	.15	0	.13	0
Rotpläner	" "	0	0	.03	0
Kimmeridge	" "	.18	0	.1	0
Lieg Erz	" "	.58	0	0	0
Fladentonstein	" "	.79	.32	.22	0

Tab. 25: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 2.96 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 233.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		$R_S$	$R_D$	$R_S$	$R_D$
Lamarcki-Pläner	unfiltr. 1000 h	.1	0	.3	0
Rotpläner	" "	0	0	.08	0
Kimmeridge	" "	.73	0	.15	0
Lieg Erz	" "	.92	0	.2	0
Fladentonstein	" "	1.97	1.8	0	0

Tab. 26: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $2.96 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 1000h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		$R_S$	$R_D$	$R_S$	$R_D$
Lamarcki-Pläner	filtriert 1000 h	.16	0	.14	0
Rotpläner	" "	.0	0	.0	0
Kimmeridge	" "	.68	0	.19	0
Lieg Erz	" "	.81	0	.01	0
Fladentonstein	" "	2.46	2.44	0	0

Tab. 27: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 6-20mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $2.96 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 1000h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. kl.Nukl.K	0	0	0.6	.54
Rotpläner	" "	.01	.17	.32	2.84
Rhotomagensis-Pl.	" "	.01	.46	.01	.43
U/M Cenoman	" "	.08	.3	0	0

Tab. 28: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 7.4 E 3 Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. kl.Nukl.K	.32	9.3	.08	3.28
Hang. Erz	" "	.18	.32	.23	1.21
Lieg. Erz	" "	.25	.85	1.71	.7
Erzkalk-Serie	" "	.76	3.66	.01	.93
Fladentonstein	" "	.28	.32	.1	1.35
Heersumer-Sch.	" "	2.16	8.81	.08	.52

Tab. 29: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 7.4 E 3 Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert kl.Nukl.K	.07	1.66	.7	.89
Rotpläner	" "	0	.03	.16	2.58
Rhotomagensis-Pl.	" "	0	0	.02	.51
U/M Cenoman	" "	.06	0	0	0

Tab. 30: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 7.4 E 3 Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert kl.Nukl.K	.67	1000	.57	9.4
Hang. Erz	" "	.67	3.97	.79	5.83
Lieg. Erz	" "	.68	5.1	5.23	4.82
Erzkalk-Serie	" "	.99	7.11	.29	9.06
Fladentonstein	" "	.9	5.23	.46	7.68
Heersumer-Sch.	" "	3.25	4.28	.93	5.36

Tab. 31: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 7.4 E 3 Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. kl. Nukl.	>1000	>1000	>1000	109	>1000	>1000
Rotpläner	" "	>1000	>1000	>1000	223	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	>1000	>1000	157	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 32: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113  $6.7 \cdot 10^4$  Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. kl. Nukl.	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Hang. Erz	" "	>1000	>1000	562	>1000	>1000	>1000
Lieg. Erz	" "	>1000	>1000	106	>1000	>1000	>1000
Erzkalk-Serie	" "	>1000	>1000	775	>1000	>1000	>1000
Fladentonstein	" "	>1000	>1000	411	>1000	>1000	>1000
Heersumer Sch.	" "	>1000	>1000	>1000	86	>1000	>1000

Tab. 33: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113:  $6.7 \cdot 10^4$  Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert kl. Nukl. K	>1000	>1000	>1000	115	>1000	>1000
Rotpläner	" "	>1000	>1000	>1000	229	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	>1000	>1000	280	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 34: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113  $6.7 \cdot 10^{-4}$  Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtr. kl. Nukl.	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Hang. Erz	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Lieg. Erz	" "	>1000	>1000	115.8	>1000	>1000	>1000
Erzkalk-Serie	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Fladentonstein	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Heersumer Sch.	" "	>1000	>1000	>1000	138	>1000	>1000

Tab. 35: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113:  $6.7 \cdot 10^{-4}$  Bq/l; Schüttelzeit 357.5h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. gr.N.-Ko.	.1	.1	.56	2.32
Rotpläner	" "	0	0	.46	1.93
Rhotomagensis-Pl.	" "	.02	0	.57	2.42
U/M Cenoman	" "	0	0	.7	3.73

Tab. 36: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $6.17 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. gr.N.-Ko.	.06	.42	.62	3.4
Hang. Erz	" "	.01	.37	.49	2.42
Lieg. Erz	" "	.12	.6	.6	3.22
Erzkalk-Serie	" "	.95	2.5	.49	2.65
Fladentonstein	" "	.32	1.16	.89	4.62
Heersumer-Sch.	" "	1.54	1.72	.51	2.64
Cornbrash-Sdst.	" "	.62	1.81	1.18	5.85
Versatz-Material	" "	.01	.21	.51	2.14

Tab. 37: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $6.17 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert gr. Nukl. K	.02	0	.53	1.94
Rotpläner	" "	0	0	.49	2.17
Rhotomagensis-Pl.	" "	0	0	.61	2.55
U/M Cenoman	" "	0	0	.81	3.12

Tab. 38: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $6.17 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert gr. Nukl. K	.42	1.61	.65	3.81
Hang. Erz	" "	.1	.65	.52	2.67
Lieg. Erz	" "	.01	.26	.8	3.92
Erzkalk-Serie	" "	.74	2.13	.43	2.83
Fladentonstein	" "	.47	1.48	1.17	5.73
Heersumer-Sch.	" "	1.76	2.26	.7	3.9
Cornbrash-Sdst.	" "	.49	2.15	.91	6.06
Versatz-Material	" "	.15	.78	.61	2.44

Tab. 39: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $6.17 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Fladentonstein ist der  $R_S$ -Wert deutlich höher (vgl. Abb. 15).  
Unterschiede finden sich jedoch in Bezug auf die  
Desorptionswerte, die bei den Gesteinen des Grubengebäudes  
allgemein größer sind.

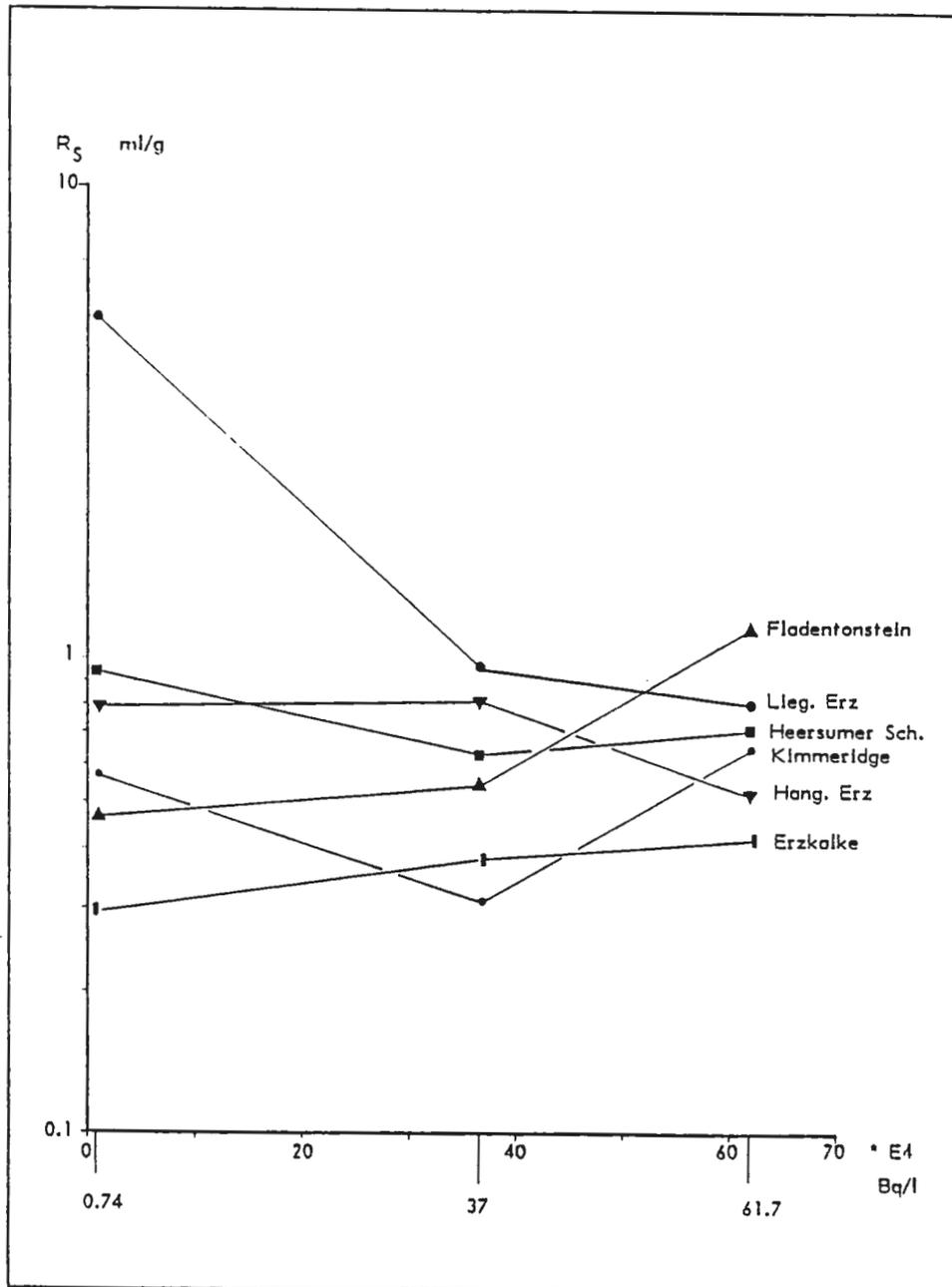


Abb. 15: Einfluß der Konzentration des Radionuklids Selen auf  
das Sorptionsverhalten für die Gesteine des Gruben-  
gebäudes/Wasser der Strecke 670.

Die in der Tab. 40 bzw. 41 aufgeführten  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte wurden exemplarisch an der Kornfraktion 2-6 mm ermittelt. Diese, unter Verwendung von Sieben, "schonend" durchgeführten Versuche (vgl. Abs. 4.3.1.) erbrachten  $R_S$ -Werte, die mit Ausnahme des Lamarcki-Plänen, wo höhere Werte auftreten, mit den Ergebnissen der Kornfraktion 6-20 mm vergleichbar (Tab. 24 u. 27) sind. Die geringen Desorptionswerte deuten auf eine Ungleichgewicht hin.

Den möglichen Einfluß eines veränderten pH-Wertes auf das Sorptions- Desorptionsverhalten zeigen die Tab. 42 - 45. Für Technetium läßt sich kein deutlicher Einfluß einer pH-Wert-Verschiebung auf das Sorptionsverhalten erkennen. Selen zeigt im sauren Milieu eine etwas höhere Festlegung (Tab. 43), die jedoch vergleichbar ist mit den Ergebnissen der Tab. 11. Im basischen Milieu kann deshalb eine größere Mobilität erwartet werden.

Der Einfluß einer Veränderung der Mineralisation auf das Sorptions- Desorptionsverhalten wurde an den Gesteinen der Oberkreide untersucht (Tab. 46- 53). Für Technetium liegen die Sorptionswerte i.A. in gleicher Größenordnung wie in den Versuchen mit dem gering mineralisierten Söhle-Wasser, während die Desorptionswerte bei geringerer Mineralisation abnahmen, d.h. mit abnehmender Mineralisation erfolgt eine größere Freisetzung.

Für Selen bewirkt die höhere Mineralisation allgemein eine Abnahme der Sorptionswerte. Zirkon weist eine vollständige Festlegung auf, während Niob mit zunehmender Mineralisation eine größere Mobilität erlangt.

Untersuchungsergebnisse zum Einfluß einer Veränderung des Volumen/Masse-Verhältnisses finden sich in den Tab. 54 - 57 und in den Abb. 16 u. 17. Während für das Technetium bei den Gesteinen der Oberkreide kein Einfluß zu erkennen ist, zeigt sich bei den Gesteinen des Grubengebäudes mit zunehmendem V/M-Verhältnis eine Abnahme der Adsorption. Für das

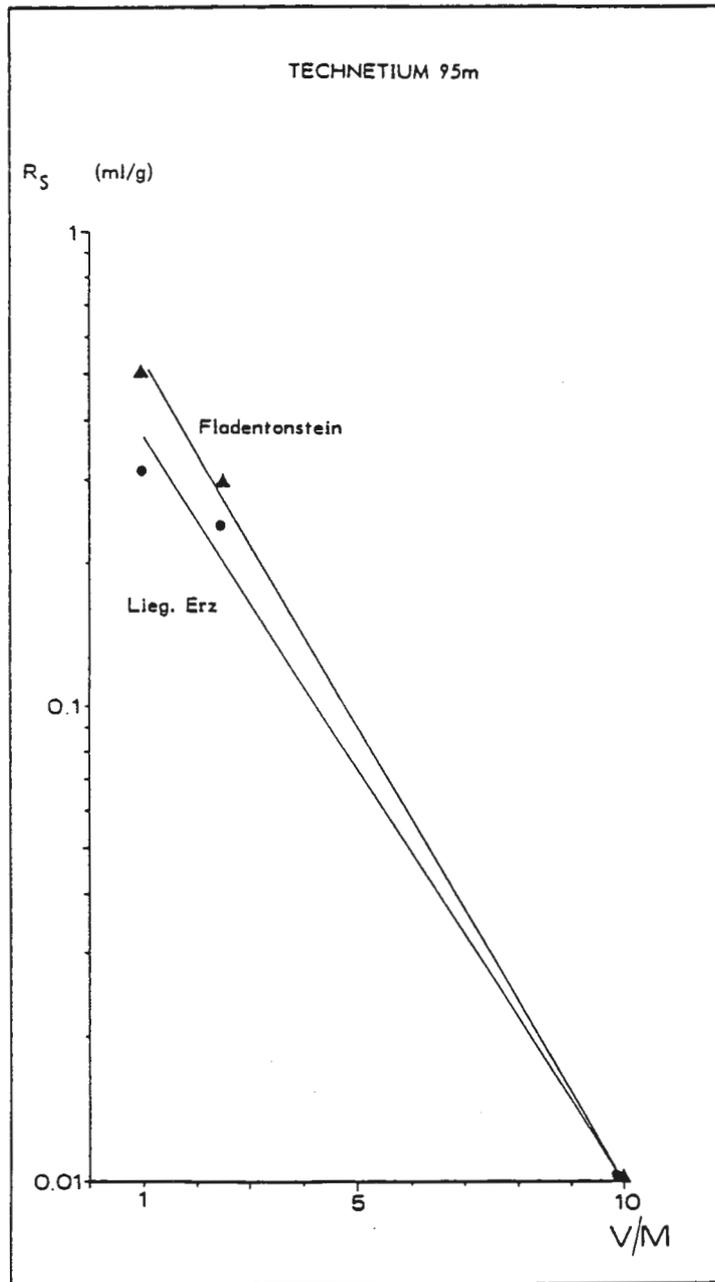


Abb. 16: Abhängigkeit der  $R_S$ -Werte vom  $V/M$ -Verhältnis für das Radionuklid Technetium; betrachtete Gesteine: Lieg. Erz, Fladentonstein; Wasser der Strecke 670.

Radionuklid Selen ist eine entgegengesetzte Entwicklung zu beobachten. Alle untersuchten Gesteine zeigen mit zunehmenden  $V/M$ -Verhältnis eine Zunahme der  $R_S$ -Werte (s. Abb. 17).

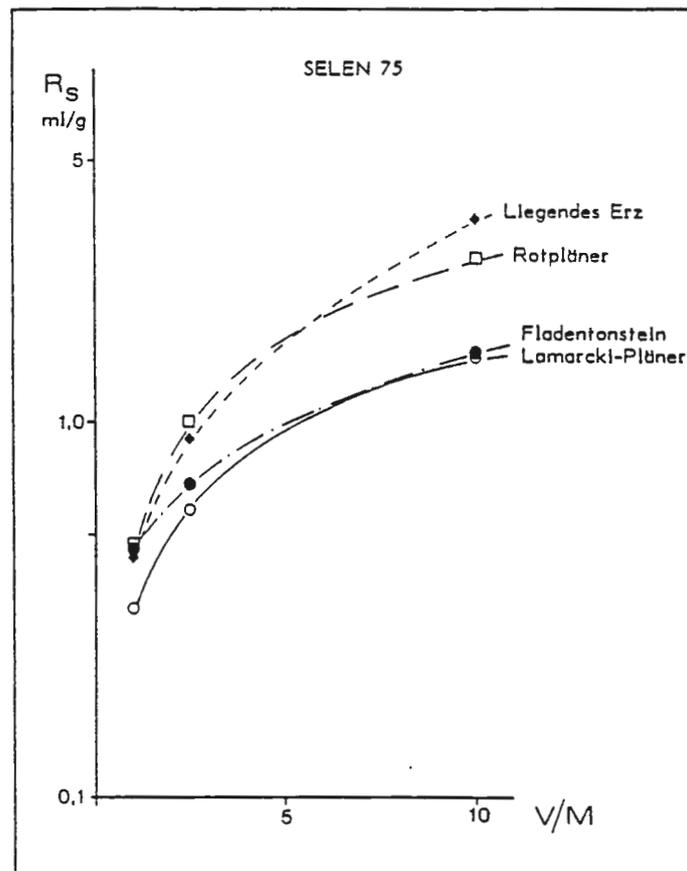


Abb. 17: Abhängigkeit der  $R_S$ -Werte vom  $V/M$ -Verhältnis für das Radionuklid Selen

In den Tab. 58 - 61 sind die Untersuchungsergebnisse für den Einfluß des Komplexbildners EDTA auf das Sorptionsverhalten der Radionuklide Zirkon, Niob und Zinn dargestellt. Während für Niob kein Einfluß erkennbar ist, kann für das Zirkon bei den Gesteinen des Grubengebäudes eine größere Mobilität beobachtet werden, die offensichtlich im Zusammenhang mit dem hochmineralisierten Wasser zu sehen ist. Die Gesteine des Kimmeridge, Erzkalke, Fladentonstein und Cornbrash zeigen gegenüber den anderen Gesteinen des Grubengebäudes eine geringere Festlegung und somit stärkere Komplexierung des Zirkons.

Das Sorptionsverhalten des Technetiums und Selens (Tab. 62-65) wird durch EDTA in dem untersuchten Konzentrationsbereich nicht beeinflusst.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. gr. Nukl. K	.09	0	.32	0
Rotpläner	" "	.71	0	.34	0
Kimmeridge	" "	.02	0	.4	0
Lieg Erz	" "	1.07	.21	0	0
Fladentonstein	" "	1.53	.59	.3	0

Tab. 40: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 2-6mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 2.96 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 332h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert gr. Nukl. K	.2	0	.17	0
Rotpläner	" "	.44	0	.18	0
Kimmeridge	" "	.07	0	.36	0
Lieg Erz	" "	.97	.06	.15	0
Fladentonstein	" "	1.32	.37	.6	0

Tab. 41: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und die Gesteine aus dem Grubengebäude mit Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 2-6mm, Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 2.96 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 332h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. pH < 7	.04	1.15	.66	1.83
Rotpläner	" "	.01	.58	1.43	5.91
Lieg. Erz	" "	.34	2.66	.85	3.13
Fladentonstein	" "	.6	3.86	.7	3.34

Tab. 42: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, eingestellt auf pH < 7; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert pH < 7	.07	1.08	.7	2.12
Rotpläner	" "	.06	1.28	1.59	6.68
Lieg. Erz	" "	.24	2.54	.67	2.91
Fladentonstein	" "	.33	2.71	.5	2.56

Tab. 43: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, eingestellt auf pH < 7; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. pH > 7	.01	.58	.51	1.78
Rotpläner	" "	.01	1.07	.5	3.16
Lieg. Erz	" "	.24	2.48	.5	2.32
Fladentonstein	" "	.63	4.39	.45	2.34

Tab. 44: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, eingestellt auf pH > 7; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert pH > 7	.14	1.76	.47	1.59
Rotpläner	" "	.01	.23	.35	2.63
Lieg. Erz	" "	.3	2.55	.59	2.46
Fladentonstein	" "	.55	4.21	.4	2.2

Tab. 45: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, eingestellt auf pH > 7; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. 670er unv	.01	.94	0	0
Rotpläner	" "	.01	.65	.45	2.71
Rhotomagensis-Pl.	" "	.24	1.88	.65	3.14
U/M Cenoman	" "	.03	1.07	.45	2.53

Tab. 46: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert 670er W.	.01	1.46	0	0
Rotpläner	" "	.01	1.14	.51	3.41
Rhotomagensis-Pl.	" "	.21	1.94	.74	3.59
U/M Cenoman	" "	.29	2.67	.68	4.09

Tab. 47: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. 670er W.	401	>1000	351	461	>1000	>1000
Rotpläner	" "	465	>1000	146	364	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	>1000	877	191	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	>1000	261	>1000	>1000	>1000

Tab. 48: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert 670erW.	147	> 1000	234	618	> 1000	> 1000
Rotpläner	" "	> 1000	> 1000	175	450	> 1000	> 1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	> 1000	> 1000	100	275	> 1000	> 1000
U/M Cenoman	" "	> 1000	> 1000	245	> 1000	> 1000	> 1000

Tab. 49: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. 670er 1:2	.01	.57	.15	.76
Rotpläner	" "	.09	.87	.15	.79
Rhotomagensis-Pl.	" "	.01	.38	.12	.67
U/M Cenoman	" "	.01	.41	.01	.45

Tab. 50: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670 - 1:2 verdünnt; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert 670W 1:2	.2	1.13	.27	1.13
Rotpläner	" "	.06	.89	.12	.79
Rhotomagensis-Pl.	" "	.14	1.03	.18	.98
U/M Cenoman	" "	.01	.49	.01	.46

Tab. 51: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670 - 1:2 verdünnt; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. 670er 1:2	>1000	>1000	110	>1000	>1000	>1000
Rotpläner	" "	>1000	>1000	86	>1000	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	>1000	727	>1000	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 52: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670 - 1:2 verdünnt; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert 670W 1:2	>1000	> 1000	211	>1000	>1000	>1000
Rotpläner	" "	>1000	> 1000	848	>1000	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	> 1000	935	>1000	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	> 1000	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 53: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit dem Wasser der Strecke 670 - 1:2 verdünnt; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 357h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. V/M = 1	.03	.53	.32	1.09
Rotpläner	" "	.01	.41	.47	2.66
Lieg. Erz	" "	.27	.85	.44	1.35
Fladentonstein	" "	.64	1.91	.46	1.26

Tab. 54: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Verhältnis Volumen/Masse = 1; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert V/M = 1	.01	.13	.29	.89
Rotpläner	" "	.01	.06	.51	2.07
Lieg. Erz	" "	.31	1.11	.4	1.32
Fladentonstein	" "	.5	2.01	.29	1.2

Tab. 55: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Verhältnis Volumen/Masse = 1; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. V/M=10	0	0	1.49	8.23
Rotpläner	" "	.11	3.13	2.71	11.7
Lieg. Erz	" "	.01	3.7	3.49	17.84
Fladentonstein	" "	.72	8.97	1.51	12.93

Tab. 56: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Verhältnis Volumen/Masse = 10; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 4.63 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert V/M = 10	0	0	2.08	9.62
Rotpläner	" "	.01	2.69	1.68	9.75
Lieg. Erz	" "	.01	4.85	2.34	16.66
Fladentonstein	" "	.01	4.23	1.72	14.16

Tab. 57: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Verhältnis Volumen/Masse = 10; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 4.63 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. EDTA	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Rotpläner	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 58: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser ; EDTA Konzentration: 10 E-3mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. EDTA	72.4	385.5	>1000	>1000	>1000	>1000
Hang. Erz	" " "	440.9	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Lieg. Erz	" " "	272	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Erzkalk-Serie	" " "	67.6	154.7	>1000	>1000	>1000	>1000
Fladentonstein	" " "	93.5	195.6	>1000	>1000	>1000	>1000
Heersumer Sch.	" " "	293.8	613.9	>1000	>1000	>1000	>1000
Cornbrash-Sdst.	" " "	17.1	97	>1000	>1000	>1000	>1000
Versatz-Material	" "	223.8	350.3	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 59: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; EDTA Konzentration: 10 E-3mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtr: EDTA	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Rotpläner	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 60: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser ; EDTA Konzentration: 10 E-3mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95		Sn-113	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert EDTA	75.6	443	>1000	> 1000	>1000	>1000
Hang. Erz	" "	385.3	>1000	>1000	> 1000	>1000	>1000
Lieg. Erz	" "	386	>1000	>1000	> 1000	>1000	>1000
Erzkalk-Serie	" "	67.6	166	>1000	> 1000	>1000	>1000
Fladentonstein	" "	89.4	213.8	>1000	> 1000	>1000	>1000
Heersumer Sch.	" "	354.1	496.9	>1000	> 1000	>1000	>1000
Cornbrash-Sdst.	" "	17.2	109.8	>1000	> 1000	>1000	>1000
Versatz-Material	" "	275.2	> 1000	>1000	> 1000	>1000	>1000

Tab. 61: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; EDTA Konzentration: 10 E-3mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95, Nb-95 und Sn-113: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. EDTA	0	0	0	0
Rotpläner	" "	0	0	.6	2.93
Rhotomagensis-Pl.	" "	.08	0	1	2.78
U/M Cenoman	" "	0	0	.43	8.69

Tab. 62: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser ; EDTA Konzentration: 10 E-3mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. EDTA	.32	1.61	.68	3.57
Hang. Erz	" "	.14	.46	.84	3.44
Lieg. Erz	" "	.26	.73	.55	2.43
Erzkalk-Serie	" "	.85	2.25	.1	1.41
Fladentonstein	" "	.4	.97	.54	3.37
Heersumer-Sch.	" "	1.62	1.68	.48	3.05
Cornbrash-Sdst.	" "	.42	.95	.59	3.52
Versatz-Material	" "	.23	.64	.59	2.24

Tab. 63: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; EDTA Konzentration: 10 E-3mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 : 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert EDTA	0	0	.53	1.72
Rotpläner	" "	0	0	.51	2.79
Rhotomagensis-Pl.	" "	.01	0	.89	2.87
U/M Cenoman	" "	0	0	.43	8.52

Tab. 64: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser ; EDTA Konzentration:  $10 \cdot 10^{-3}$  mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.08 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert EDTA	.13	.9	.58	3.5
Hang. Erz	" "	.23	.87	.41	1.78
Lieg. Erz	" "	.21	.6	.82	3.44
Erzkalk-Serie	" "	.85	1.97	.16	1.8
Fladentonstein	" "	.43	1.1	.62	3.38
Heersumer-Sch.	" "	1.9	2	.76	3.81
Cornbrash-Sdst.	" "	.51	1.37	.59	4.04
Versatz-Material	" "	.14	.49	.66	2.63

Tab. 65: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; EDTA Konzentration:  $10 \cdot 10^{-3}$  mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75 :  $3.08 \cdot 10^5$  Bq/l; Schüttelzeit 330h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Die Tab. 66-69 und Tab. 70-73 zeigen die Untersuchungsergebnisse nach Zugabe einer waschaktiven Substanz (Alkylbenzosulfonat; 5 bzw. 50 ppm). Es läßt sich keine Beeinflussung erkennen. Dies gilt gleichfalls für die Radionuklide Zirkon und Niob (Tab. 74-77).

Schüttelversuchsergebnisse nach Zugabe von Zitronensäure sind in den Tab. 78-81 dargestellt. Mit Ausnahme einer allgemein geringeren Festlegung des Radionuklids Selen in den Gesteinen der Oberkreide kann kein signifikanter Einfluß erkannt werden.

Tab. 82-87 zeigen den Einfluß einer Variation der Versuchstemperaturen. Während Zirkon und Niob keine Beeinflussung erkennen lassen, tritt beim Selen bei höheren Temperaturen eine deutlich höhere Festlegung hervor. Das Sorptionsverhalten des Radionuklids Technetium zeigt mit Ausnahme des Fladentonsteins, bei dem gleichfalls ein Ansteigen der Sorptionswerte zu beobachten ist, keine Beeinflussung.

In den Tab. 88-91 sind die Untersuchungsergebnisse der Experimente mit unterschiedlichen Karbonatgehalten aufgeführt.

Die Resultate unterschiedlicher Selen-Trägerung finden sich in Tab. 92-95.

Die hohen  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte für das Radionuklid Selen in den Tab. 82-85 und 88-95 bedürfen bezüglich der Trägerung einer Überprüfung.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. waschakt.	0	0	.4	0
Rotpläner	" "	0	0	.72	.4
Rhotomagensis-Pl.	" "	0	0	.5	0
U/M Cenoman	" "	.11	.06	.5	0
Quartär, sandig	" "	.48	1.78	.67	4.6
Quartär, bindig	" "	1.87	5.47	.59	5.72

Tab. 66: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartär mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 50 mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. waschak.	.01	.17	.26	.21
Hang. Erz	" "	.09	.47	.79	.59
Lieg. Erz	" "	.5	1.24	.96	.58
Erzkalk-Serie	" "	1.12	2.59	.63	.77
Fladentonstein	" "	.77	2.15	.62	.91
Heersumer-Sch.	" "	2.12	2.05	.68	.56
Cornbrash-Sdst.	" "	.83	2.3	.54	.43
Versatz-Material	" "	.02	.64	.68	.53

Tab. 67: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 50mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert wascha. S.	0	0	.32	0
Rotpläner	" "	0	0	.65	.4
Rhotomagensis-Pl.	" "	.12	.19	.55	0
U/M Cenoman	" "	.03	0	.54	0
Quartär, sandig	" "	.4	4.9	.52	4.21
Quartär, bindig	" "	1.84	5.47	.65	5.5

Tab. 68: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartär mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 50 mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert waschakt.	.01	.55	.34	.63
Hang. Erz	" "	.18	1.25	.57	.56
Lieg. Erz	" "	.36	2.29	.65	1.49
Erzkalk-Serie	" "	1.19	2.8	.58	.52
Fladentonstein	" "	.9	2.36	.44	.23
Heersumer-Sch.	" "	2.41	2.52	.59	.44
Cornbrash-Sdst.	" "	1.33	4.08	.58	.73
Versatz-Material	" "	.23	1.62	.97	5.67

Tab. 69: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat in einer Konzentration: 50mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. waschakt. Subst.	0	0	0.34	2.86
Rotpläner	" "	0	0.18	0.61	6.74
Rhotomagensis-Pl.	" "	0	0.03	0.52	3.71
U/M Cenoman	" "	0.19	0.78	1.84	7.97
Quartär, sandig	" "	0.08	0.72	0.65	5.55
Quartär, bindig	" "	2.15	5.2	5.39	391

Tab. 70: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartär mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat, Konzentration: 5mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. waschakt. Subst.	0.36	2.13	0.46	4.38
Hang. Erz	" "	0	0.29	0.71	4.88
Lieg. Erz	" "	0.14	0.76	0.52	4.13
Erzkalk-Serie	" "	1.04	3.54	0.33	4.26
Fladentonstein	" "	0.75	2.15	0.67	5.11
Heersumer-Sch.	" "	1.71	2.25	0.44	3.95
Versatz-Material	" "	0.21	0.34	0.35	2.67

Tab. 71: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat, Konzentration: 5mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert waschakt. Subst.	0	0.12	0.53	3.41
Rotpläner	" "	0	0	0.45	5.83
Rhotomagensis-Pl.	" "	0	0	0.49	3.43
U/M Cenoman	" "	0.28	1.06	1.85	7.72
Quartär, sandig	" "	0.28	1.06	0.85	5.99
Quartär, bindig	" "	2.39	5.97	4.98	358

Tab. 72: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartär mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat, Konzentration: 5mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert waschakt. Subst.	0.32	1.91	0.4	4.34
Hang. Erz	" "	0.11	0.94	0.79	5.6
Lieg. Erz	" "	0.23	1.47	0.79	6.06
Erzkalk-Serie	" "	1.03	3.78	0.39	4.08
Fladentonstein	" "	0.62	1.99	0.67	5.63
Heersumer-Sch.	" "	1.66	2.38	0.33	3.99
Versatz-Material	" "	0.18	1.09	0.18	2.2

Tab. 73: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat, Konzentration: 5mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. waschakt. Subst.	>1000	>1000	>1000	>1000
Rotpläner	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Quartär, sandig	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Quartär, bindig	" "	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 74: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartär mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat, Konzentration: 5mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. waschakt. Subst.	>1000	>1000	>1000	>1000
Hang. Erz	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Lieg. Erz	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Erzkalk-Serie	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Fladentonstein	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Heersumer-Sch.	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Versatz-Material	" "	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 75: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat, Konzentration: 5mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert waschakt. Subst.	>1000	>1000	>1000	>1000
Rotpläner	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Rhotomagensis-Pl.	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
U/M Cenoman	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Quartär, sandig	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Quartär, bindig	" "	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 76: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartär mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat, Konzentration: 5mg/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert waschakt. Subst.	>1000	>1000	>1000	>1000
Hang. Erz	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Lieg. Erz	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Erzkalk-Serie	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Fladentonstein	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Heersumer-Sch.	" "	>1000	>1000	>1000	>1000
Versatz-Material	" "	>1000	>1000	>1000	>1000

Tab. 77: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von 1-Alkylbenzosulfonat, Konzentration: 5mg/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 331h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. Zitron. S.	0.63	2.38	0.22	1.07
Rotpläner	" "	0	0	0.82	4.18
Rhotomagensis-Pl.	" "	0	0	0.25	1.32
U/M Cenoman	" "	0.02	0.34	0.3	3.99
Quartär, sandig	" "	1.26	3.5	0.93	3.12
Quartär, bindig	" "	6.1	9.78	5.8	21.8

Tab. 78: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartär mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von Citronensäure, Konzentration: 8.3 E-7 mol/l; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 338h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. Zitron. S.	0.51	2.96	0.57	3
Hang. Erz	" "	0.46	1.94	0.68	2.44
Lieg. Erz	" "	0	0.09	0.59	2.41
Erzkalk-Serie	" "	1.48	3.55	0.49	2.29
Fladentonstein	" "	0.45	0.86	0.56	2.73
Heersumer-Sch.	" "	2.1	2.82	0.49	2.35
Versatz-Material	" "	0.15	0.88	0.56	1.99

Tab. 79: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von Citronensäure, Konzentration: 8.3 E-7 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 338h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert Zitron. S.	0.89	2.66	0.32	1.04
Rotpläner	" "	0	0	0.56	3.07
Rhotomagensis-Pl.	" "	0	0	0.19	0.93
U/M Cenoman	" "	0.08	0.49	0.29	3.89
Quartär, sandig	" "	1.35	3.6	0.89	2.79
Quartär, bindig	" "	6.08	10	5.47	20

Tab. 80: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine der Oberkreide/des Quartär mit Söhle-Wasser/Quartärwasser; Zugabe von Citronensäure, Konzentration:  $8.3 \text{ E-}7 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion Oberkreide 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 338h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert Zitron. S.	0.56	3.18	0.54	2.74
Hang. Erz	" "	0.47	2.58	0.8	3.37
Lieg. Erz	" "	0	0.03	0.68	2.5
Erzkalk-Serie	" "	1.33	3.5	0.5	2.72
Fladentonstein	" "	0.47	0.82	0.42	2.13
Heersumer-Sch.	" "	2.13	3.4	0.63	3.2
Versatz-Material	" "	0.11	1.04	0.66	2.76

Tab. 81: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Grubengesteine mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von Citronensäure, Konzentration:  $8.3 \text{ E-}7 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 338h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. Temp. Var. 35°C	0	0.23	16.43	35
Lieg. Erz	" "	0.03	1.13	22.9	49.7
Fladentonstein	" "	0.24	1.85	11.1	30.2
Heersumer Sch.	" "	0.6	1.55	25.8	60.8

Tab. 82: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur 35°C; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 345h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert Temp. Var. 35°C	0	0.59	17.2	37.3
Lieg. Erz	" "	0.15	2.96	24.4	65.1
Fladentonstein	" "	0.27	2.44	11.3	35
Heersumer Sch.	" "	0.56	1.76	24.8	63

Tab. 83: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur 35°C; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 345h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. Temp. Var. 50°C	0	0.17	11	16.9
Lieg. Erz	" "	0.12	1.08	18.2	20.5
Fladentonstein	" "	10.4	520	14.1	40.4
Heersumer Sch.	" "	1.22	1.91	15.3	24

Tab. 84: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur 50°C; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 343h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert Temp. Var. 50°C	0	0.26	10.7	17
Lieg. Erz	" "	0.21	1.4	18.8	20.5
Fladentonstein	" "	9.81	473	14	42.1
Heersumer Sch.	" "	1.08	2.27	14.4	26.7

Tab. 85: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur 50°C; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 343h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	unfiltr. Temp.Var. 50°C	> 1000	> 1000	> 1000	> 1000
Lieg. Erz	" "	> 1000	> 1000	> 1000	> 1000
Fladentonstein	" "	> 1000	> 1000	> 1000	> 1000
Heersumer Sch.	" "	> 1000	> 1000	> 1000	> 1000

Tab. 86: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur 50°C; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 343h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Zr-95		Nb-95	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Kimmeridge	filtriert Temp.Var. 50°C	> 1000	>1000	>1000	> 1000
Lieg. Erz	" "	> 1000	>1000	>1000	> 1000
Fladentonstein	" "	> 1000	>1000	>1000	> 1000
Heersumer Sch.	" "	>1000	>1000	>1000	> 1000

Tab. 87: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für die Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670, Versuchstemperatur 50°C; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Zr-95 und Nb-95: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 343h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> -Z. E-6 m/l	0.2	0.65	19.6	32.8
Rotpläner	" "	0.21	0.5	12.9	21.5
Lieg. Erz	" "	0	0.3	31.3	58.2
Fladentonstein	" "	0	0	24.5	46.2

Tab. 88: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Konzentration: 10 E-6 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> -Z. E-6 m/l	0.26	0.76	20	34.1
Rotpläner	" "	0.23	0.67	14.5	24.6
Lieg. Erz	" "	0.11	1.06	31	67.5
Fladentonstein	" "	0	0	24.1	45.5

Tab. 89: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Konzentration: 10 E-6 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> -Z. E=3 m/l	0	0	18.8	32
Rotpläner	" "	0	0.02	15.2	27.7
Lieg. Erz	" "	0.28	1.02	21.8	46.8
Fladentonstein	" "	0.3	0.72	16.6	32.8

Tab. 90: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Tc-95m		Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>	R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert Na <sub>2</sub> CO <sub>3</sub> -Z. E=3 m/l	0	0	18	32.5
Rotpläner	" "	0.02	0	15	27.4
Lieg. Erz	" "	0.37	1.12	22.8	48.3
Fladentonstein	" "	0.26	0.64	16.3	35.7

Tab. 91: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Zugabe von Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>, Konzentration: 10 E-3 mol/l; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75: 3.08 E 5 Bq/l; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	unfiltr. Trägerung E-8 m/l	19.3	26.8
Rotpläner	" "	18.2	24.9
Lieg. Erz	" "	29.8	41.2
Fladentonstein	" "	22.7	40.3

Tab. 92: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Trägerung mit  $\text{Na}_2\text{SeO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , Konzentration:  $10 \text{ E-}8 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Se-75	
		R <sub>S</sub>	R <sub>D</sub>
Lamarcki-Pläner	filtriert Trägerung E-8 m/l	18.3	22.4
Rotpläner	" "	19.8	24.4
Lieg. Erz	" "	29.7	41.8
Fladentonstein	" "	23.2	46.6

Tab. 93: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhle-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Trägerung mit  $\text{Na}_2\text{SeO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , Konzentration:  $10 \text{ E-}8 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Se-75	
		$R_S$	$R_D$
Lamarcki-Pläner	unfiltr. Trägerung E-5 m/l	16.2	24.4
Rotpläner	" "	24.9	42.1
Lieg. Erz	" "	29.7	54.4
Fladentonstein	" "	38.8	49.6

Tab. 94: Sorptions-/Desorptionswerte (unfiltriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Trägerung mit  $\text{Na}_2\text{SeO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , Konzentration:  $10 \text{ E-}5 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

Gestein/Nuklid	Behandl.	Se-75	
		$R_S$	$R_D$
Lamarcki-Pläner	filtriert Trägerung E-5 m/l	16.4	22.1
Rotpläner	" "	23.4	36.2
Lieg. Erz	" "	29.7	80.6
Fladentonstein	" "	22.7	51.2

Tab. 95: Sorptions-/Desorptionswerte (filtriert) für Gesteine der Oberkreide mit Söhlde-Wasser und Gesteine aus dem Grubengebäude mit dem Wasser der Strecke 670; Trägerung mit  $\text{Na}_2\text{SeO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ , Konzentration:  $10 \text{ E-}5 \text{ mol/l}$ ; Kornfraktion 0.2-2mm; Aufgabeaktivität der Radionuklide Tc-95m und Se-75:  $3.08 \text{ E } 5 \text{ Bq/l}$ ; Schüttelzeit 336h; Mittelwerte aus 3 Messungen.

## 5.2. Durchlaufsäulenversuche

Das als idealer Tracer verwendete tritierte Wasser zeigte nicht das erwartete Verhalten. Insbesondere bei den Versuchsanordnungen Untertage-Gestein/salinare Wasser der Strecke 670 und den Gesteinen der Oberkreide (Fraktion 20-6 mm)/Süßwasser wurde das Tritium verzögert. Daraufhin wurde ein zweiter Versuchslauf an allen Säulen mit Br-77/Cr-51-EDTA als idealem Tracer durchgeführt. Cr-51-EDTA erwies sich als ungeeignet, Br-77 zeigte jedoch gute Ergebnisse.

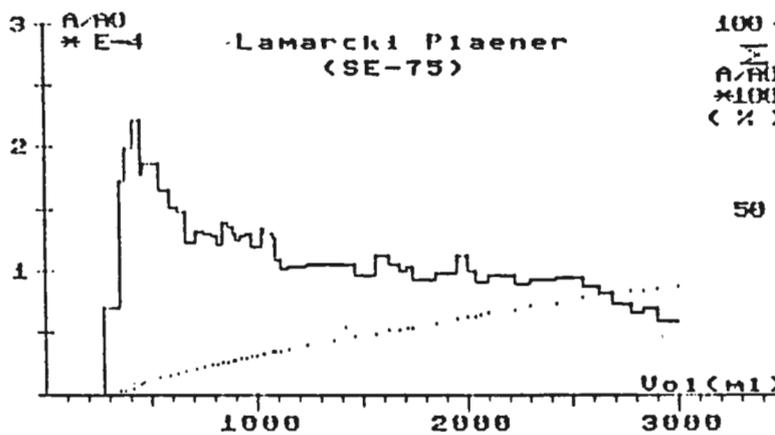
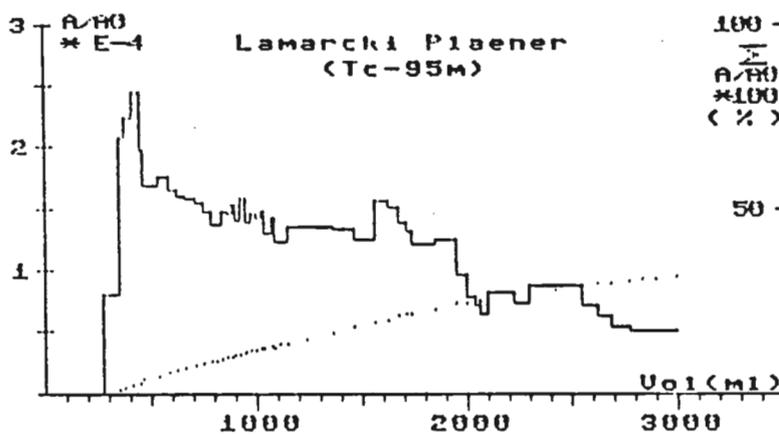
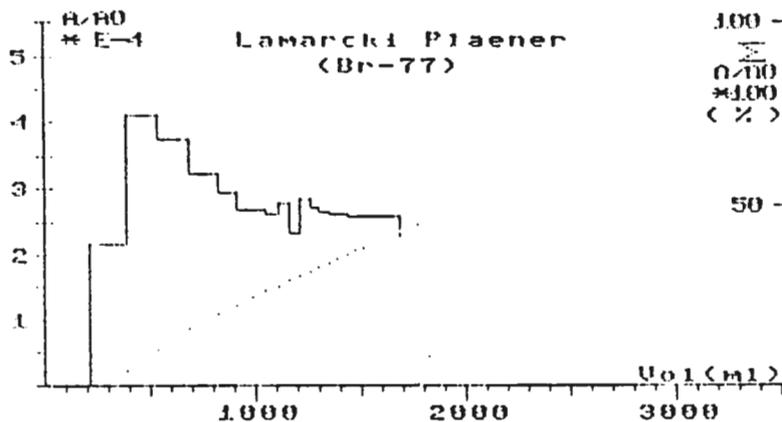
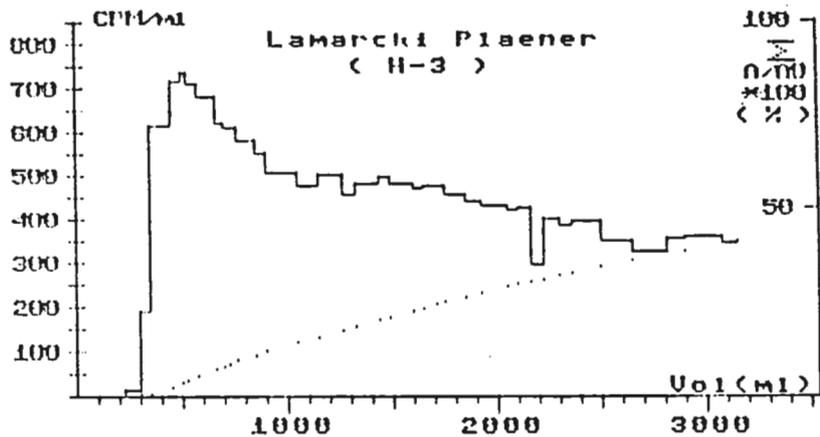
Teils bestätigte der Versuch mit Br-77 die Ergebnisse des Tritium-Durchlaufs, zum anderen Teil brach das Br-77 deutlich früher durch. Dies gilt besonders für die Gesteine aus dem Grubengebäude (vgl. Abb.28 und Abb.34).

Die Auswahl des Referenztracers geschah nach Vergleich der Durchbruchskurven von H-3 und Br-77.

Die errechneten Parameter aus den Vorversuchen mit idealen Tracern sind in der Tab. 96, die Retardationsfaktoren und  $K_D$ -Werte für Technetium und Selen in der Tab. 97 aufgeführt.

Bei den Oberkreide-Gesteinen fallen die geringen Wiedererhalte von Selen sowohl bei der Fraktion 20-6mm als auch bei der Fraktion 6-2mm für die Gesteine Rotpläner und U/M Cenoman ins Auge (vgl. Durchlaufskurven Abb. 18-25). Eine Zerlegung aller Säulen mit hohen Sorptionsraten für Selen konnte aus zeitlichen Gründen nicht erfolgen. Höhere  $R_f$ - und  $K_D$ -Werte müssen jedoch angenommen werden, wie das Beispiel Rotpläner Fraktion 6-2 mm (Abb. 47) zeigt. Diese Säule wurde als Vergleich zu den Säulen mit Untertage-Proben herangezogen, in denen das Technetium festgelegt wurde.

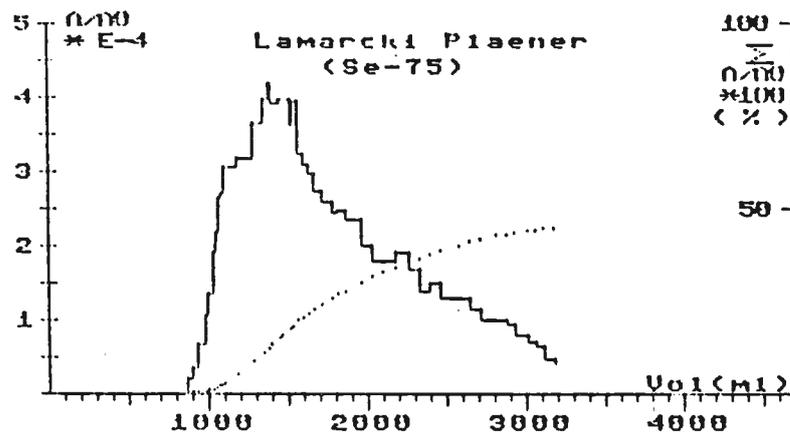
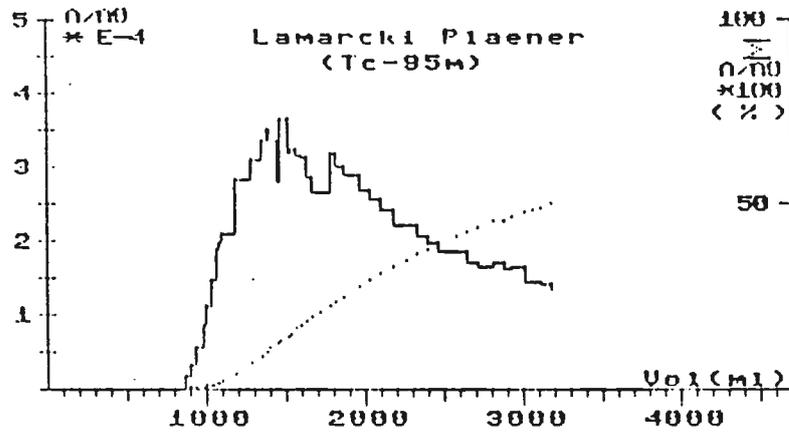
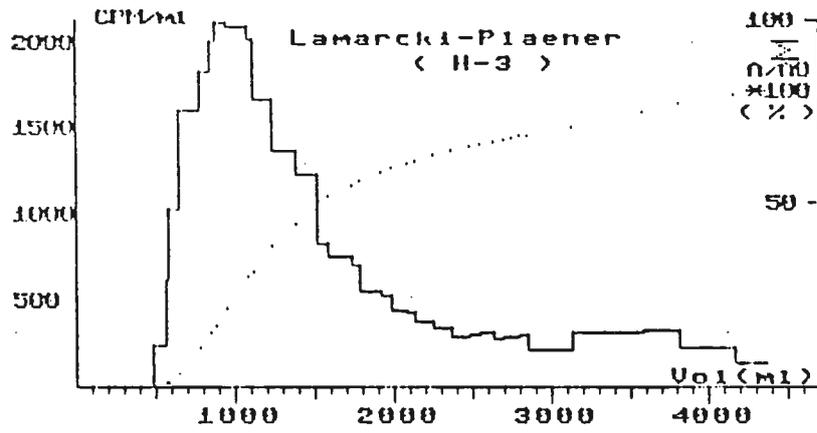
Das unterschiedliche Sorptionsverhalten der Gesteine aus der Kreideformation läßt einen Zusammenhang mit deren jeweiliger spezifischer Oberfläche (BET) erkennen: eine höhere spezifische Oberfläche (innere Oberfläche) bewirkt höhere Festlegung des Selens.



2 4 6  $v/v_{eff}$

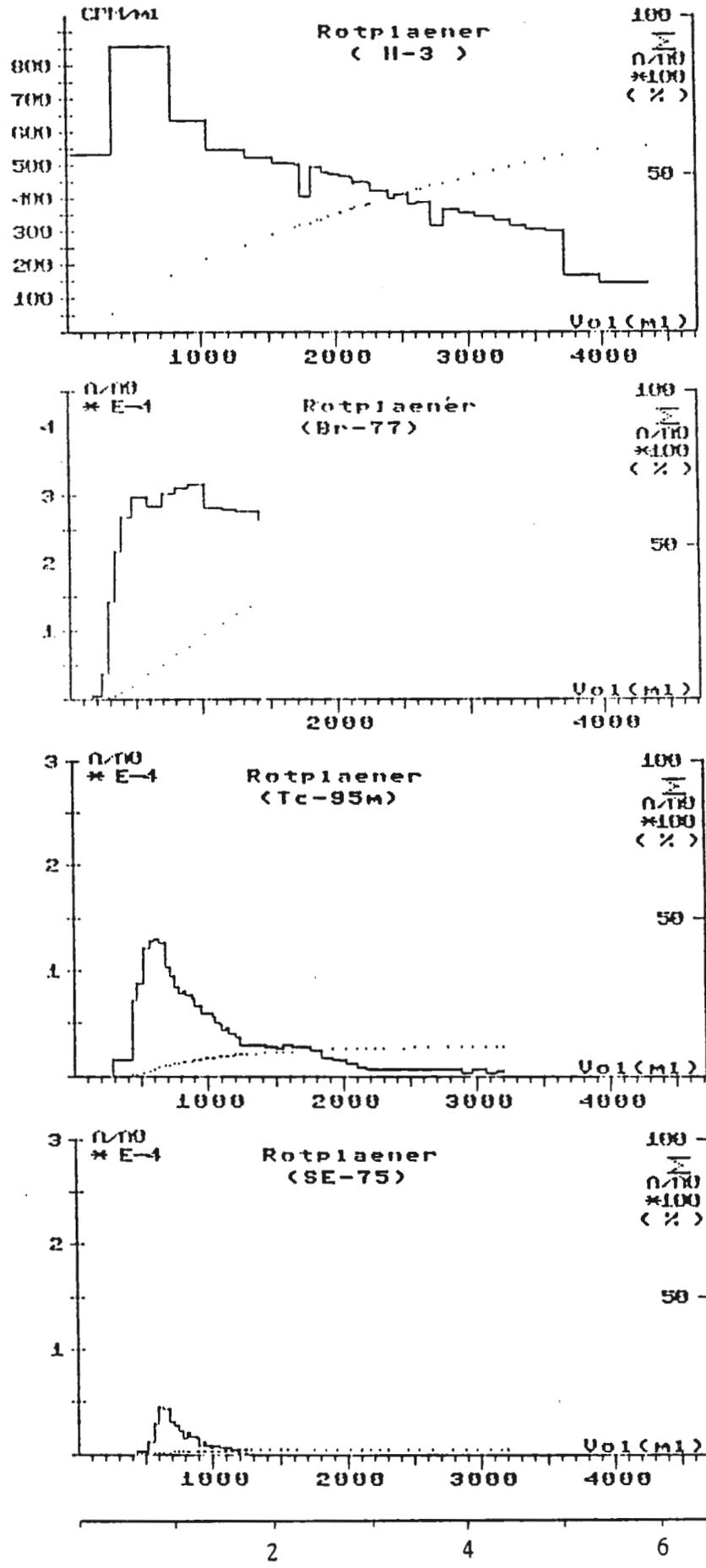
(Br-77)

Abb. 18: Durchlaufsäule Lamarcki-Pläner, Fraktion 20-6 mm, Söhle-Wasser, Säulenlänge 100 cm.



2 4 6  $V/V_{eff}$

Abb. 19: Durchlaufsäule Lamarcki Pläner, Fraktion 6-2 mm, Söhle-Wasser, Säulenlänge 50 cm.



$V/V_{eff}$

(Br-77)

Abb. 20: Durchlaufsäule Rotpläner, Fraktion 20-6 mm, Söhle-Wasser, Säulenlänge 100 cm.

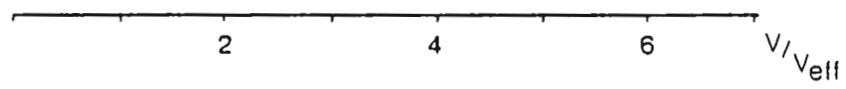
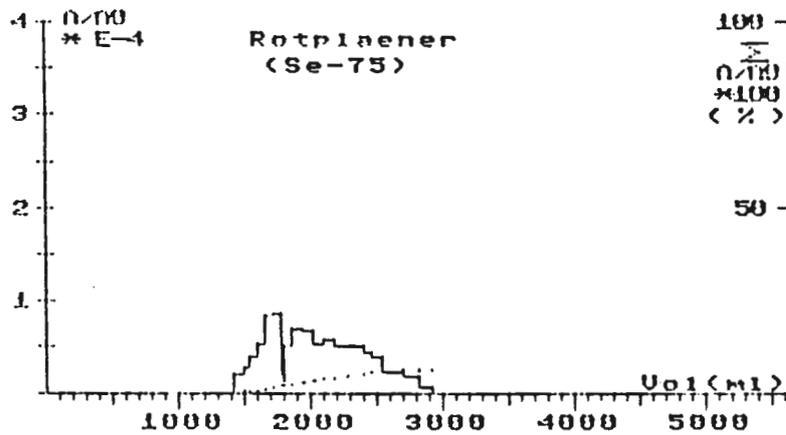
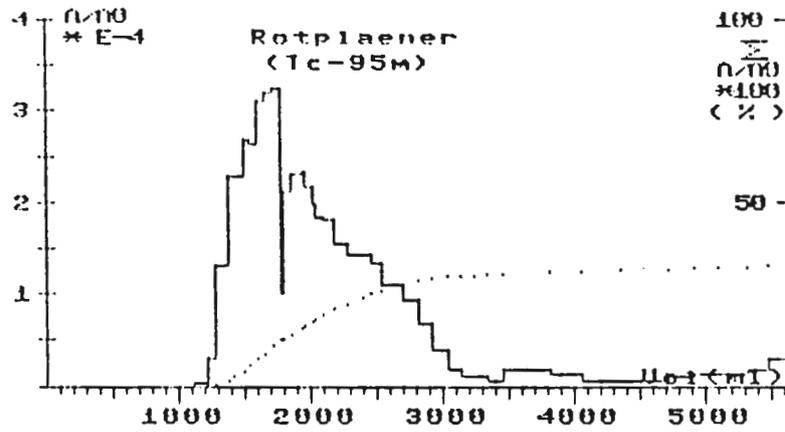
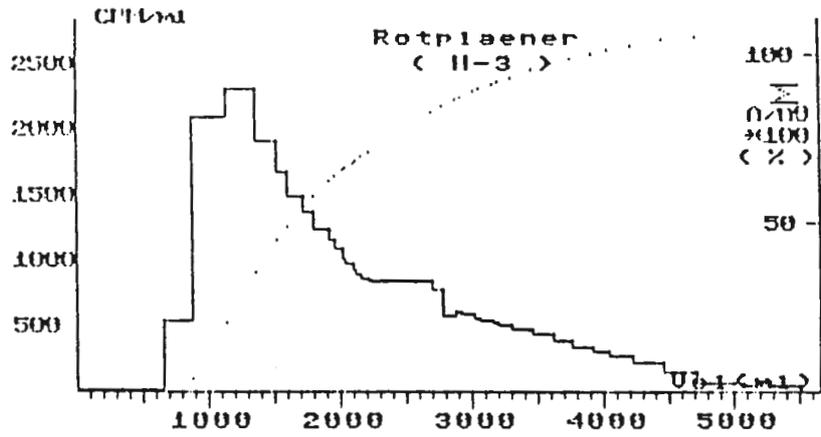


Abb. 21: Durchlaufsäule Rotpläner, Fraktion 6-2 mm, Söhde-Wasser, Säulenlänge 50 cm.



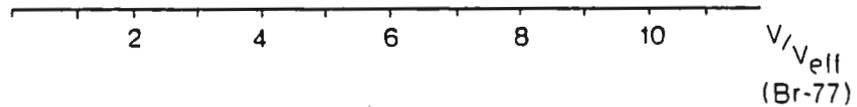
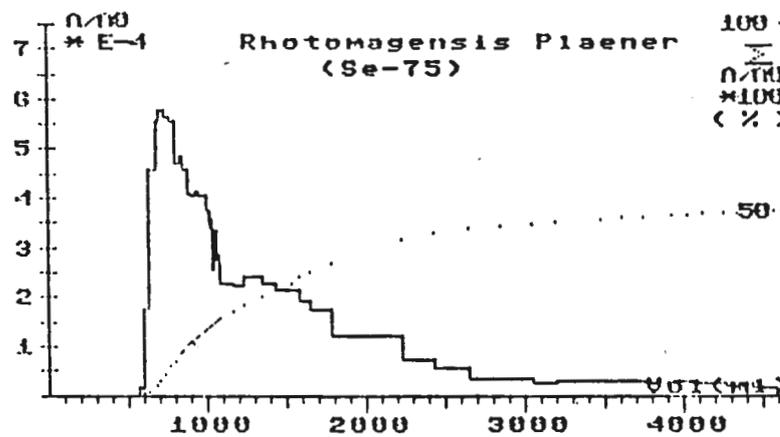
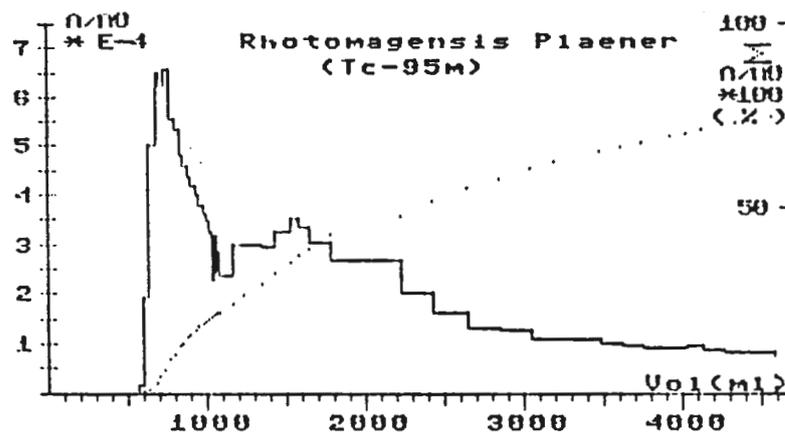
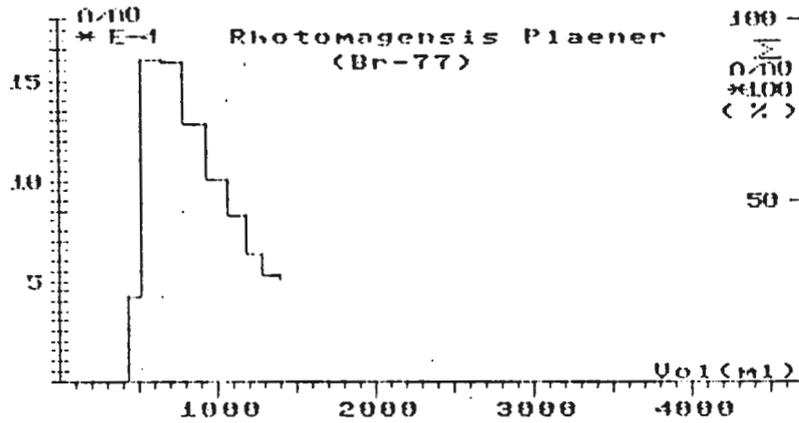
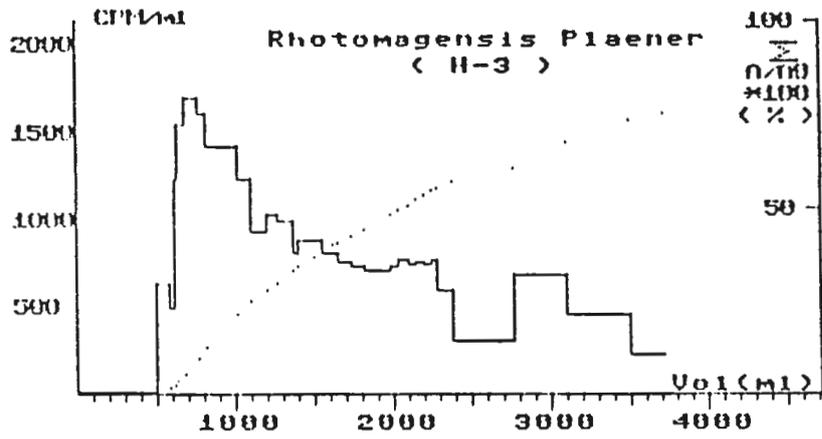


Abb. 23: Durchlaufsäule Rhotomagensis Pläner, Fraktion 6 - 2 mm, Söhlide-Wasser, Säulenlänge 50 cm.

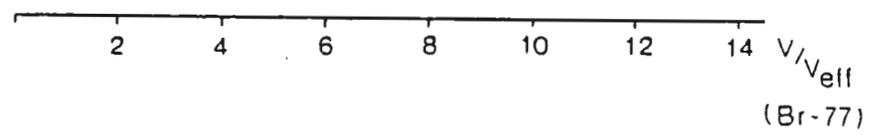
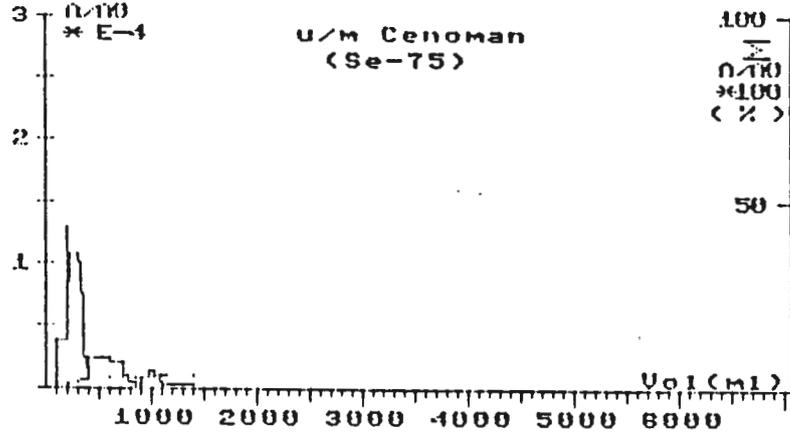
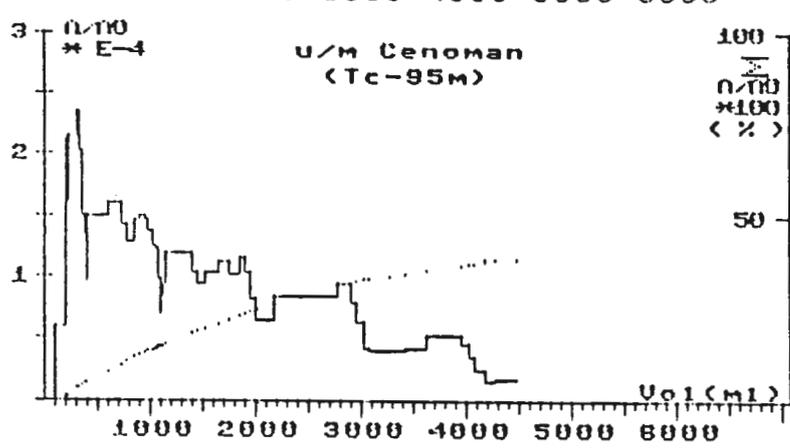
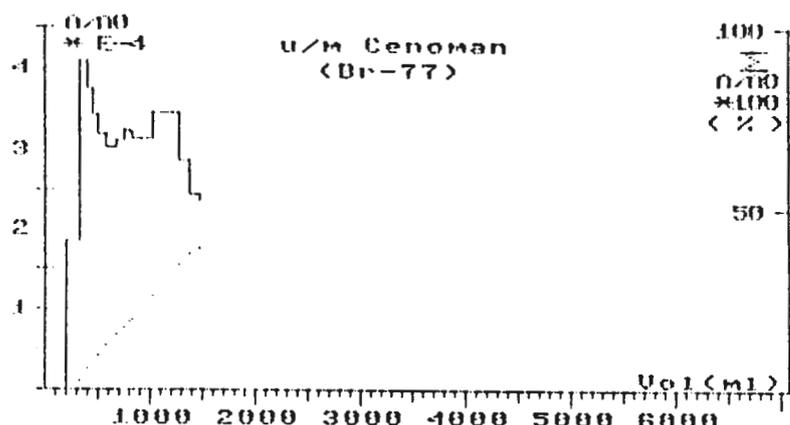
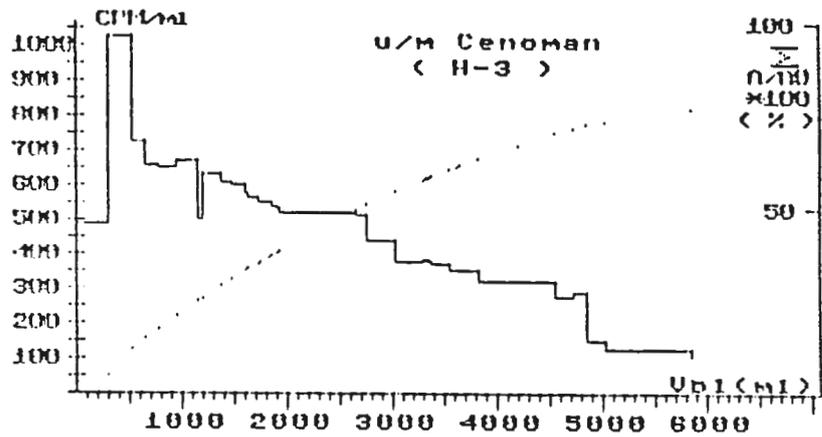


Abb. 24: Durchlaufsäule u/m Cenoman, Fraktion 20 - 6 mm, Söhle-Wasser, Säulenlänge 100 cm.

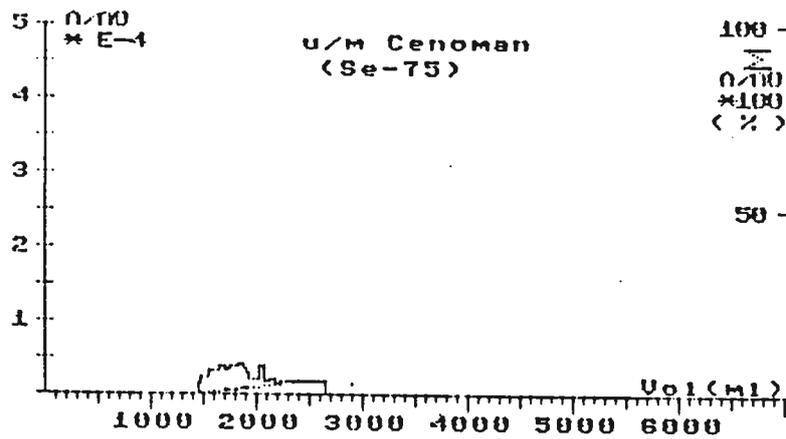
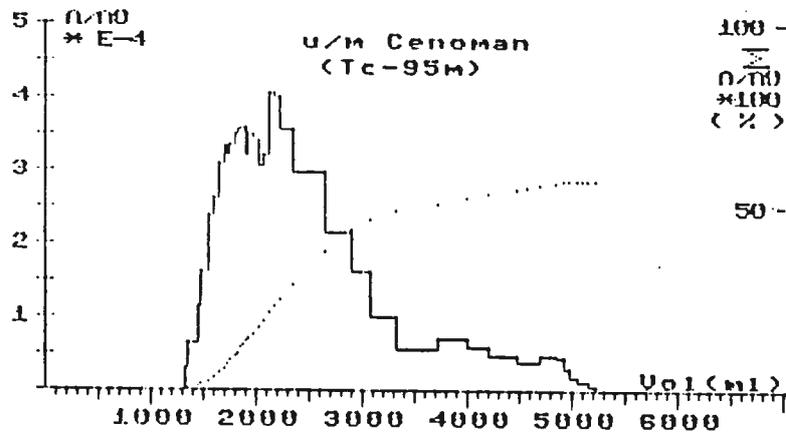
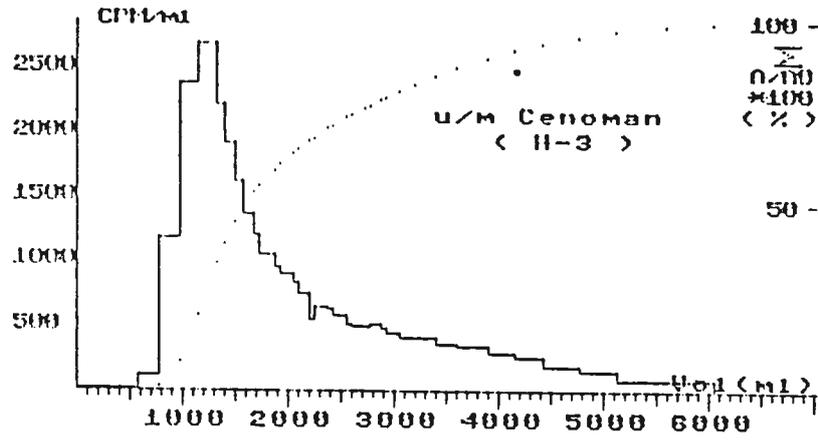
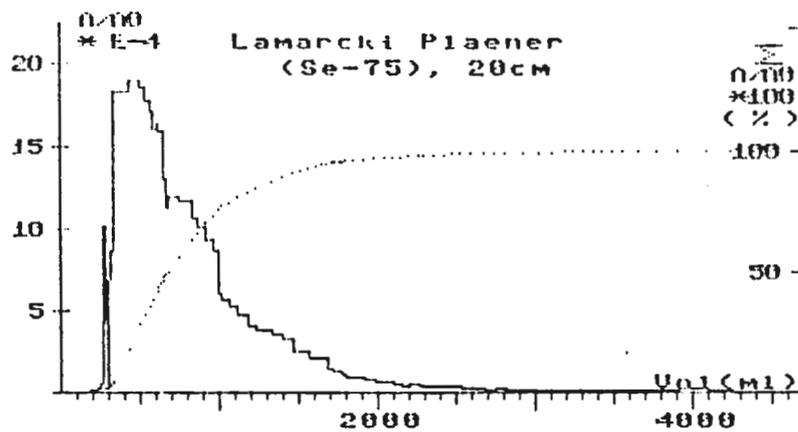
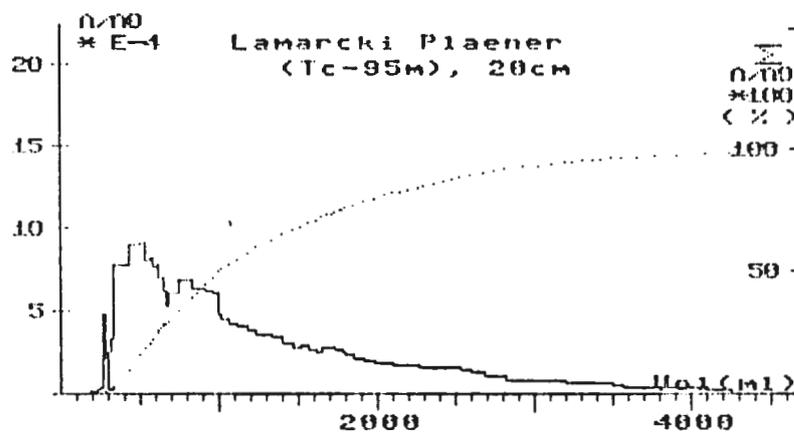
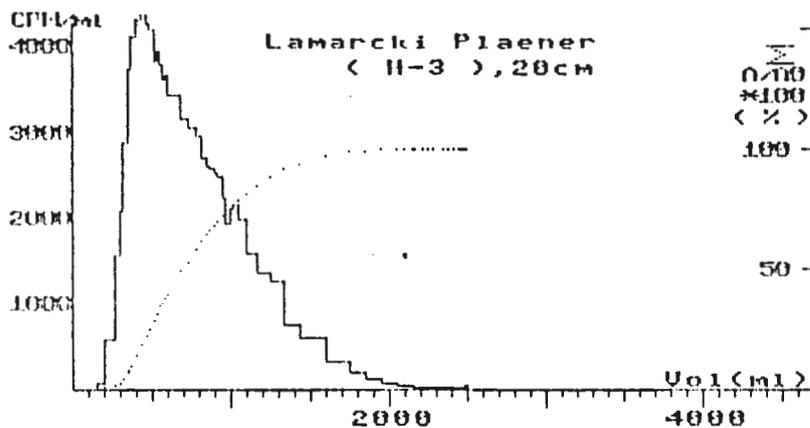


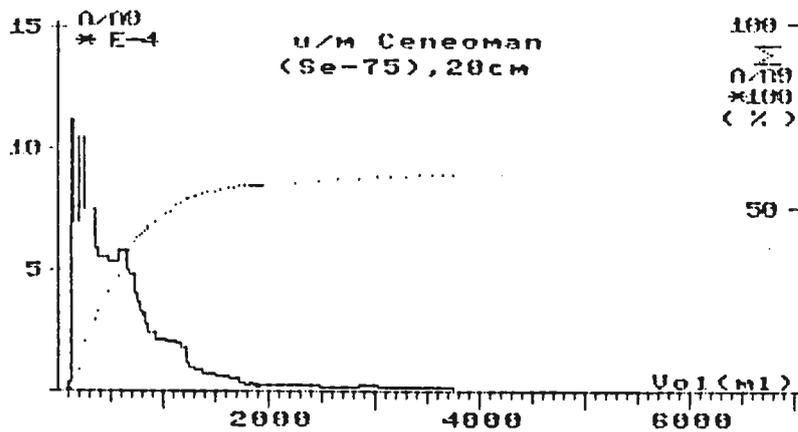
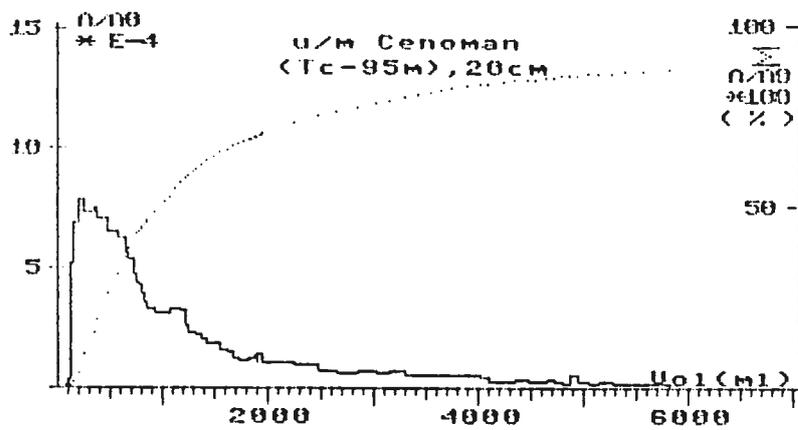
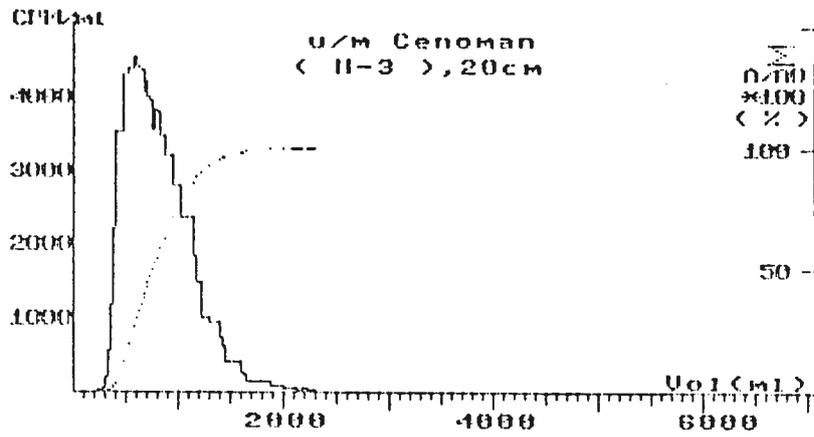
Abb. 25: Durchlaufsäule u/m Cenoman, Fraktion 6 - 2 mm, Söhlde-Wasser, Säulenlänge 50 cm.

V/Veff



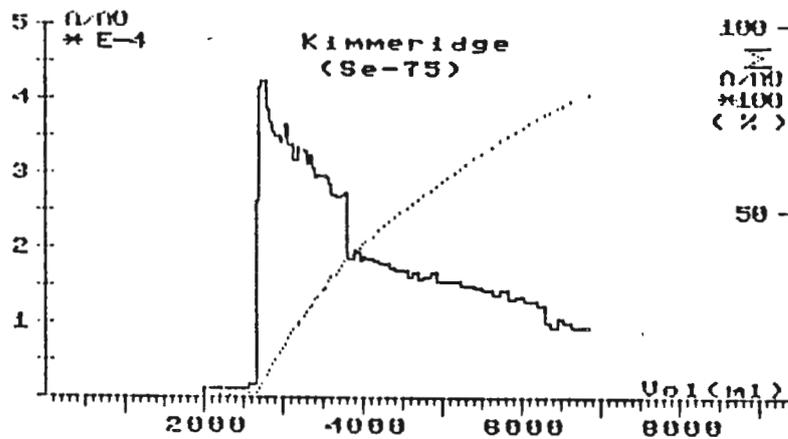
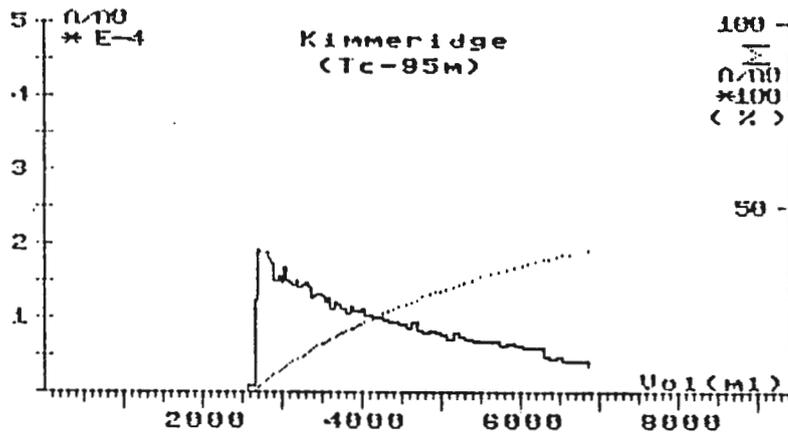
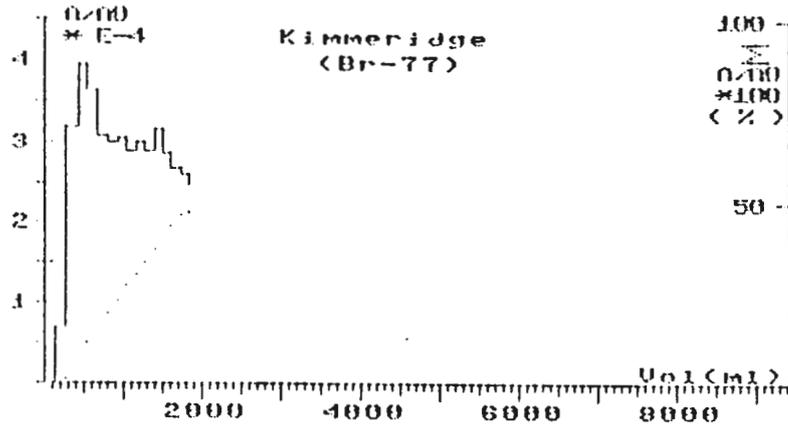
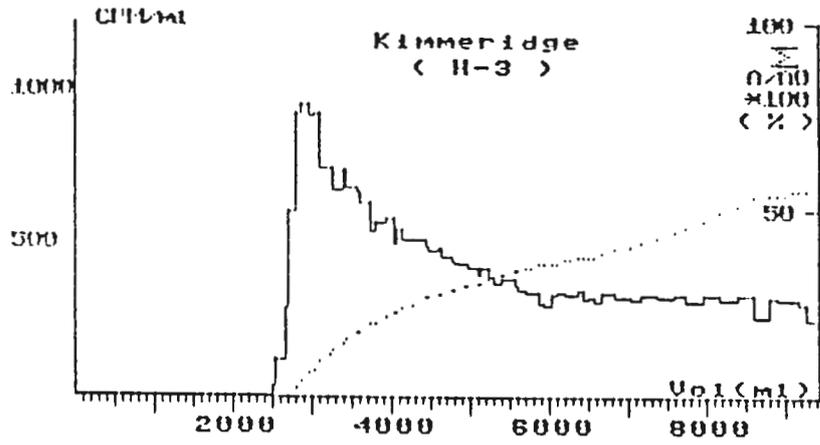
2 4 6 8 10 12 V/V<sub>eff</sub>

Abb. 26: Durchlaufsäule Lamarcki Pläner, Fraktion 6 - 2 mm, Söhde-Wasser, Säulenlänge 20 cm.



5 10 15  $V/V_{eff}$

Abb. 27: Durchlaufsäule u/m Cenoman, Fraktion 6 - 2 mm, Söhle-Wasser, Säulenlänge 20 cm.



5 10 15 20

$V/V_{eff}$   
(Br-77)

Abb. 28: Durchlaufsäule Kimmeridge, Fraktion 20 -6 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 100 cm.

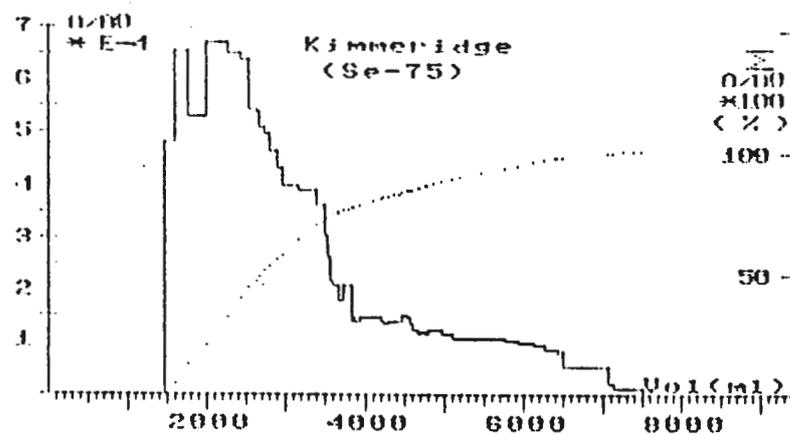
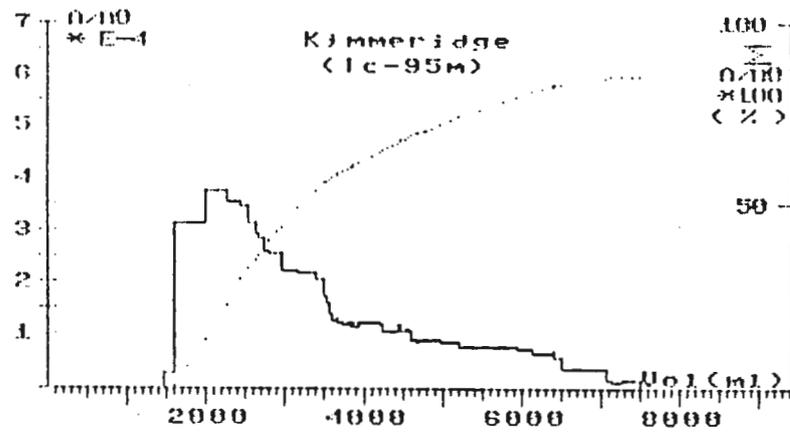
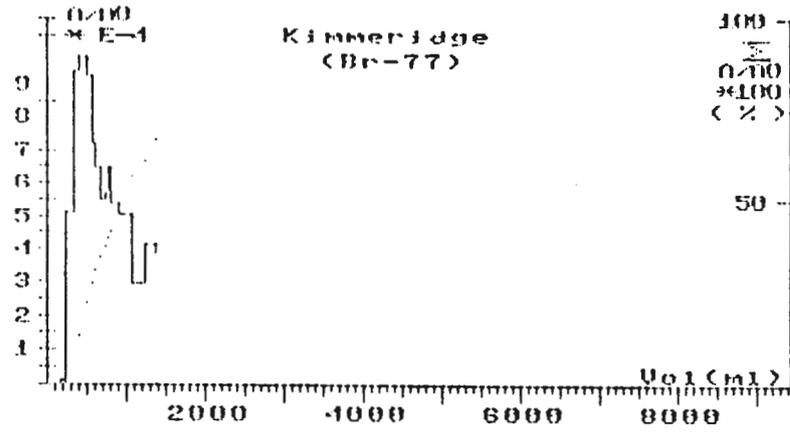
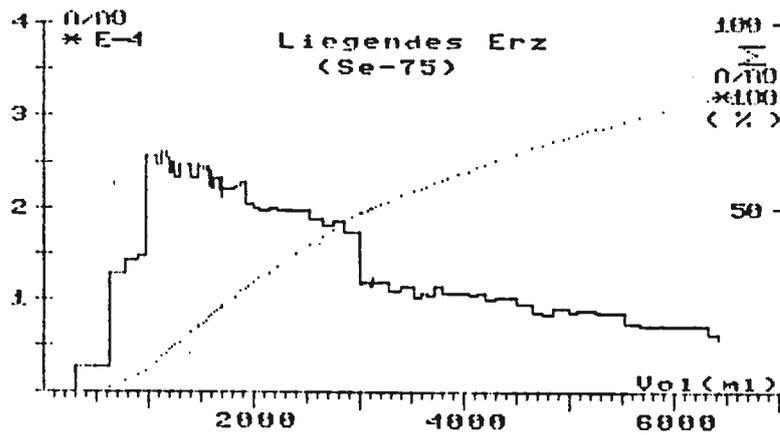
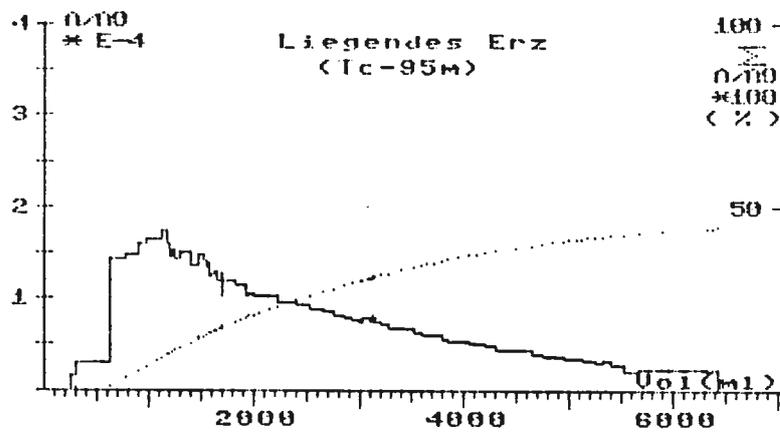
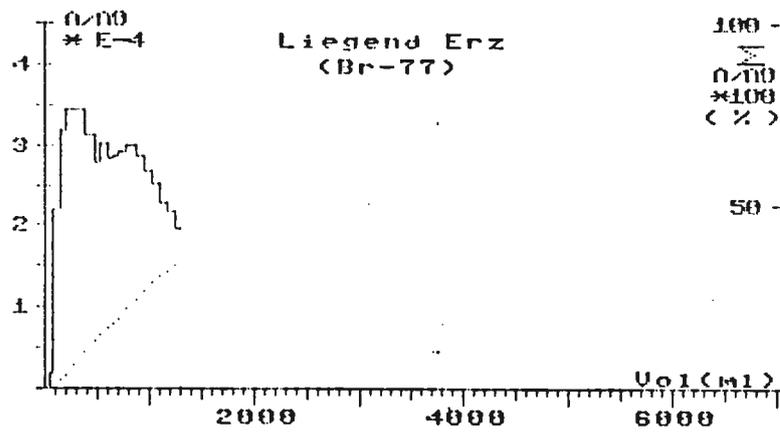


Abb. 29: Durchlaufsäule Kimmeridge, Fraktion 6 -2 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 50 cm.



5 10 15 20  $V/V_{eff}$

Abb. 30: Durchlaufsäule Liegend Erz, Fraktion 20 - 6 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 100 cm.

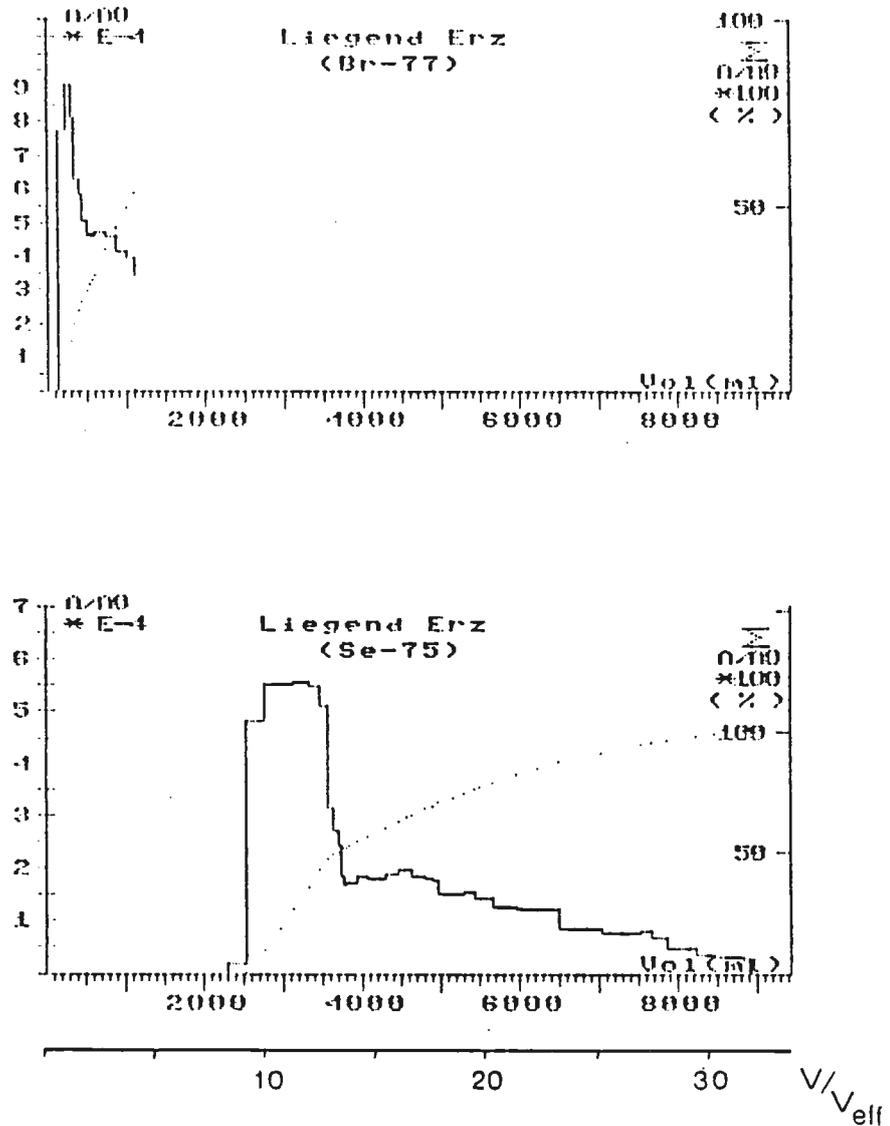
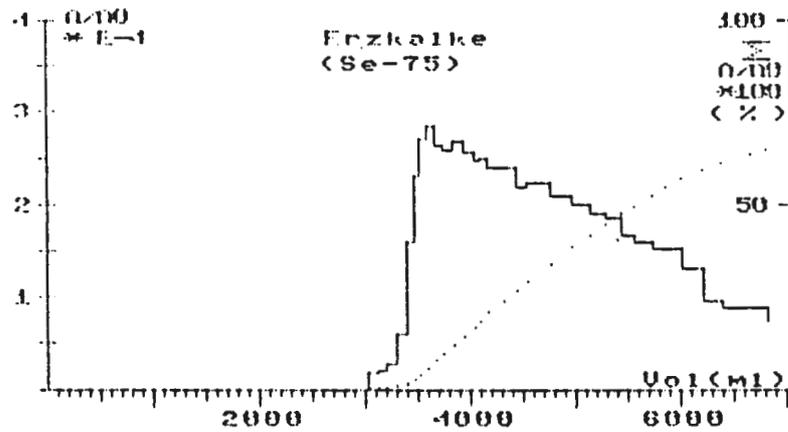
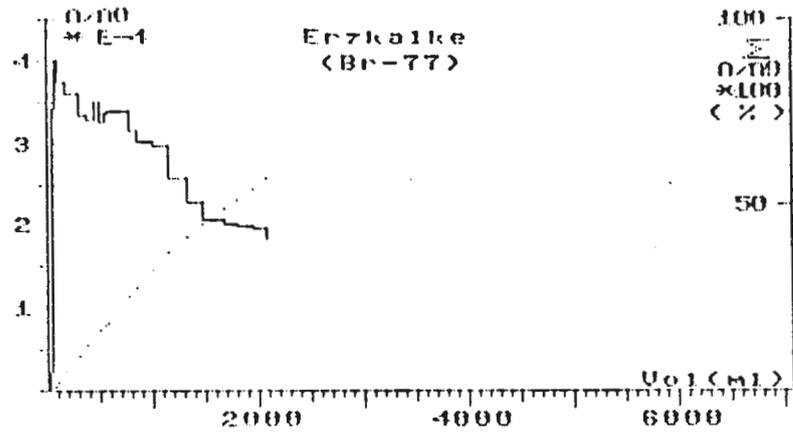


Abb. 31: Durchlaufsäule Liegend Erz, Fraktion 6 -2 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 50 cm.



5 10 15  $V/V_{eff}$

Abb. 32: Durchlaufsäule Erzkalke, Fraktion 20 - 6 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 100 cm

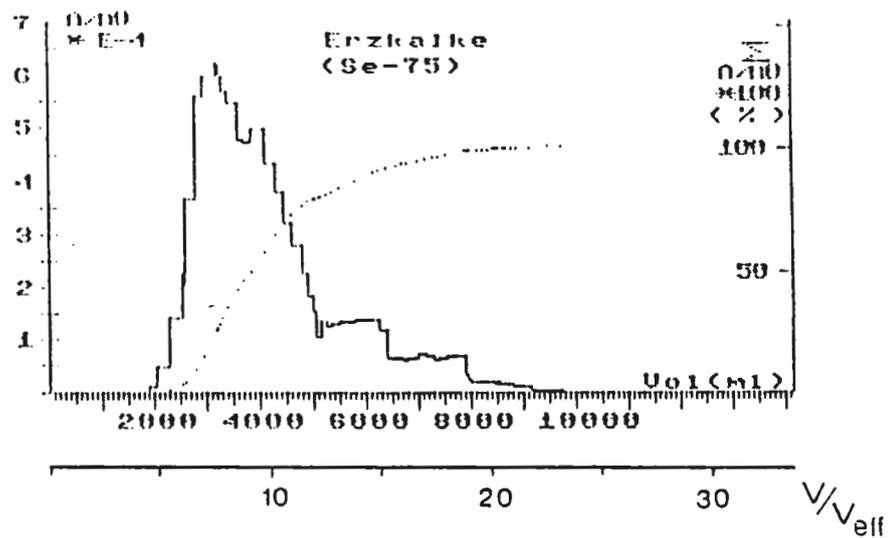
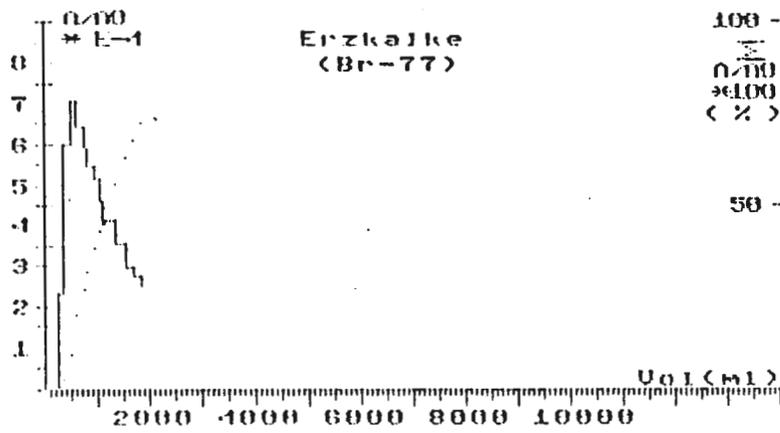


Abb. 33: Durchlaufsäule Erzkalke, Fraktion 6 - 2 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 60 cm

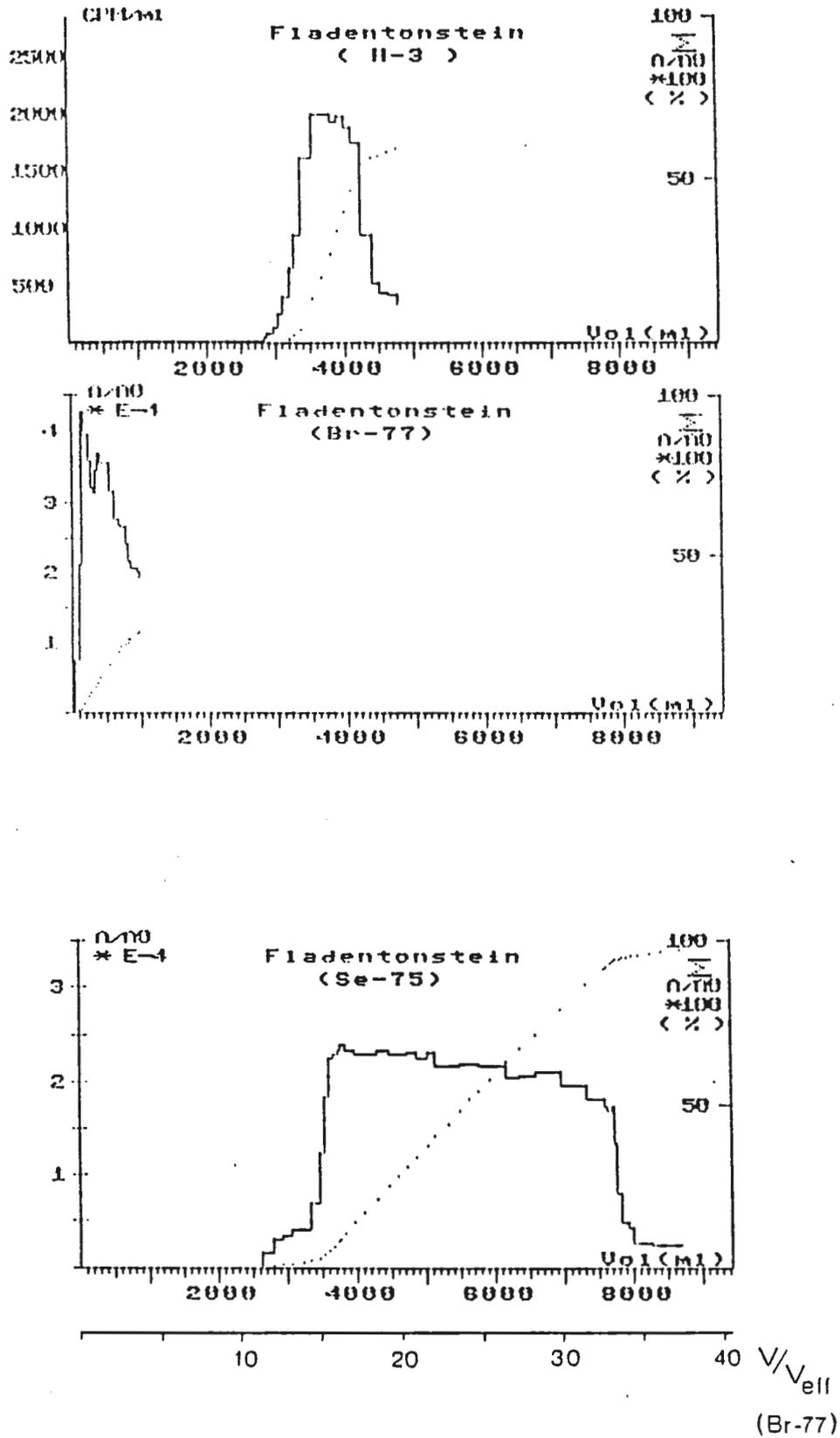


Abb. 34: Durchlaufsäule Fladentonstein, Fraktion 20 - 6 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 100 cm

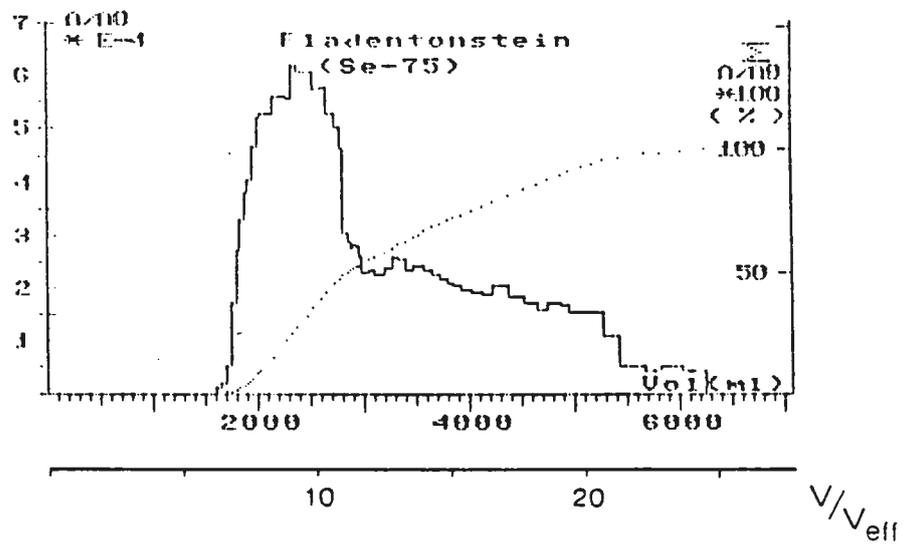
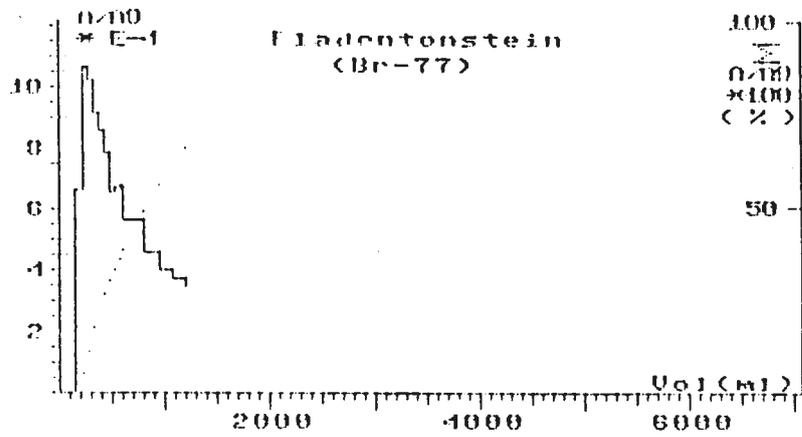


Abb. 35: Durchlaufsäule Fladentonstein, Fraktion 6 - 2 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 50 cm

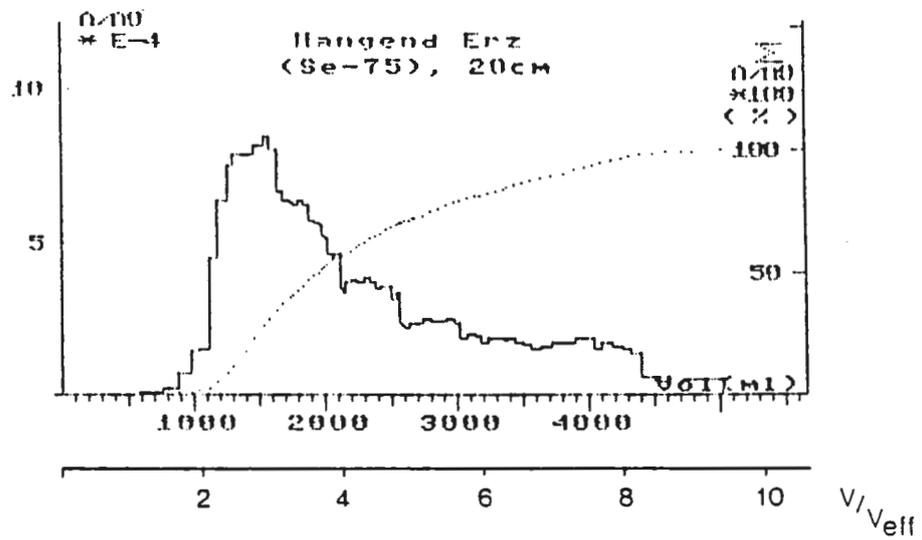
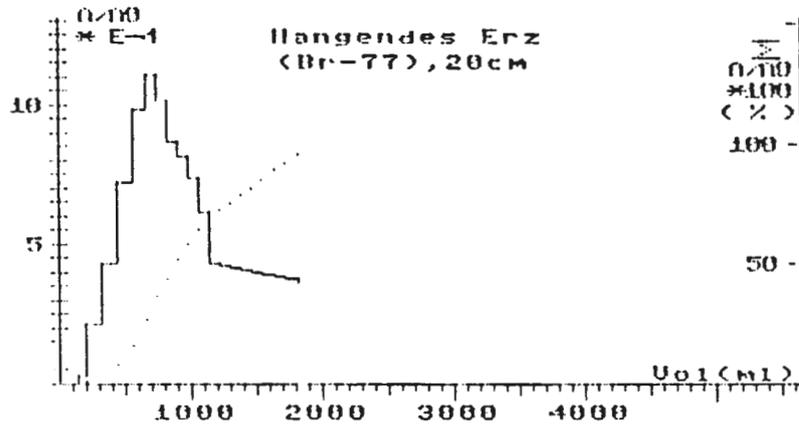
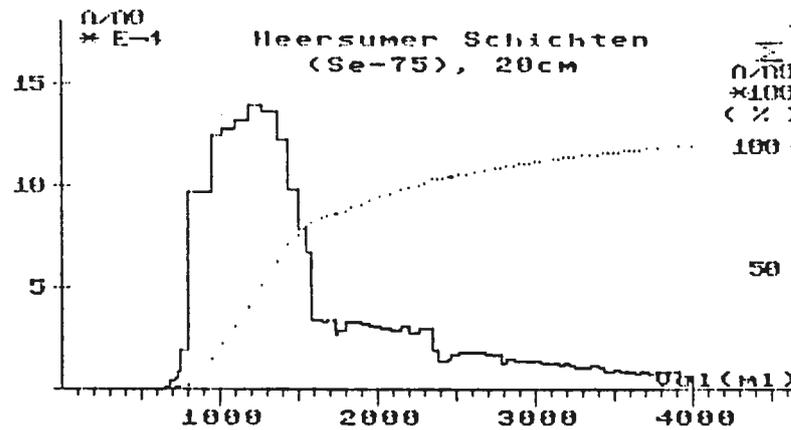
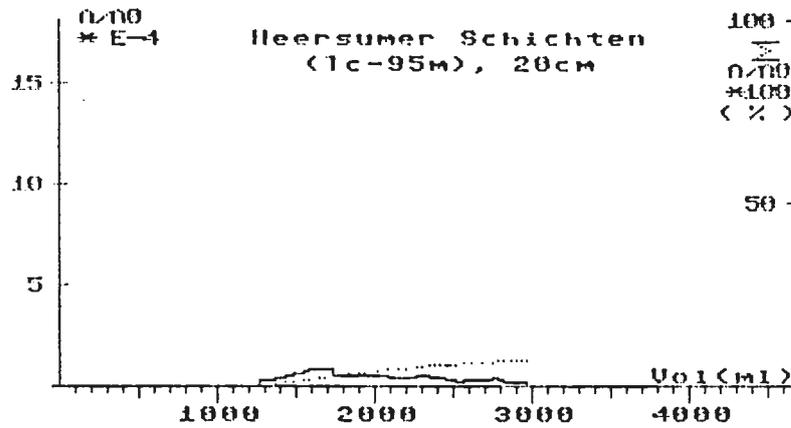
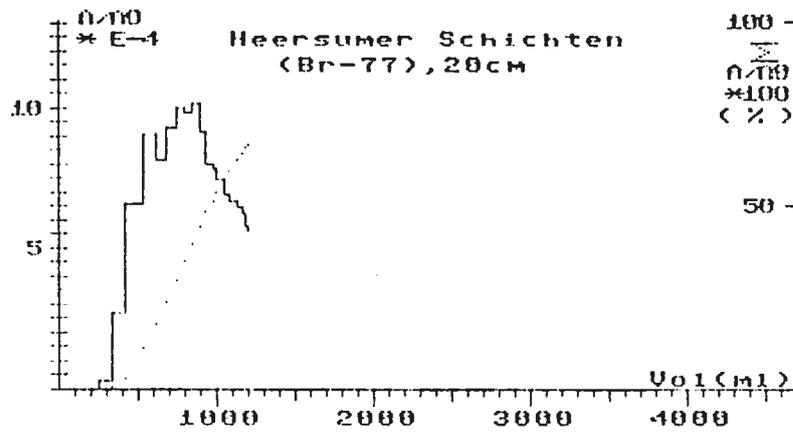
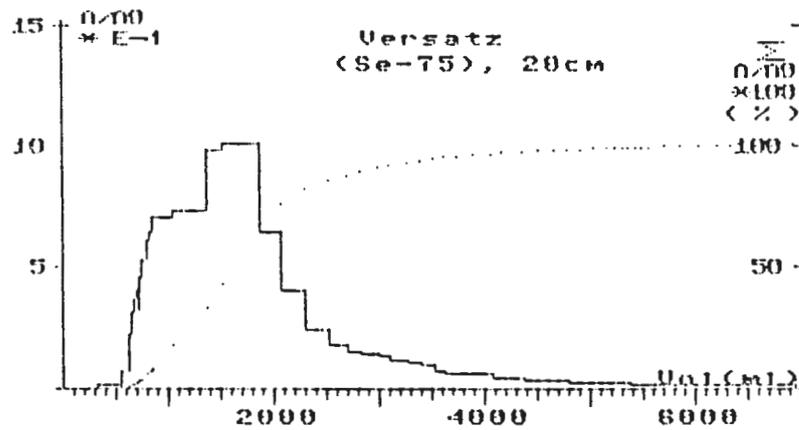
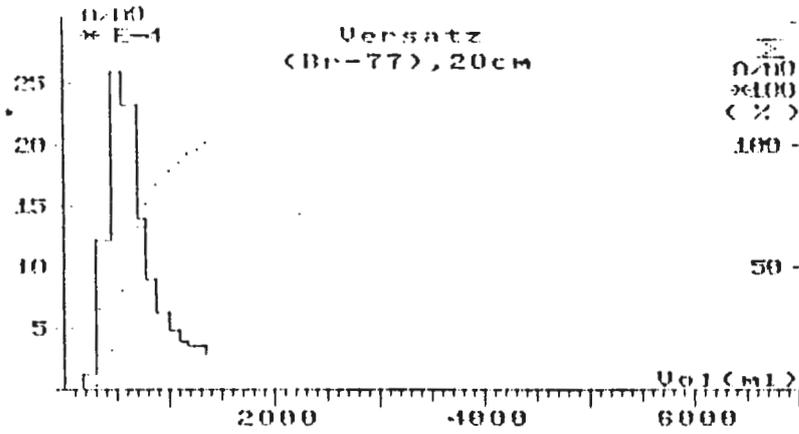


Abb. 36: Durchlaufsäule Hangend Erz, Fraktion 6 - 2 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 20 cm



$V/V_{eff}$

Abb. 37: Durchlaufsäule Heersumer Schichten, Fraktion 6 - 2 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 20 cm



10 20

$V/V_{\text{eff}}$

Abb. 38: Durchlaufsäule Versatz, Fraktion < 2 mm, Wasser der Strecke 670, Säulenlänge 20 cm

Gestein	Physikalische Säulendaten				Hydraulische Säuleneigenschaften (idealer Tracer)					
	Fraktion	Länge	Trockenraum-dichte	Porenraum (total)	Wiedererhalt	Porenraum (effektiv)	Filtergeschw.	Abstandsgeschw.	Dispersionskoeffizient	Dispersionslänge
	(mm)	(cm)	(g/cm <sup>3</sup> )	(%)	(%)	(%)	(m/sec) *E-7	(m/sec) *E-7	(cm <sup>2</sup> /sec) *E-3	(cm)
Lamarcki Pl.	20-6	100	1,14	58	44	12	3,6	30,0	14,0	46,7
Rotpläner	20-6	100	1,43	47	32	11	2,2	20,3	0,8	3,8
Rhotom. Pl.	20-6	100	1,42	48	39	9	2,5	27,5	2,0	7,1
u/m Cenoman	20-6	100	1,19	56	76	11	2,1	19,4	0,7	3,6
Kimmeridge	20-6	100	1,49	44	49	12	3,6	28,3	5,4	19,0
Lieg. Erz	20-6	100	1,43	55	34	8	1,8	22,0	4,5	20,3
Erzkalke	20-6	100	1,45	48	57	11	1,9	16,7	1,6	9,5
Fladentonst.	20-6	100	1,39	50	26	6	1,1	19,4	2,0	10,5
Lamarcki Pl.	6-2	50	1,26	53	79	33	3,9	11,7	2,6	22,1
Rotpläner	6-2	50	1,42	48	97	43	3,9	8,9	1,1	12,5
Rhotom. Pl.	6-2	50	1,39	49	93	21	2,8	13,1	0,2	1,2
u/m Cenoman	6-2	50	1,35	50	99	41	3,3	8,1	1,3	17,0
Kimmeridge	6-2	50	1,41	48	66	17	2,5	15,3	1,7	10,8
Lieg. Erz	6-2	50	1,45	55	54	13	1,7	13,3	2,0	14,8
Erzkalke	6-2	60	1,47	47	72	19	3,6	18,3	1,9	10,3
Fladentonst.	6-2	50	1,39	50	66	13	1,7	12,2	0,8	6,6
Lamarcki Pl.	6-2	20	1,30	52	96	45	1,1	2,5	0,1	4,8
u/m Cenoman	6-2	20	1,29	52	94	49	1,0	2,0	0,03	1,4
Hang. Erz	6-2	20	1,25	61	95	55	2,8	5,0	0,2	3,0
Heersumer S.	6-2	20	1,40	53	66	50	2,2	4,4	0,1	2,2
Versatz	<6	20	1,89	41	93	39	3,6	9,2	0,1	1,4

Tab. 96: Physikalisch-hydraulische Eigenschaften der Durchlaufsäulen

Ergebnisse der Migrationsversuche									
Gestein	Fraktion (mm)	Referenz-tracer	R <sub>f</sub>	Tc-95m			Se-75		
				K <sub>d</sub> (cm <sup>2</sup> /g)	W (%)	R <sub>f</sub>	K <sub>d</sub> (cm <sup>2</sup> /g)	W (%)	
Lamarcki Pl.	20-6	Br-77	1,4	0,04	31	1,5	0,05	29	
Rotpläner	20-6	Br-77	1,1	0,01	9	0,9	-0,01	2	
Rhotom. Pl.	20-6	Br-77	2,3	0,08	48	1,9	0,05	26	
u/m Cenoman	20-6	Br-77	1,7	0,07	38	0,4	-0,06	3	
Kimmeridge	20-6	Br-77	4,4	0,28	38	4,3	0,27	81	
Lieg. Erz	20-6	Br-77	3,4	0,14	44	4,0	0,17	80	
Erzkalke	20-6	Br-77	<112,3>	<8,4>	-	5,5	0,34	65	
Fladentonst.	20-6	Br-77	<482,8>	<20,8>	-	11,8	0,47	97	
Lamarcki Pl.	6-2	H-3	1,3	0,12	50	1,3	0,07	45	
Rotpläner	6-2	H-3	1,2	0,05	33	<10,3>	<2,8>	7	
Rhotom. Pl.	6-2	Br-77	1,9	0,14	75	1,6	0,08	50	
u/m Cenoman	6-2	H-3	1,5	0,14	57	1,2	0,06	3	
Kimmeridge	6-2	Br-77	4,4	0,41	85	4,1	0,37	98	
Lieg. Erz	6-2	Br-77	<3861,7>	<366,1>	-	7,3	0,57	99	
Erzkalke	6-2	Br-77	<274,4>	<35,3>	-	4,2	0,42	98	
Fladentonst.	6-2	Br-77	<296,7>	<27,7>	-	5,6	0,43	99	
Lamarcki Pl.	6-2	H-3	1,4	0,15	98	1,0	0,01	100	
u/m Cenoman	6-2	H-3	1,1	0,02	87	0,7	-0,12	59	
Hang. Erz	6-2	Br-77	<38,9>	<16,7>	-	1,8	0,36	100	
Heersumer S.	6-2	Br-77	2,6	0,56	7	1,7	0,26	100	
Versatz	<6	Br-77	<271,5>	<53,8>	-	3,1	0,43	97	

R<sub>f</sub> - Retardationsfaktor    K<sub>d</sub> - Konzentrationsverteilungs-koeffizient (errechnet)    W - Wiedererhalt

In < > errechnete R<sub>f</sub> und K<sub>d</sub>-Werte aus der Konzentrations-Ortsverteilung nach Zerlegung der Säulen.

Tab. 97: Ergebnisse der Migrationsversuche mit Durchlaufsäulen

Die Experimente an Gesteinen des Grubengebäudes mit Salzwasser zeigen das auch bei den Umlaufsäulen beobachtete Sorptionsverhalten des Technetiums (s. Abs. 5.3.), insbesondere beim Fladentonstein, den Erzkalken, Heersumer Schichten und auch bei den Gesteinen aus dem Erzlager. Neben dem Nachweis von Selen ist hier Technetium im ablaufenden Wasser nicht zu detektieren (Versuchsdauer mehr als 6 Wochen, durchgelaufenes Volumen 2-3 mal größer als der Gesamt-Porenraum).

Für diese Fälle des aus der flüssigen Phase vollständig eliminierten (adsorbierten) Technetiums wurden die Säulen zerlegt und die Verteilung über das Säulenprofil bestimmt. (s. Abb. 39-47).

Die Konzentrations-Orts - Verteilungen zeigen, daß, bis auf die mit dem Gestein Liegendes Erz (Fraktion 20-6mm) gefüllte Säule, der größte Teil des Technetiums bereits im obersten Säulenabschnitt festgelegt wurde.

Der Vergleichsaufschluß der Säule mit dem Gestein Rotpläner und gering mineralisiertem Wasser zeigt demgegenüber eine über die ganze Säulenlänge gleichmäßige Verteilung.

Zu den hier angewandten Auswerteverfahren der Bestimmung von Abstandsgeschwindigkeiten über die kumulative Konzentrations-Zeit-Verteilung sind einige Anmerkungen nötig.

Versuchsanordnungen mit gebrochenem Festgestein in Durchlaufsäulen ergeben häufig Durchbruchkurven, deren Formen auf verschiedene den Durchlauf steuernde Mechanismen rückschließen lassen. Besonders auffällig sind die lang ausgezogenen, nur langsam abnehmenden Aktivitäts-Verteilungen bei den Gesteinen der Oberkreide in den Säulen von 100cm Länge und der Kornfraktion 20-6mm. Die Summenkurven des Wiedererhalts erscheinen hierbei nur ganz allmählich ansteigend.

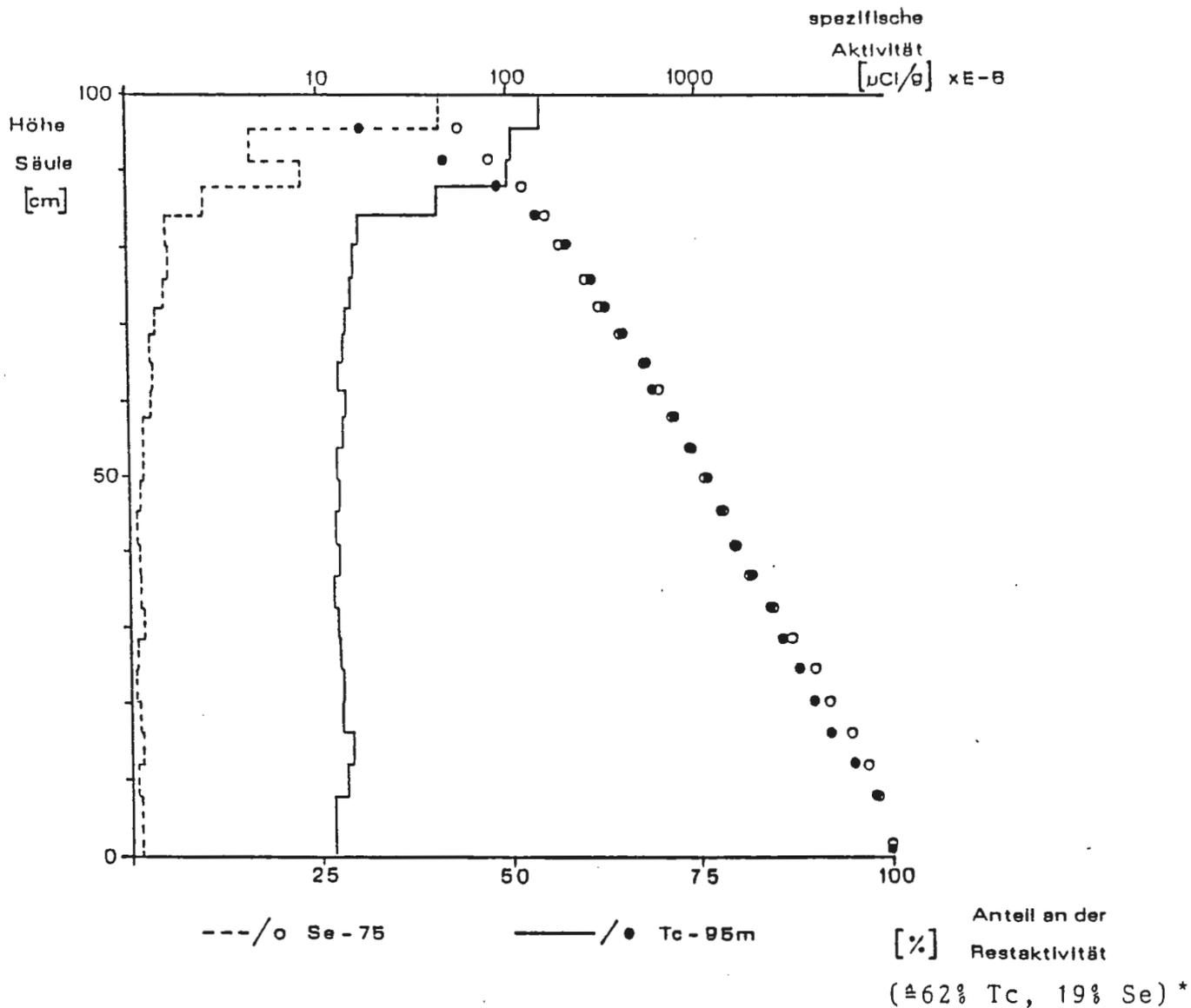


Abb. 39: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Kimmeridge, Fraktion 20-6 mm, Wasser der Strecke 670. (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

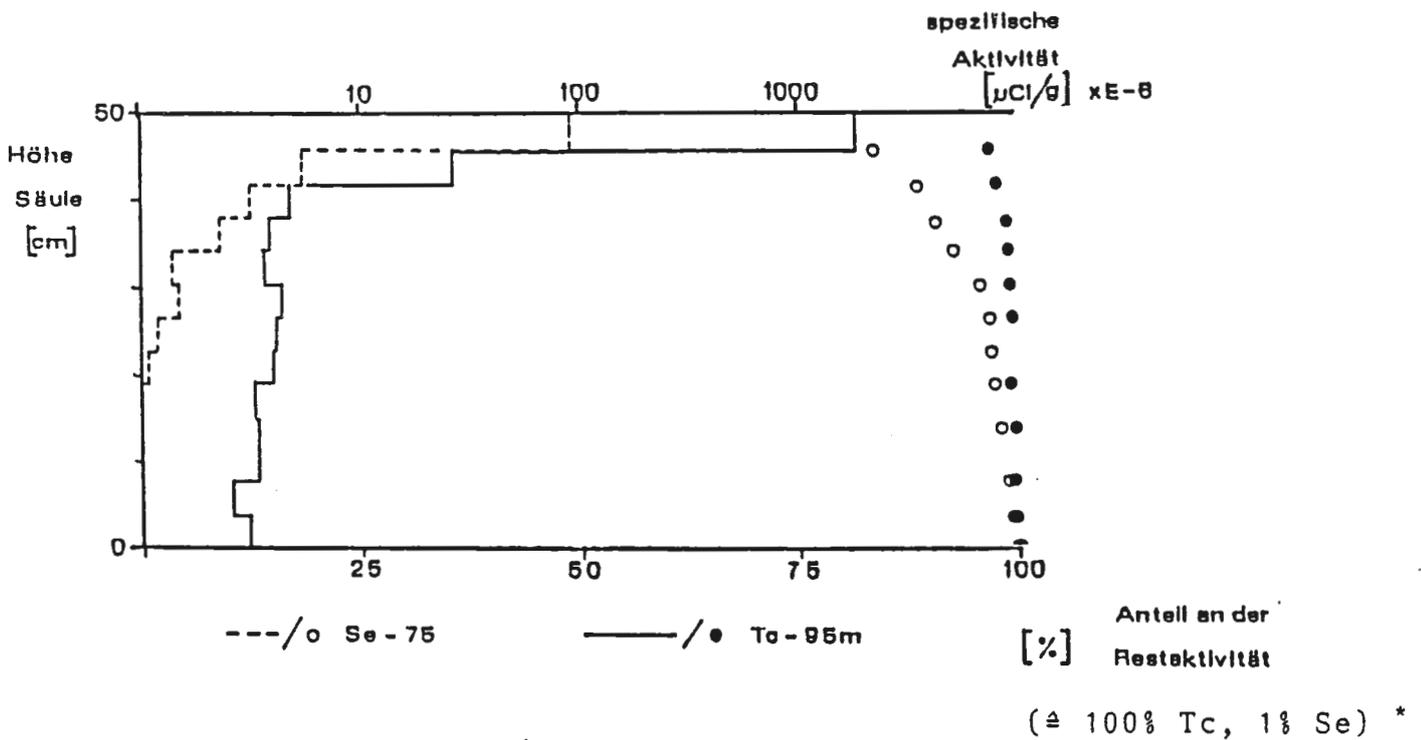
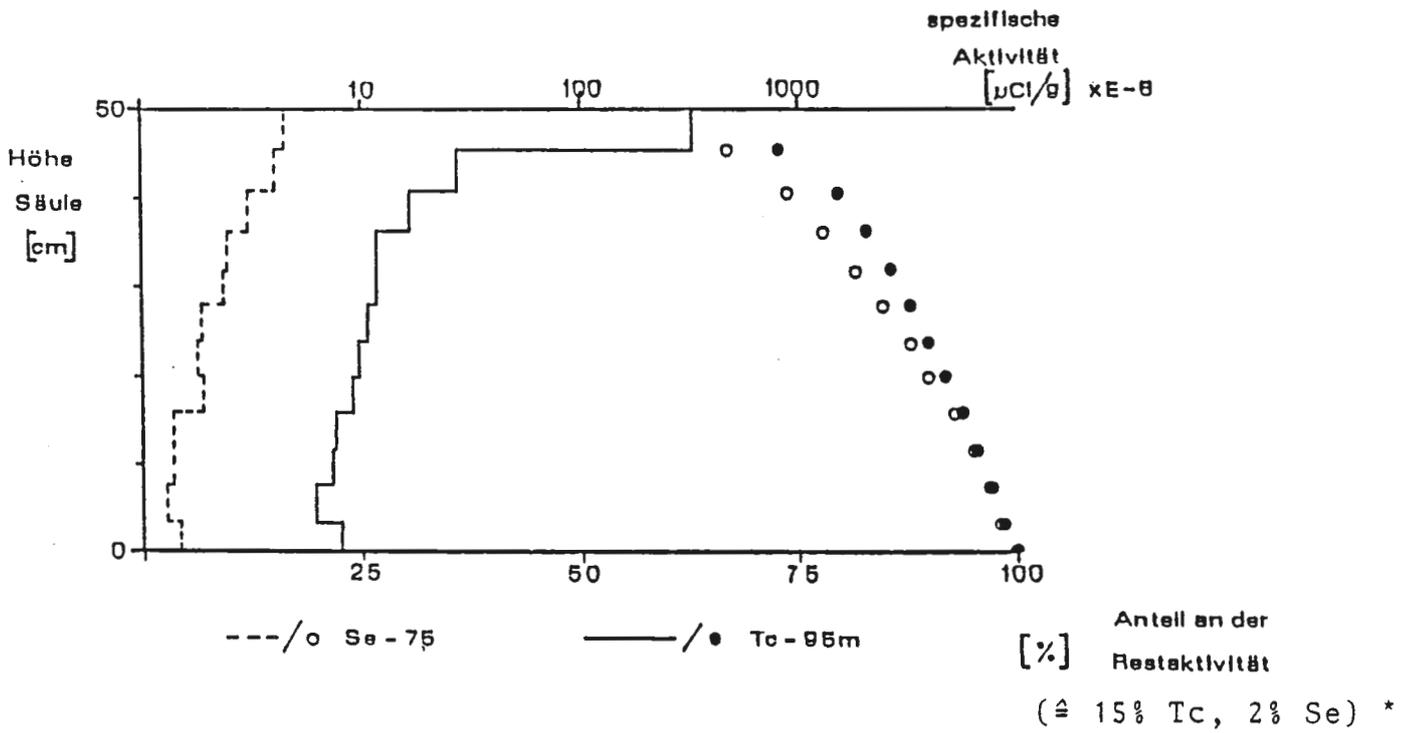


Abb. 40: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufssäule Kimmeridge, Fraktion 6-2 mm, Wasser der Strecke 670. (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

Abb. 41: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufssäule Liegend Erz, Fraktion 6-2 mm, Wasser der Strecke 670. (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

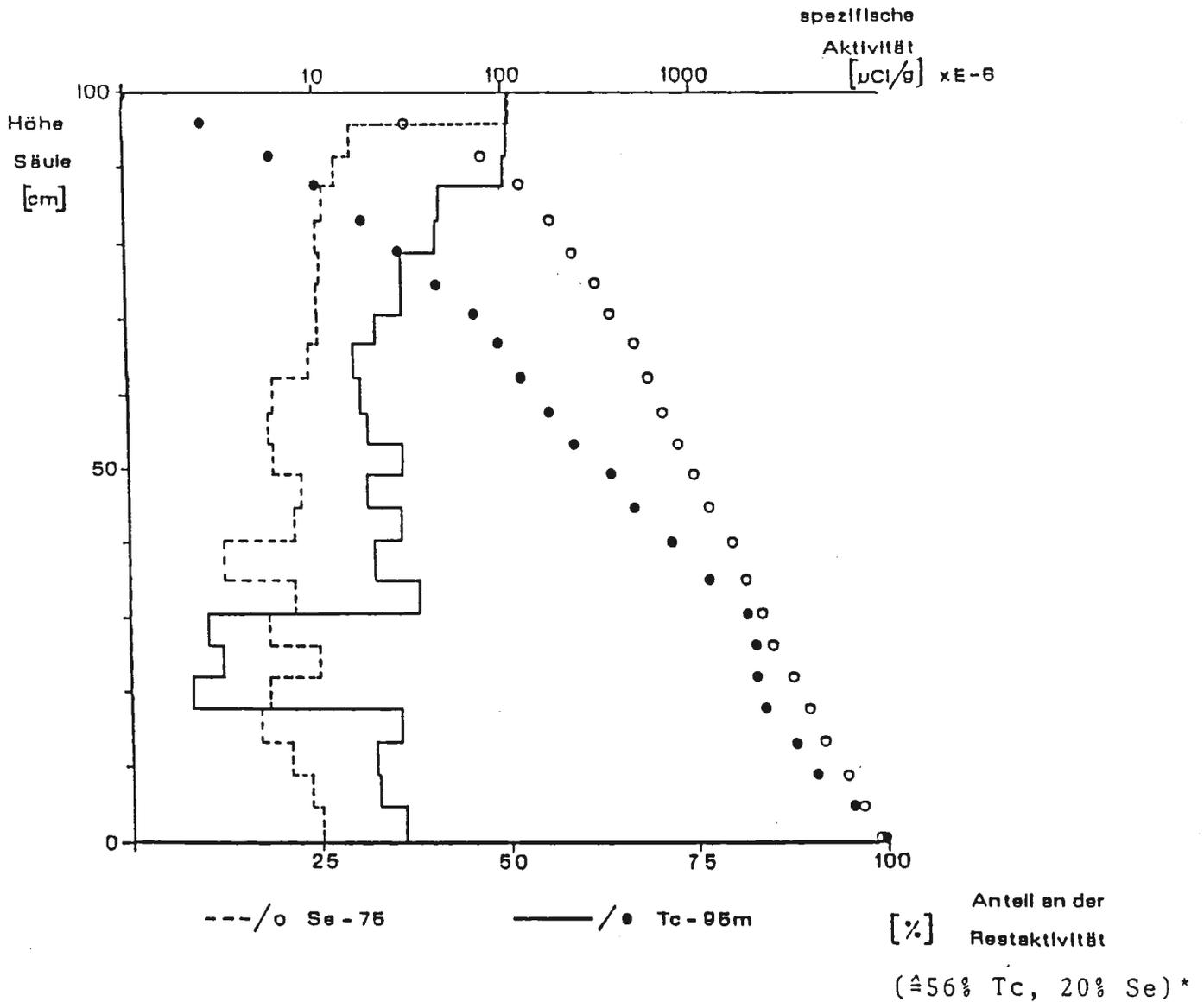


Abb. 42: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Liegend Erz, Fraktion 20-6 mm, Wasser der Strecke 670. (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

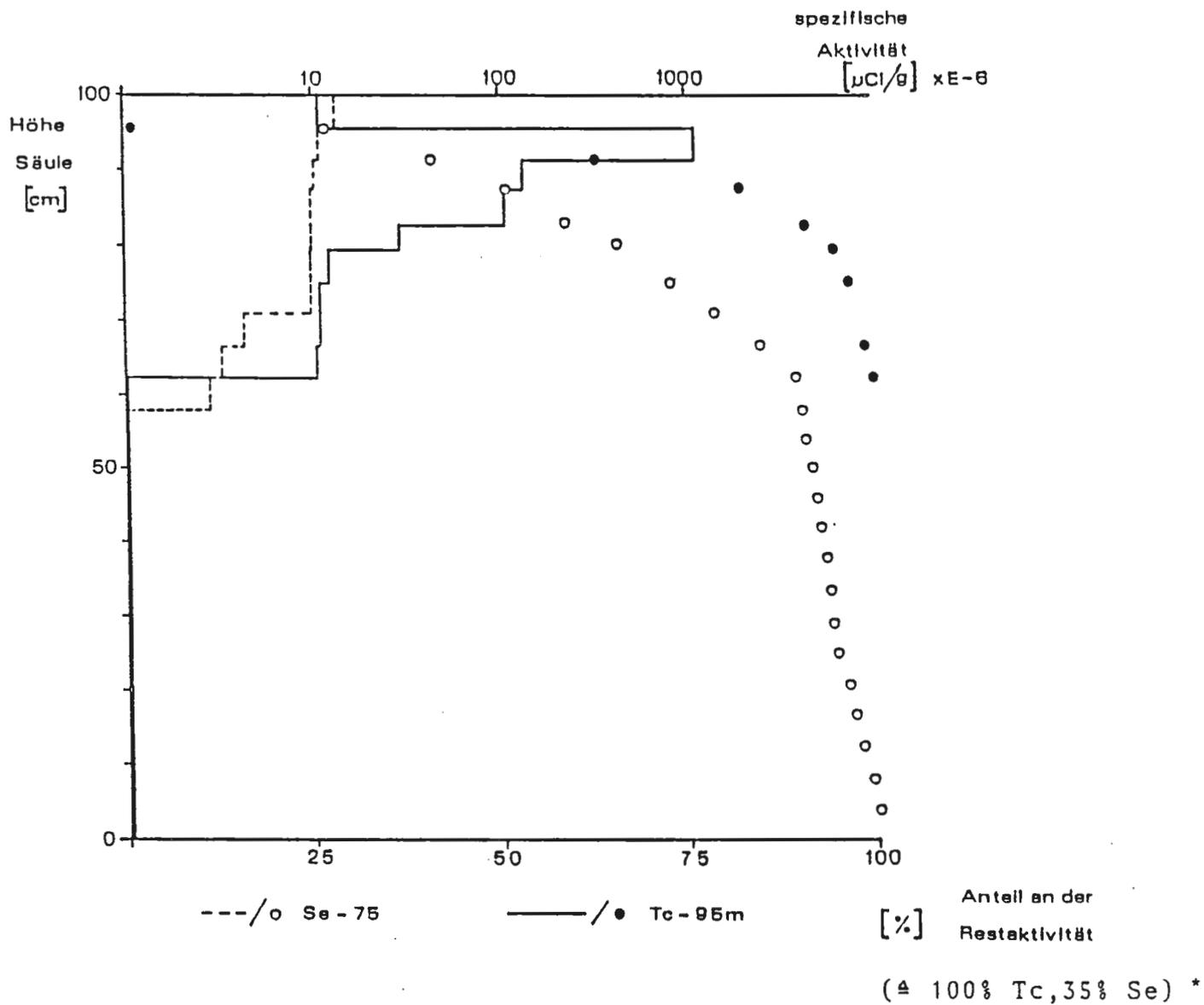


Abb. 43: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Erzkalke, Fraktion 20-6 mm, Wasser der Strecke 670. (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

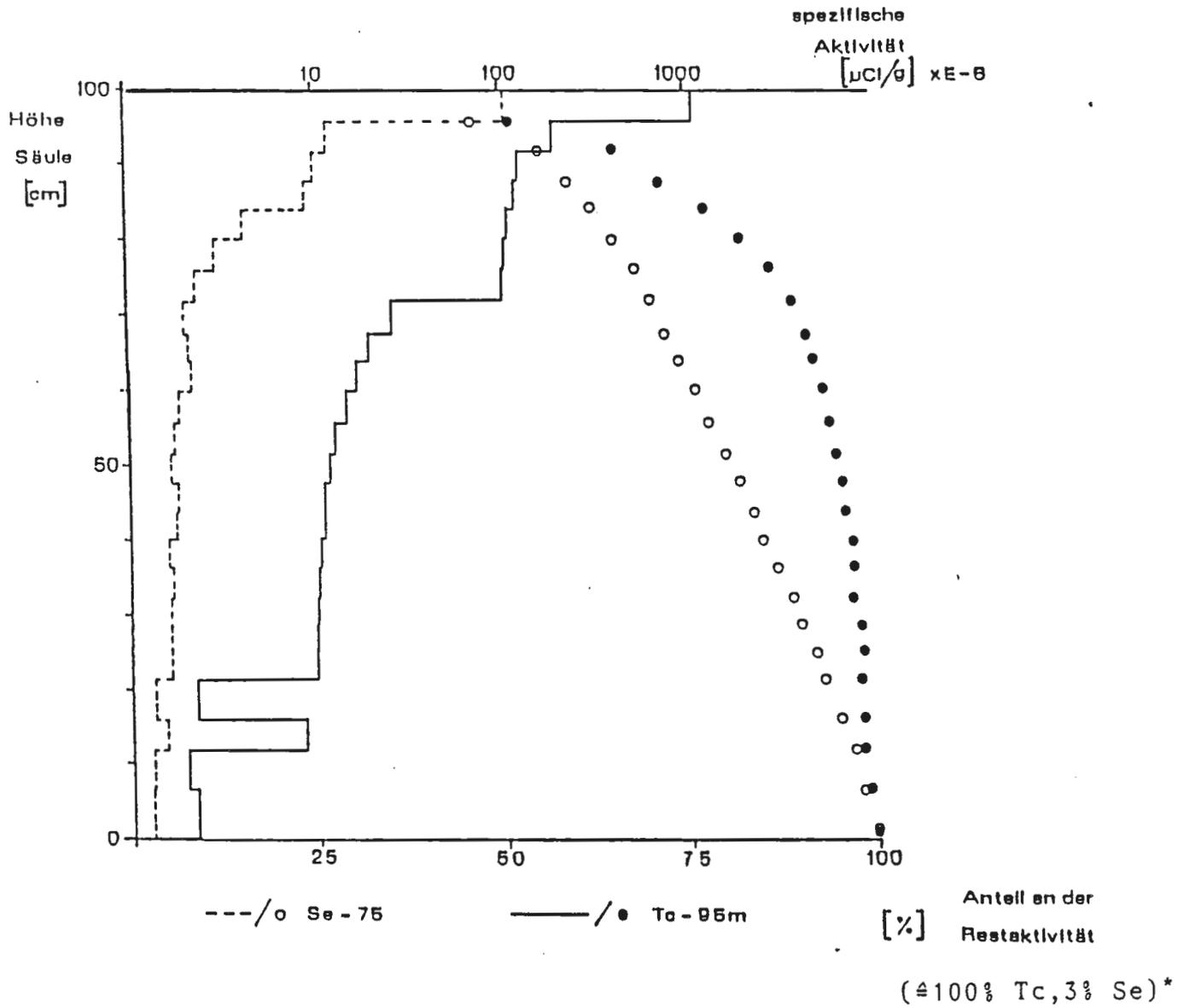


Abb. 44: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Fladentonstein, Fraktion 20-6 mm, Wasser der Strecke 670. (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

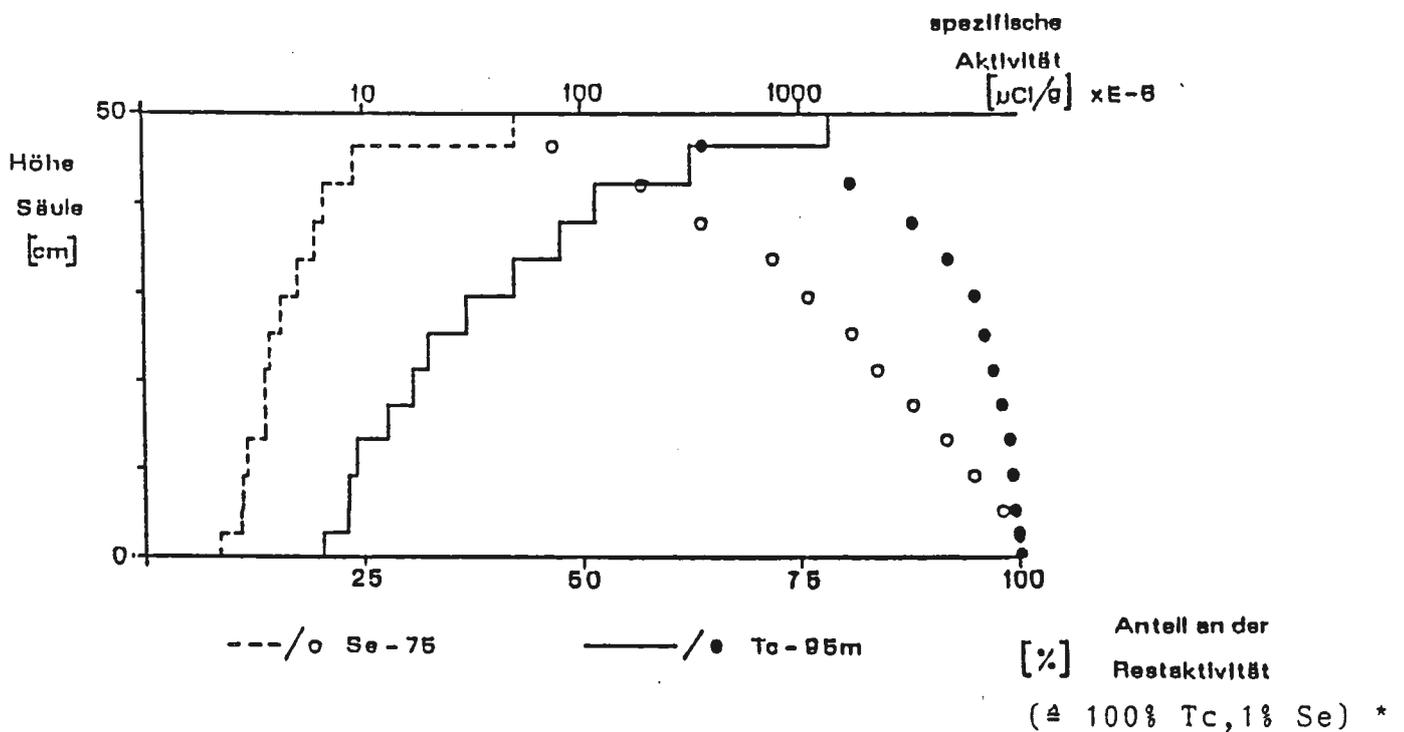
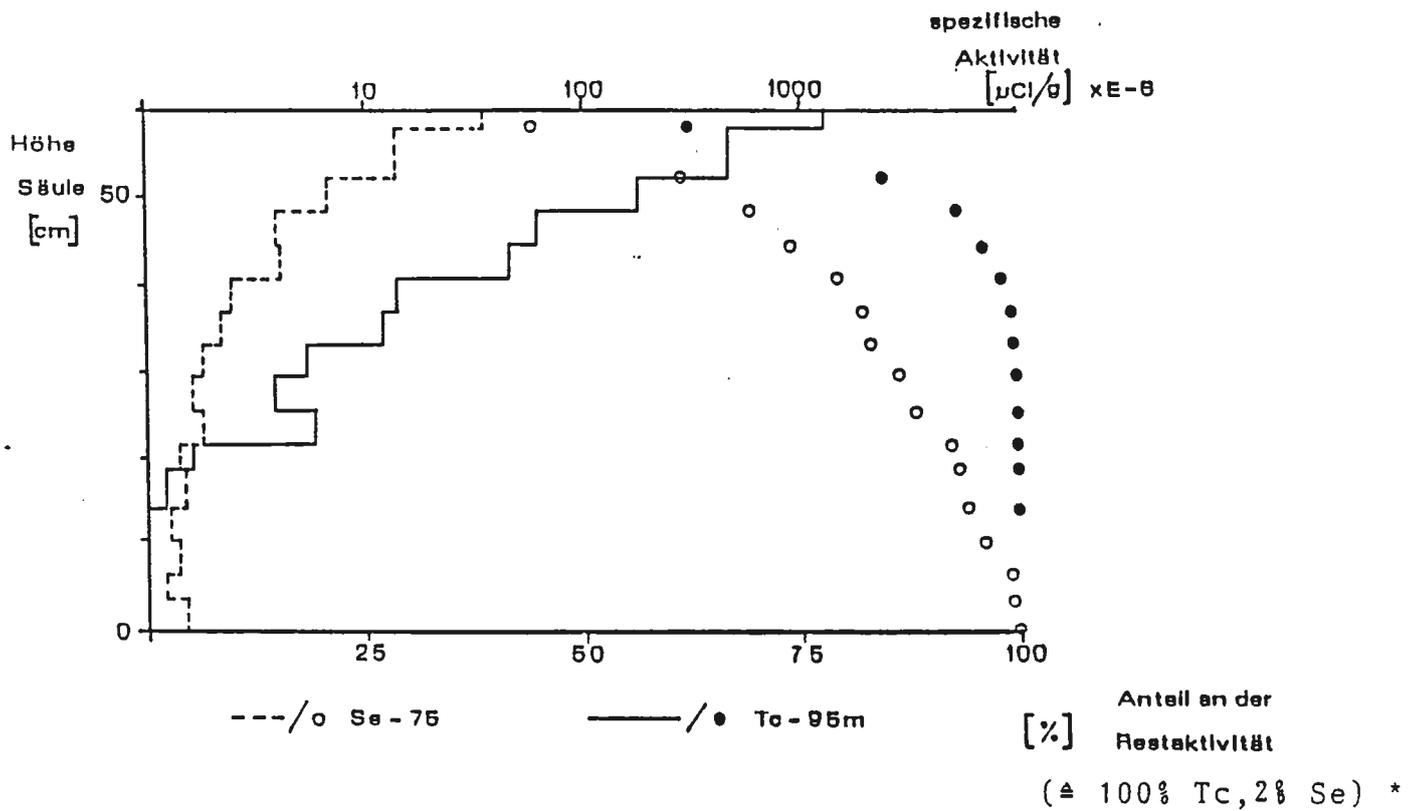


Abb. 45: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Erzkalke, Fraktion 6-2 mm, Wasser der Strecke 670. (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

Abb. 46: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Fladentonstein, Fraktion 6-2 mm, Wasser der Strecke 670. (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

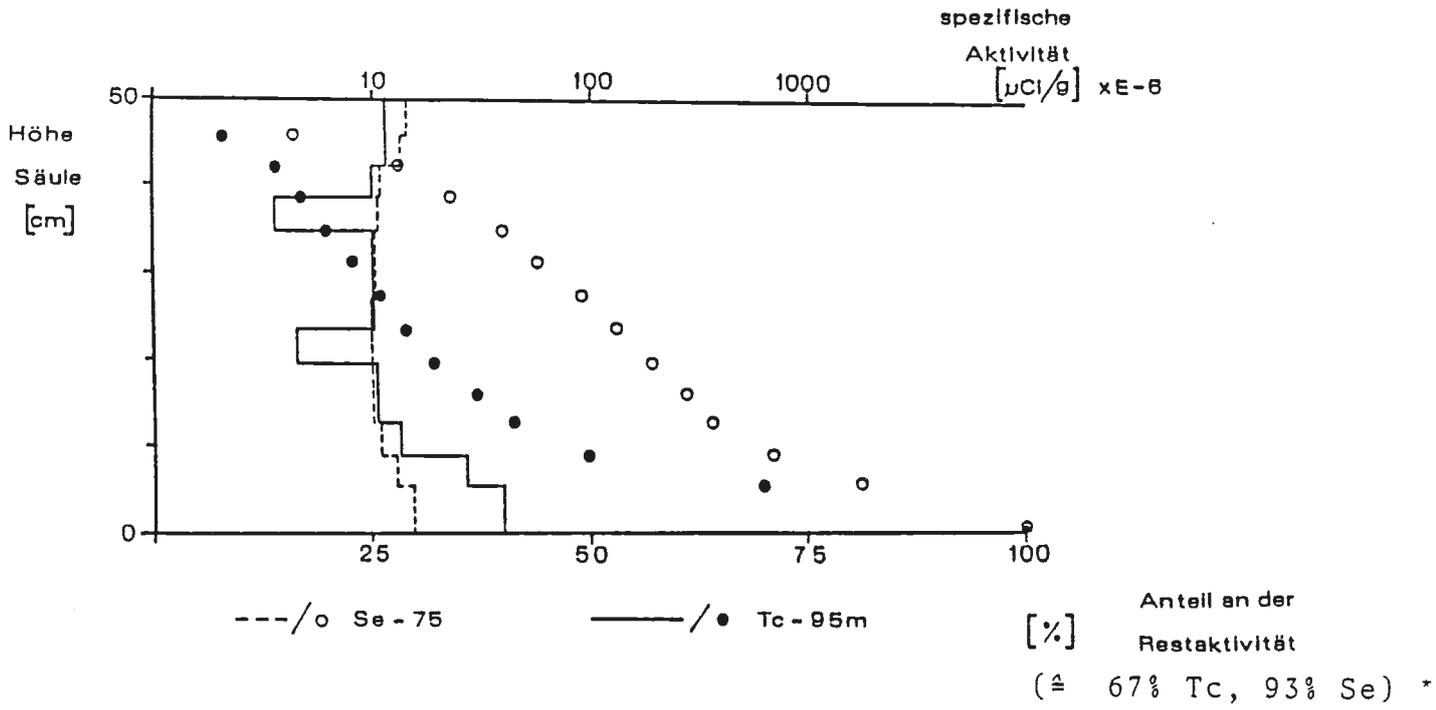


Abb. 47: Konzentrations-Orts-Verteilung der Durchlaufsäule Rotpläner, Fraktion 6-2 mm, Söhlde-Wasser (\* Prozentualer Anteil der Aufgabeaktivität)

Am Beispiel der H-3 Verteilung für die Säule Lamarcki-Pläner, Fraktion 20-6 mm, (Abb. 18) soll hier eine Modellvorstellung zur Diskussion gestellt werden (Abb. 47). Der beobachtete Kurvenverlauf 1 läßt sich in zwei Teilpopulationen aufteilen. Dabei zeigt die Teilkurve 2 eine ideale Zeit - Konzentrationsverteilung als Durchbruchskurve. Die Differenz-Kurve 3 macht deutlich, daß ein Teil des tritierten Wassers in der Säule zwischengelagert und dort langsam nach Durchbruch der ersten Population freigesetzt wird.

Die ideale (hier angenommene) Verteilung 2 ( $Me_2$ ) hat ihren Schwerpunkt zu einem früheren Zeitpunkt als die beobachtete (ausgewertete) Verteilung 1 ( $Me_1$ ). Kleinere  $t_{50}$ -Werte bewirken aber größere Abstandsgeschwindigkeiten und damit andere Retardationsfaktoren.

Die Säulen von 50cm Länge gefüllt mit der Gesteinsfraktion 6-2mm, zeigen im Vergleich hierzu die erwarteten Durchbruchskurven mit gleichzeitig höheren Wiedererhaltsraten.

Die Klärung dieser hier nur beispielhaft angeführten Erscheinungen und die Entwicklung spezifischer Auswerteverfahren konnte im Rahmen dieses Projektes noch nicht geleistet werden.

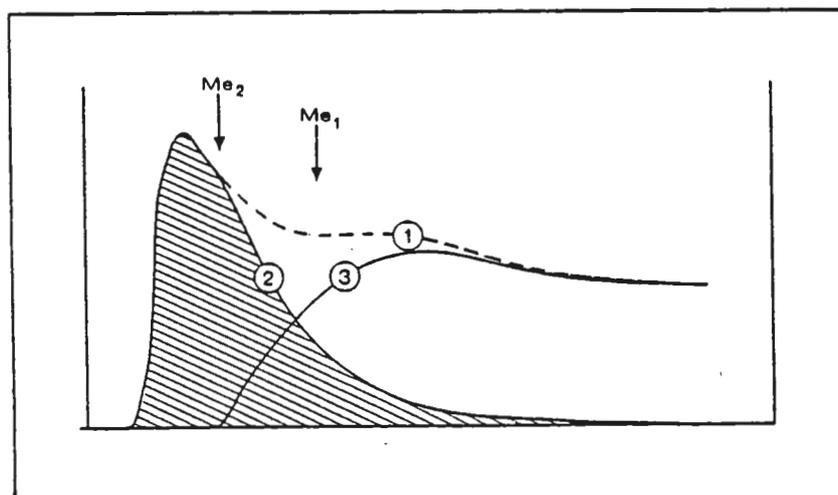


Abb. 48: Aufteilung der beobachteten Zeit-Konzentrations-Verteilung in zwei Teilpopulationen; (Erläuterung s. Text).

### 5.3. Umlaufsäulenversuche

Die Abb. 49, 50 und 51 zeigen für die drei verschiedenen Korngrößen (0,2-2mm, 2-6mm und 6-20mm) des Hangenden Erzes die Auftragung der  $R_D$  bzw.  $R_S$ -Werte über der Zeit. Parallel sind die in den Säulen während der Adsorption gemessenen pH- und Eh-Werte dargestellt, die über die Versuchsdauer eine weitgehende Stabilität der physiko-chemischen Verhältnisse erkennen lassen. Dies steht sicherlich im Zusammenhang mit der vergleichsweise großen Gesteinsmasse, die eine entsprechend hohe Pufferkapazität aufweist.

Das Sorptionsverhalten für das Radionuklid Se-75 kann in allen drei Kornfraktionen als weitgehend ähnlich angesehen werden. Die  $R_S$ -Werte schwanken um den Wert 0,15 (ml/g). Die sich nach ca. 4000 Stunden bei den Fraktionen 0,2-2 mm (20 cm-Säule) und 2-6 mm (50 cm Säule) ergebenden Desorptionswerte zeigen den  $R_S$ -Werten entsprechende  $R_D$ -Werte (vgl. Abb. 49 und 50).

Ein im Vergleich zum Se-75 völlig anderes Verhalten läßt sich für das Technetium erkennen. In der größten Fraktion (100 cm Säule, Abb. 51) konnte nach dem Beobachtungszeitraum von 4000 Stunden kein Tc-95 mehr in dem umlaufenden Wasser gefunden werden, d.h. es fand eine vollständige Festlegung des Radionuklids statt.

In den 50 cm-(2-6 mm) und 20 cm-(0,2-2 mm) Säulen zeigt sich eine sehr geringe Festlegung, die aber in beiden Fraktionen mit der Zeit ansteigt. Nach Beendigung des Sorptionsversuches in den beiden Kornfraktionen erbringt der nachfolgende Desorptionsversuch im zeitlichen Verlauf ein divergierendes Verhalten. Nach ca. 300 Stunden, die bestimmt sind durch die Gleichgewichtseinstellung zwischen der inaktiven Lösung und dem Gestein (verbunden mit einer teilweisen Freisetzung des festgelegten Radionuklids) kommt

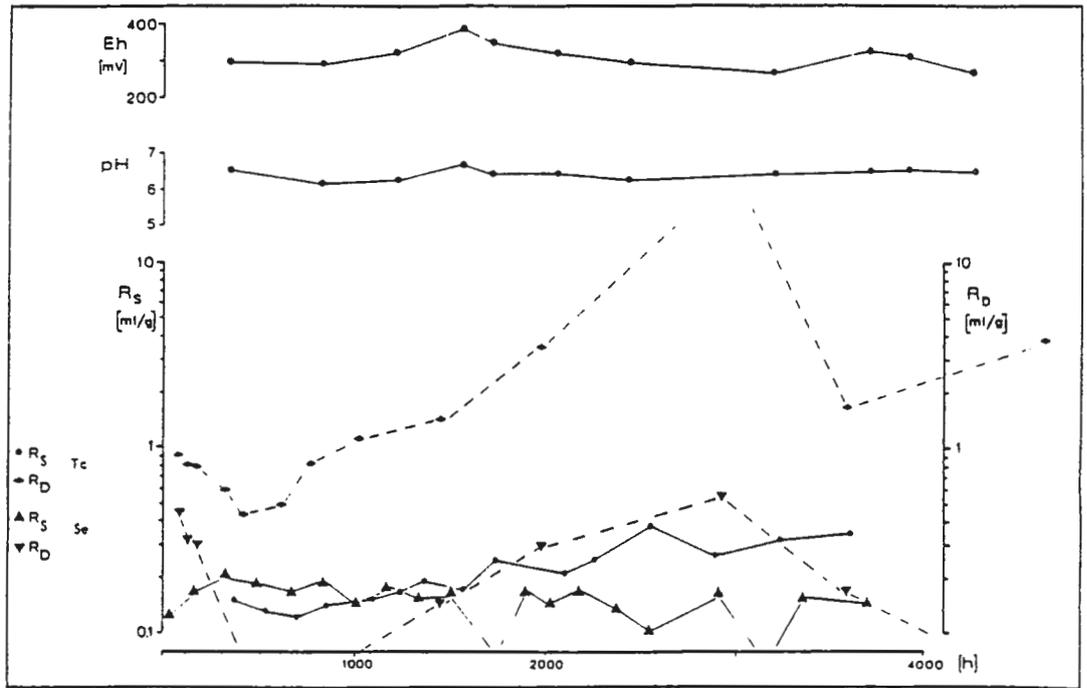


Abb. 49: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Hangendes Erz; Korngrößenfraktion 0,2-2mm; Säulenlänge 20cm.

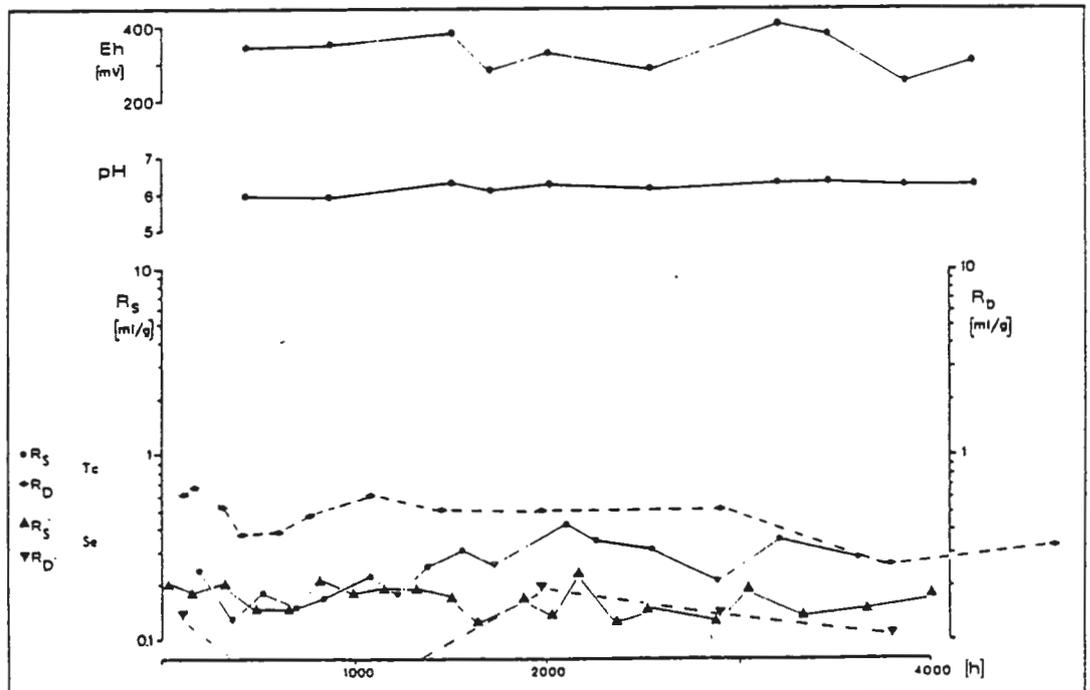


Abb. 50: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Hangendes Erz; Korngrößenfraktion 2-6mm; Säulenlänge 50cm.

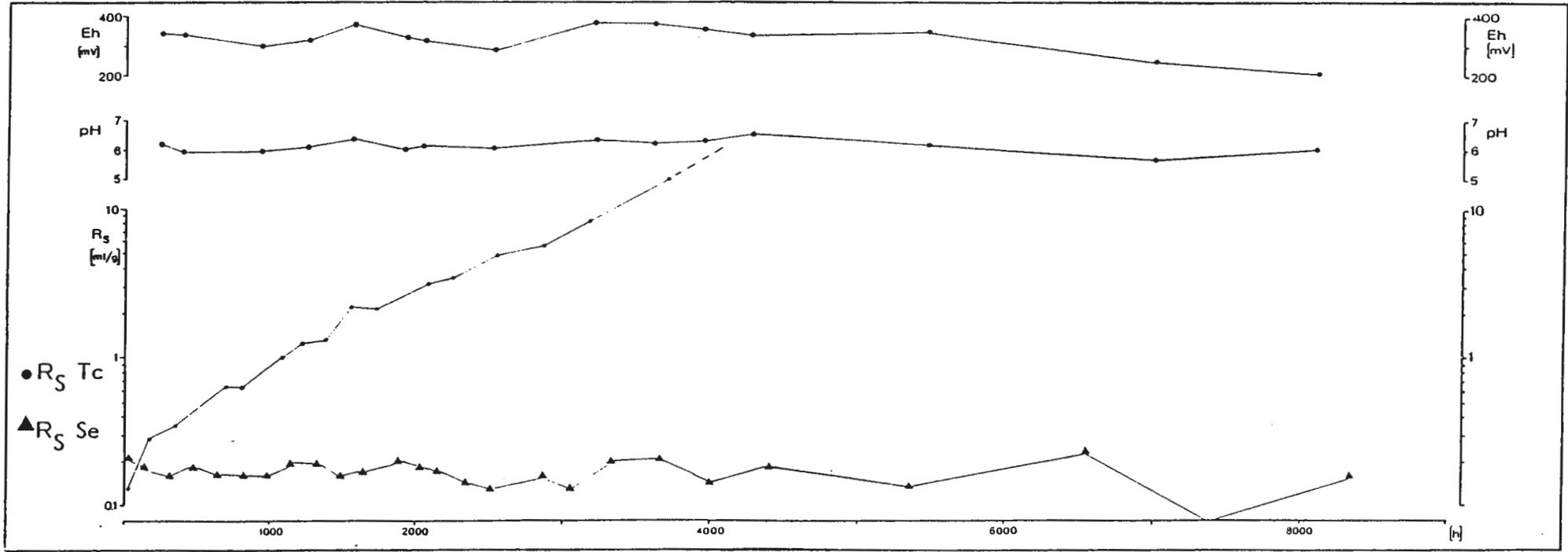


Abb. 51: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ - Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Hangendes Erz; Korngrößenfraktion 6-20mm; Säulenlänge 100cm.

es zu einem Anstieg der Desorptionswerte, die nachfolgend in der Kornfraktion 0,2-2mm eine Parallelität zu den Adsorptionswerten erkennen lassen, während in der Korngrößenfraktion 2-6mm ein Anstieg der  $R_D$ -Werte zu erkennen ist.

Das zeitliche Adsorptions-Desorptionsverhalten für das Liegende Erz stellen die Abb. 52, 53 und 54 dar. Die pH-Eh-Werte weisen wie beim hangenden Erz (Abb. 49 - 51) nur eine geringe Schwankungsbreite auf.

Für das Radionuklid Se-75 kann ein mit dem Hangenden Erz vergleichbares Verhalten mit ähnlichen Adsorptions- und Desorptionswerten beobachtet werden.

Technetium zeigt hingegen in der Fraktion 6-20 mm (100-cm-Säule) nach weniger als 2000 Stunden eine vollständige Festlegung. In der mittleren Fraktion (2-6 mm) kann ein deutlicher Anstieg der Adsorptionswerte erkannt werden, der zum Ende des Versuches bei  $R_S \sim 1$  (ml/g) liegt. Auch in der Fraktion 0,2 - 2 mm zeigt sich, wenn auch weniger ausgeprägt, ein zeitabhängiger Anstieg der Adsorption.

Die Desorption, durchgeführt an der mittleren und kleinsten Kornfraktion, läßt ein etwa paralleles Verhalten wie beim Hangenden Erz (Kornfraktion 2-6mm, Abb. 50) erkennen. Nach einem Abfallen der Desorptionswerte (bis etwa 300 Std.) deutet sich mit zunehmender Versuchsdauer ein Anstieg der Werte an, der sich dann jedoch in der zeitlichen Entwicklung den  $R_S$ -Werten nähert.

Das Adsorptions-Desorptionsverhalten der Heersumer Schichten im Umlaufsäulenversuch (Abb. 55) weist in der untersuchten Kornfraktion 2-6 mm für Selen auf  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte  $\sim 0,1$  (ml/g) hin. Technetium zeigt in der zeitlichen Entwicklung der Adsorptionswerte ebenfalls einen Anstieg (Versuchsende  $R_S \sim 4,5$  ml/g). Die Desorptionswerte weisen in ihrer zeitlichen Entwicklung einen mit dem  $R_S$ -Wert vergleichbaren Verlauf auf.

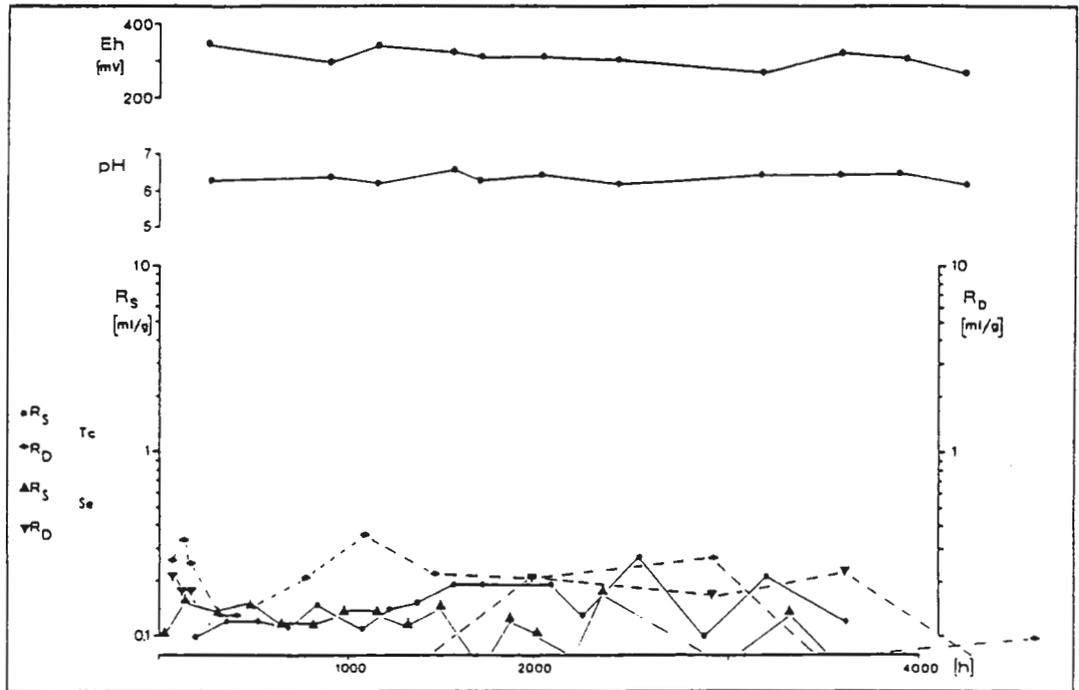


Abb. 52: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Liegendes Erz; Korngrößenfraktion 0,2-2mm; Säulenlänge 20cm.

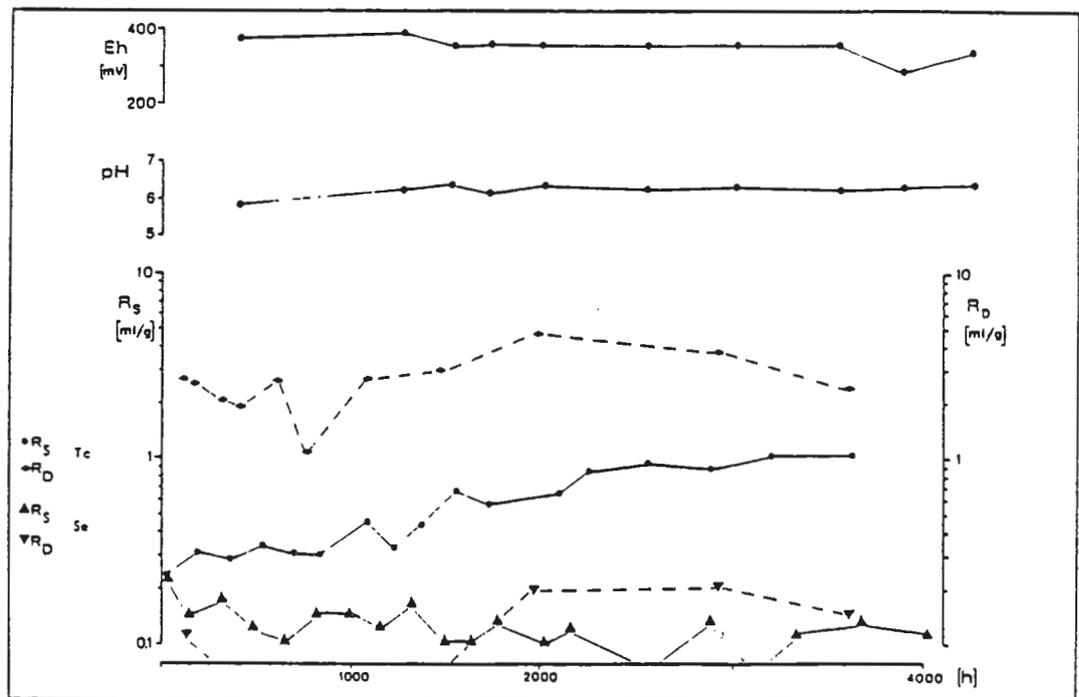


Abb. 53: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Liegendes Erz; Korngrößenfraktion 2-6mm; Säulenlänge 50cm.

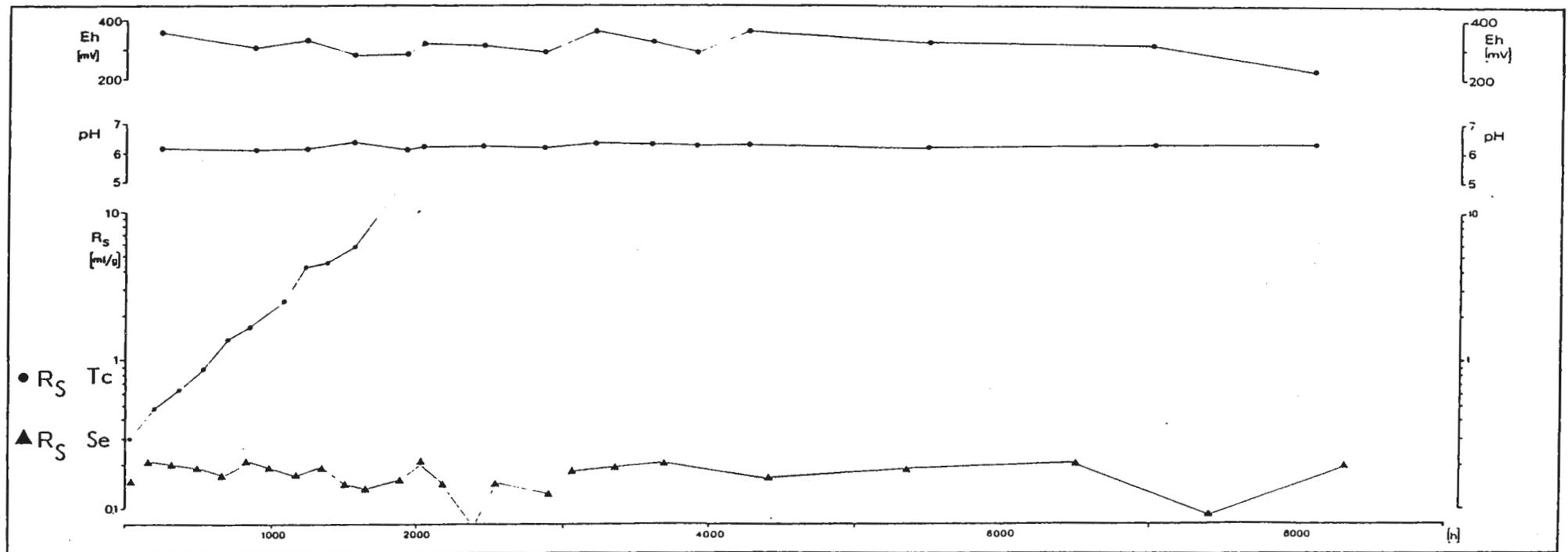


Abb. 54: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Liegendes Erz; Korngrößenfraktion 6-20mm; Säulenlänge 100cm.

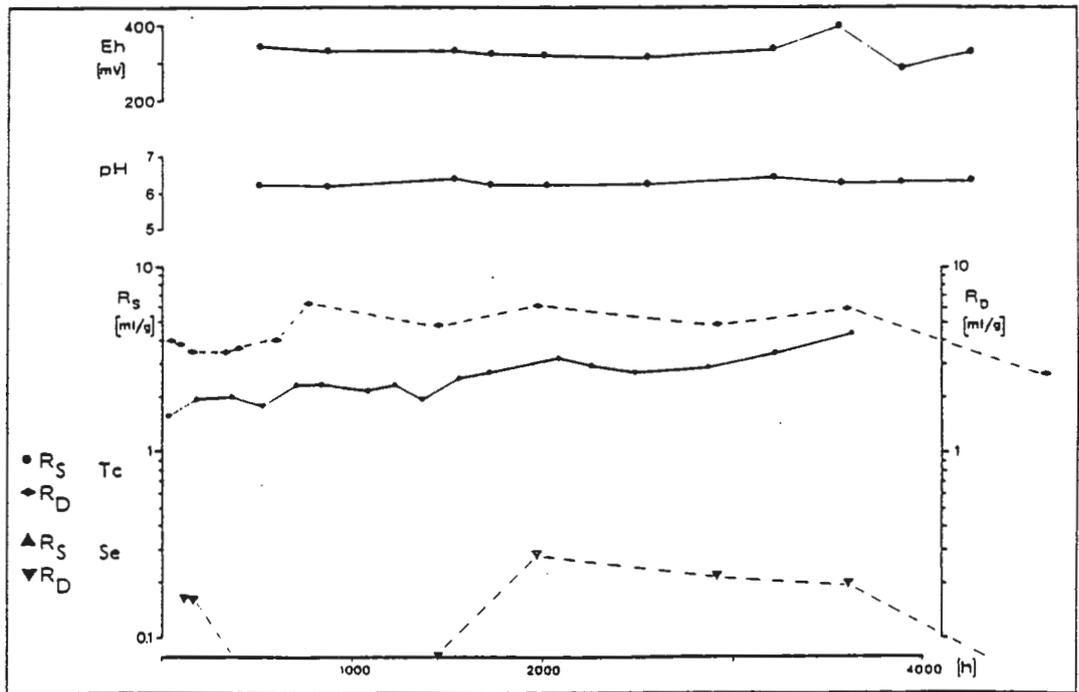


Abb. 55: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Heersumer Schichten; Korngrößenfraktion 2-6mm; Säulenlänge 50cm.

Das Adsorptions-Desorptionsverhalten der Radionuklide mit dem Fladentonstein (Abb. 56, 57 und 58) läßt für alle drei untersuchten Kornfraktionen ein ähnliches Verhalten erkennen. Für Selen wurden bei gleichfalls vorhandener physiko-chemischer Stabilität  $R_S$ -Werte gemessen, die um den Wert  $R_S = 0,1$  (ml/g) schwanken. Die Desorptionswerte bei der mittleren (2-6 mm) und kleinen (0,2 - 2 mm) Kornfraktion liegen nach einem anfänglich ähnlichen Niveau deutlich höher. Technetium ist bei allen drei untersuchten Kornfraktionen des Fladentonsteins nach weniger als 1000 Std. im umlaufenden Wasser nicht mehr nachweisbar. Die in der mittleren bzw. kleinsten Fraktion durchgeführte Desorption zeigt keine meßbare Freisetzung. In der 100-cm-Säule wurde der Adsorptionsversuch fortgesetzt (Abb. 58). Durch eine fortlaufende Belüftung der Säule, mit einer stetigen Anreicherung von Sauerstoff im umlaufenden Wasser wurde versucht, über eine Oxidation die Freisetzung von Technetium zu erreichen, jedoch bewirkt offensichtlich die große Gesteinsmasse eine so große Redox-Pufferung, daß in dem Beobachtungszeitraum keine Wirkung zu erkennen ist.

Zusammenfassend läßt sich aus den vorstehend beschriebenen Beobachtungen bei den Umlaufsäulenversuchen (Abb. 49-58) erkennen, daß das Radionuklid Selen in den untersuchten Gesteinen und verschiedenen Kornfraktionen kaum Unterschiede im Adsorptionsverhalten zeigt.

Für das Radionuklid Technetium zeigen sich jedoch erhebliche Differenzen, sowohl bezüglich der unterschiedlichen Kornfraktionen als auch bezogen auf die verschiedenen Gesteine. Mit Ausnahme des Fladentonsteins, wo in allen drei Kornfraktionen eine vollständige Festlegung zu beobachten ist, kann allgemein eine Korngrößenabhängige Festlegung erkannt werden, d.h. in der groben Kornfraktion (6-20mm) erfolgt generell eine vollständige Festlegung. Zur möglichen Erklärung dieser Beobachtung erfolgte an den 100cm-Säulen, gefüllt mit dem Hangenden und Liegenden Erz, und der 50cm

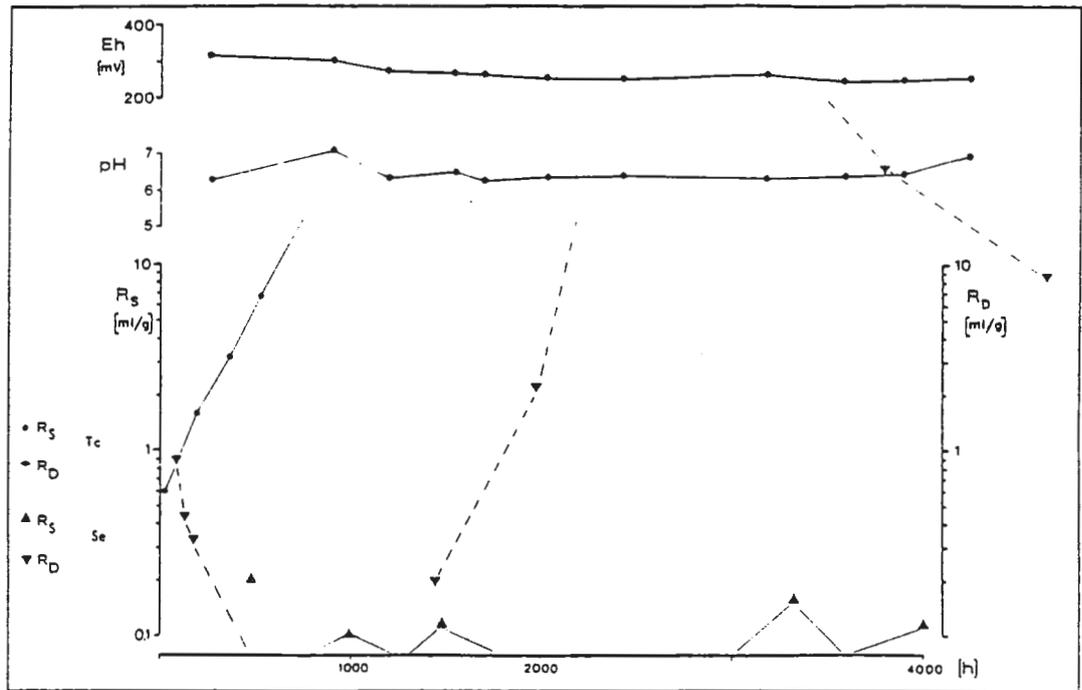


Abb. 56: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Fladentonstein; Korngrößenfraktion 0,2-2mm; Säulenlänge 20cm.

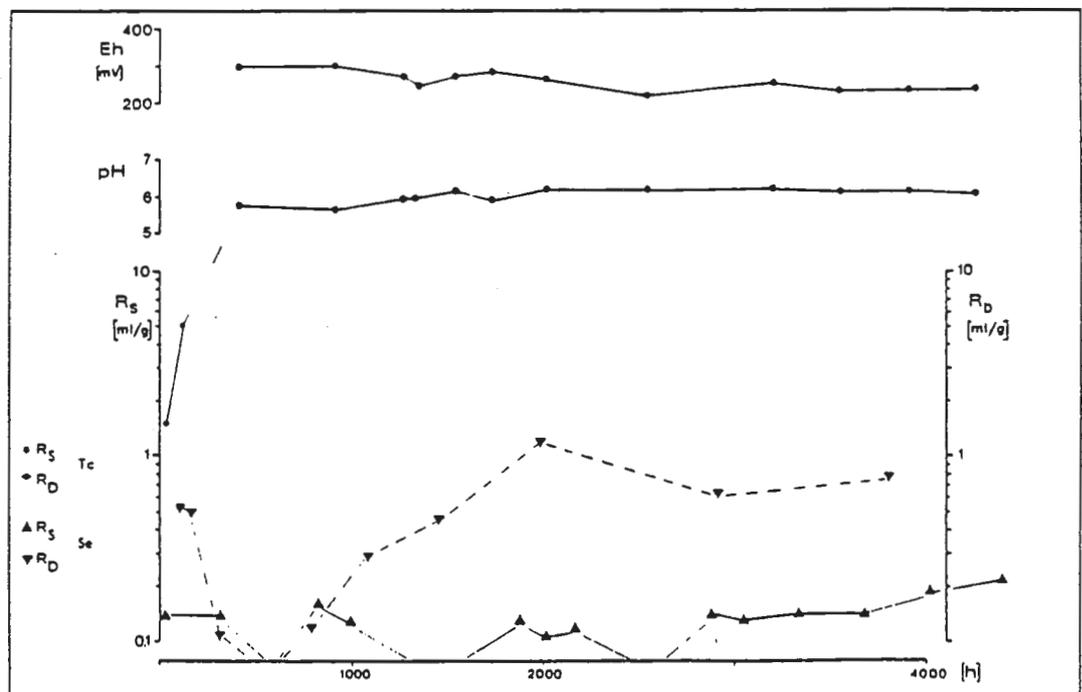


Abb. 57: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Fladentonstein; Korngrößenfraktion 2-6mm; Säulenlänge 50cm.

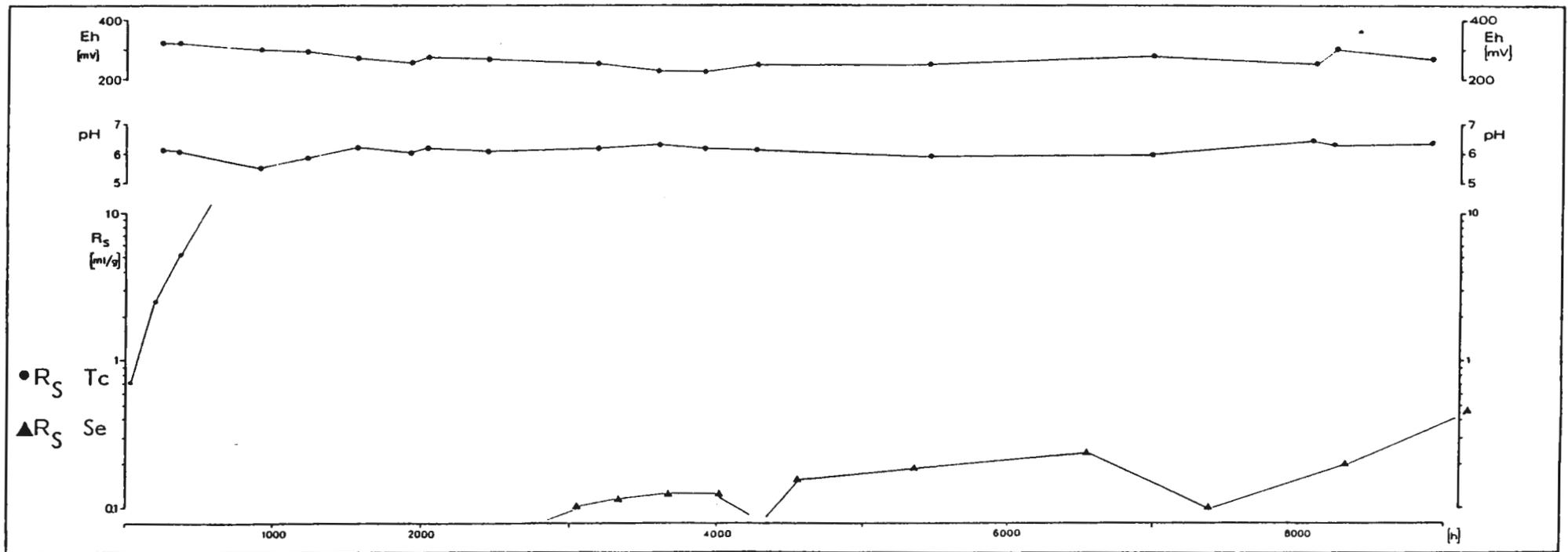


Abb. 58: Zeitabhängige Entwicklung der  $R_S$ -Werte in Umlaufsäulen für die Radionuklide Technetium und Selen. Gestein: Fladentonstein; Korngrößenfraktion 6-20mm; Säulenlänge 100cm.

Säule, gefüllt mit dem Gestein Fladentonstein, die Bestimmung der Konzentrations-Orts-Verteilung durch eine schichtweise Zerlegung und die nachfolgende Messung (Abb. 59-61).

Während in den 100cm-Säulen, gefüllt mit Hangenden und Liegenden Erz (Abb. 59 u. 60), eine nahezu gleichmäßige Aktivitätsverteilung über die Säulenlänge zu erkennen ist, erkennt man beim Fladentonstein (50cm-Säule, Abb. 61) in Fließrichtung des umlaufenden Wassers eine fast gleichmäßige Zunahme des festgelegten Radionuklids. Diese in den drei zerlegten Umlaufsäulen ermittelte Konzentrations - Orts - Verteilung belegt eindeutig eine gesteinsgebundene Sorption bzw. Festlegung.

Nach unserer Ansicht liegt die Ursache für diese Festlegung des Radionuklids Technetium in den Pyrit-Gehalten der betrachteten Gesteine, die lokal das Redoxpotential herabsetzen und so zu einer Reduktion des mobilen Pertechnetats ( $TcO_4^-$ ) und Festlegung als  $TcO_2$  bzw.  $TcO(OH)_2$  führt. Ausgehend von den von [REDACTED] (1984) ermittelten Schwefelgehalten der beprobten Gesteine (vgl. Tab. 2, Abs. 2.1.4.), die in Form von Pyrit vorliegen, beträgt bei der eingebauten Masse des Gesteins die Pyritmenge in den unterschiedlich mit Gesteinsmaterial gefüllten Säulen:

Gestein / Säulenlänge	Fladentonst.	Hang. Erz	Lieg. Erz	Heersumer Sch.
100cm	126.44g	9.27g	18.07g	-
50cm	63.8g	4.6g	7.45g	29.3
20cm	27.12g	1.97g	3.32g	-

Dem stehen bei den Schüttelversuchen mit 10g Gesteinseinwaage Pyritgehalte gegenüber von:

0.12g	0.008g	0.014g	0.06g
-------	--------	--------	-------

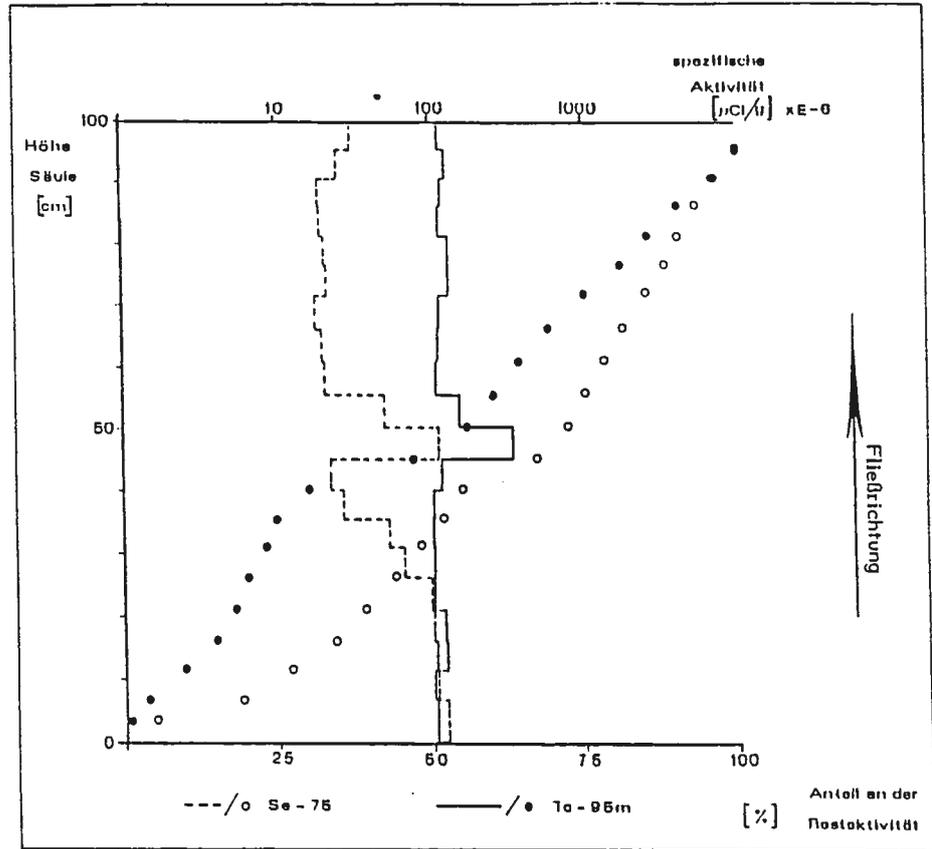


Abb. 59: Konzentrations-Orts-Verteilung der Radionuklide Technetium und Selen in der 100cm-Umlaufsäule; Gestein: Hangendes Erz; Korngrößenfraktion 6-20mm.

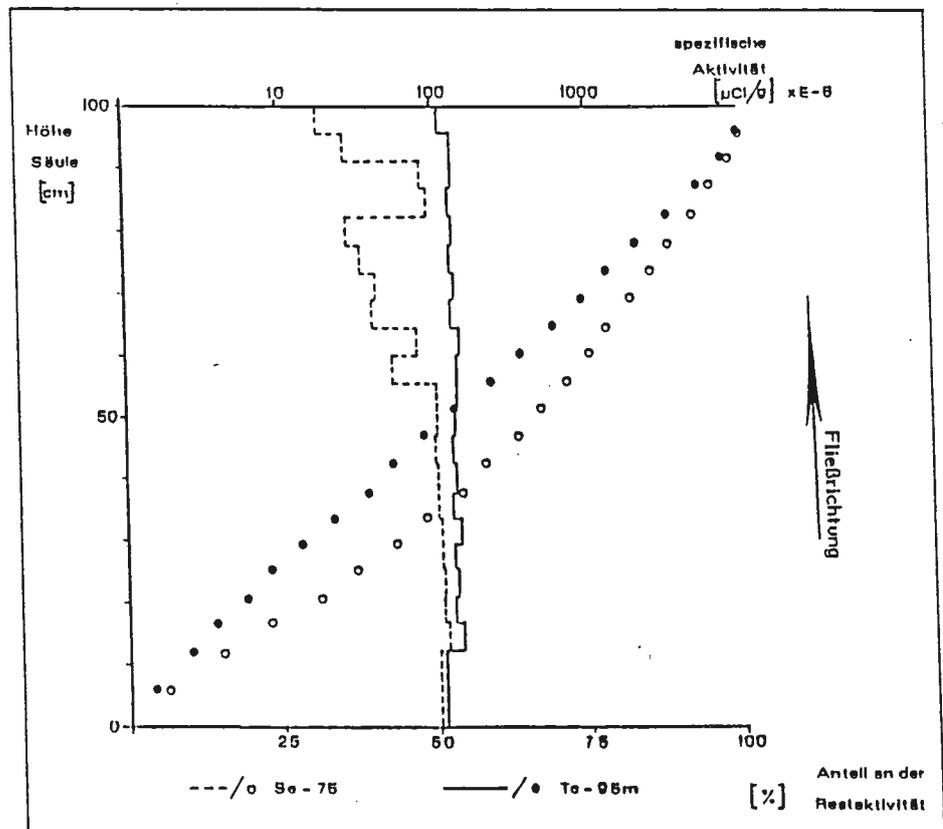


Abb. 60: Konzentrations-Orts-Verteilung der Radionuklide Technetium und Selen in der 100cm-Umlaufsäule; Gestein: Liegendes Erz; Korngrößenfraktion 6-20mm

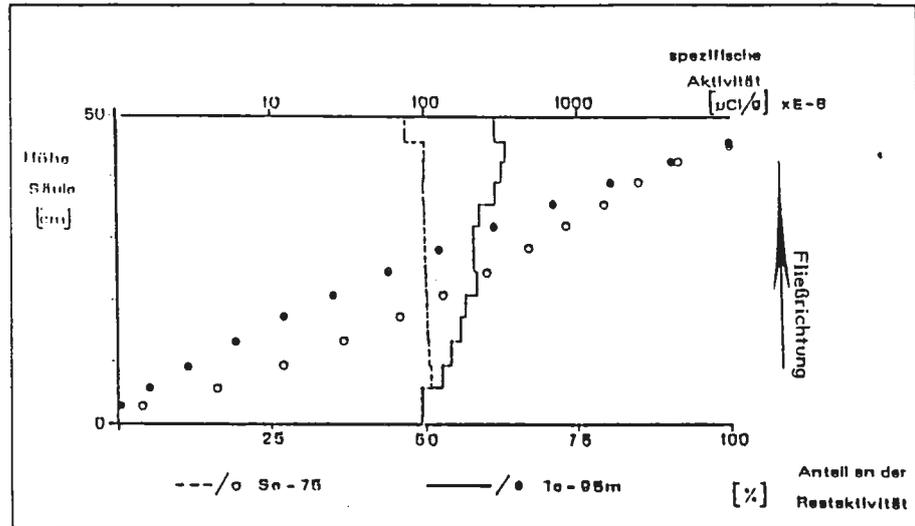


Abb. 61: Konzentrations-Orts-Verteilung der Radionuklide Technetium und Selen in der 50cm-Umlaufsäule; Gestein: Fladentonstein; Korngrößenfraktion 2-6mm.

Diese Angaben unterstützen, unter der Annahme des Pyrit-Einflusses, die o.b. Versuchsergebnisse, wobei bei der nur teilweisen Festlegung des Technetiums in dem Gestein Heersumer Schichten (50cm - Säule), die höhere Aufgabeaktivität zu berücksichtigen ist (vgl. Tab. 7, Abs.4.5.1. ), die eine entsprechend höhere spez. Aktivität bedingt (s.a. Tab. 98).

Kornfraktion (Säulenlänge)	20-6mm 100cm	6-2mm 50cm	2-0.2mm 20cm
Fladentonstein			
spez. Aktiv. (nCi/ml)	2.06	2.82	1.87
spez. Aktiv. (nCi/g)	0.93	1.48	1.30
Hang. Erz			
spez. Aktiv. (nCi/ml)	1.94	2.64	1.79
spez. Aktiv. (nCi/g)	0.86	1.41	1.22
Lieg. Erz			
spez. Aktiv. (nCi/ml)	2.12	2.55	1.76
spez. Aktiv. (nCi/g)	0.77	1.5	1.27
Heersumer Schichten			
spez. Aktiv. (nCi/ml)	-	2.65	-
spez. Aktiv. (nCi/g)	-	1.5	-

Tab. 98 : Masse- und Volumenbezogene spez. Aktivitäten in den Umlaufsäulen

Demgegenüber stand bei den Schüttelversuchen bei einer spez. Aktivität von 25 nCi/g Gestein bzw. 10 nCi/ml Wasser eine erheblich größere Anzahl aktiver Atome zur Verfügung. Es ließ sich jedoch bereits bei den Ergebnissen der Schüttelversuche erkennen, daß bei einer geringeren Radionuklidkonzentration bzw. bei einer Abnahme des V/M-Verhältnisses die Adsorptionswerte bei den hier betrachteten Gesteinen des Grubengebäudes zunahm (vgl. Abb. 12 u. 16; Abs. 5.1).

Das Vorliegen von Pyrit im Fladentonstein wurde bestätigt nach Anfertigung eines Anschliffes (Abb. 62-67). Der fein verteilt vorliegende, sekundär gebildete Pyrit, zu erkennen durch das hohe Reflexionsvermögen, tritt hauptsächlich gebunden an Schalen bzw. Schalenbruchstücken auf. Ein Teil liegt vor in sogenannten "framboids", deren Entstehung nach [REDACTED] als eine Vererzung von Schwefelbakterien gedeutet wird. In den Randbereichen einiger Pyritkristalle zeigen sich, auf den Abb. nur schlecht erkennbar, Auflösungserscheinungen, bedingt durch eine hier beginnende Oxidation des Pyrits. Es läßt sich annehmen, daß der in der groben Kornfraktion vorliegende Pyrit durch seine umhüllende Gesteinsmatrix besser gegen oxidierende Lösungen geschützt wird, als dies in den Kornfraktionen 2-6mm und vor allem in der Kornfraktion 0.2-2mm der Fall ist.

Der explizite Nachweis einer durch Pyrit bedingten Festlegung des Technetiums war im Rahmen dieser Untersuchungen nicht möglich, da die vorliegenden Konzentrationen des Radionuklids den Einsatz herkömmlicher Untersuchungsverfahren nicht gestattet.



Abb. 62: Fladentonstein (Anschliff; 80 fache Vergrößerung);  
fein verteilter Pyrit (erkennbar am hohen Reflexions-  
vermögen) neben einem "framboid"(s.Abb. 63) in  
calcitisch-toniger Grundmasse; einzelne Schalenbruchstücke.

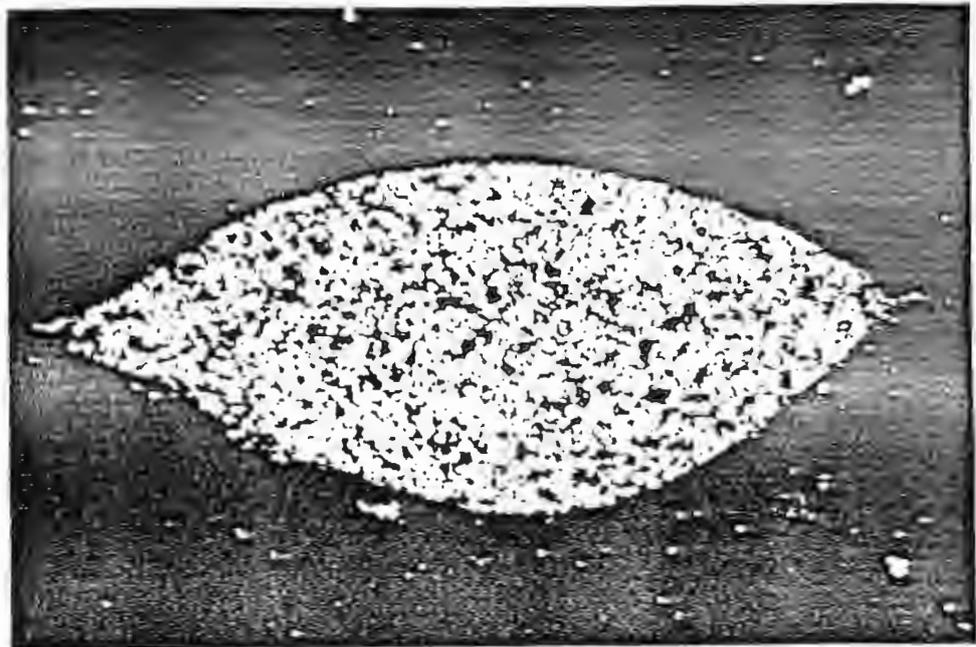


Abb. 63: Fladentonstein (Anschliff; 320fache Vergrößerung);  
"framboid", zusammengesetzt aus einer großen Anzahl  
z.T. idiomorpher Pyrit-Kristalle



Abb. 64: Fladentonstein (Anschliff; 80fache Vergrößerung);  
tonig-kalkige Matrix mit fein verteilten Pyrit; in  
der Mitte der Abb. zwei "framboids".



Abb. 65: Fladentonstein (Anschliff; 80fache Vergrößerung);  
tonig-kalkige Matrix mit fein verteilten Pyrit, z.T.  
in Ton-Konkretionen gebunden an Schalenbruchstücke  
gehäuft auftretend.



Abb. 66: Fladentonstein (Anschliff; 320fache Vergrößerung);  
Pyrit, z.T. idiomorph in tonig-kalkiger Matrix;  
Auftreten des Pyrit teilweise neben organischen  
Bestandteilen (in der Abb. schwarz, d.h. ohne Reflexions-  
vermögen).

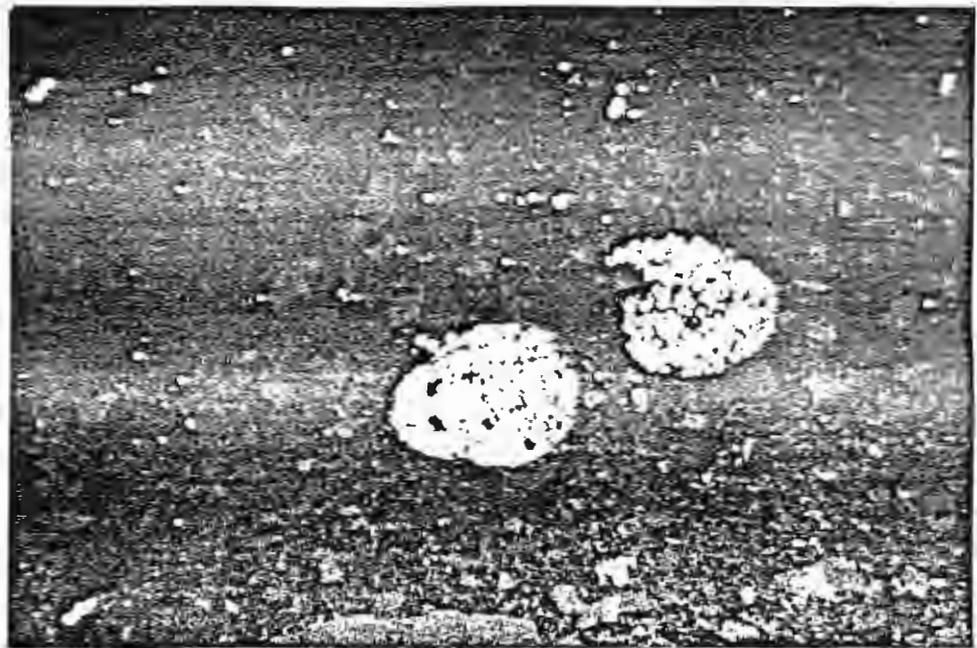


Abb. 67: Fladentonstein (Anschliff; 320fache Vergrößerung);  
einzelne Pyrit-Kristalle in tonig-kalkiger Matrix neben  
zwei "framboids".

#### 5.4. Diffusionsversuche

Von den an 19 Gesteinsproben durchgeführten Untersuchungen zum Diffusionsverhalten der Radionuklide Technetium und Selen sind in den Abb. 68 - 96 die zeitlichen Radionuklidkonzentrationsänderungen (Durchbruchkurven) in den mit primär inaktivem Wasser gefüllten Gefäßhälften dargestellt. Aus dem linearen Anstieg der Durchbruchkurven wurden die in Tab. 99 aufgeführten Diffusions- und Verteilungskoeffizienten ( $D$  und  $K_D$ ), sowie die Gesteinskapazitätsfaktoren ( $\alpha$ ) errechnet. Einige Systeme zeigen einen Durchbruchverlauf, der nicht mit den Gesetzen des diffusiven Transports beschreibbar ist. Der Durchbruchverlauf war zwar meß- und darstellbar, eine Bestimmung der Diffusions- und Verteilungskoeffizienten war jedoch nicht möglich. In anderen Systemen, hauptsächlich bei den Gesteinen der Erzkalk-Serie, des Fladentonsteins und der Heersumer Schichten, konnte insbesondere für Technetium kein Durchbruch erkannt werden. In diesen Zellen ließen sich zwar wiederholt vereinzelte Technetiumdurchbrüche messen, die aber nur sehr geringe Impulsraten zeigten und in den nachfolgenden Messungen nicht mehr nachweisbar waren. Möglicherweise kommt es hier durch die Reduktion des Tc(VII) zu Tc(IV) zu einer Festlegung, während bei den gleichen Systemen für Selen ein Durchbruch beobachtet wurde. Nach Versuchsende erfolgte zur Betrachtung der Konzentrations - Orts - Verteilung eine Zerlegung der entsprechenden Gesteinsplättchen. Hierzu wurden die Gesteine mit einem zu einer Fräse veränderten Bohrer ( $\varnothing 10\text{mm}$ ) schichtweise (0.5mm) abgetragen und der Staub gemessen.

Die ermittelten Diffusionskoeffizienten (Tab. 99) erscheinen für die untersuchten Gesteine, vor allem im Hinblick auf die relativ hohen Porositäten als zu klein. Dies gilt allgemein auch im Vergleich zu den Ergebnissen aus den Schüttelversuchen für die ermittelten Verteilungskoeffizienten.

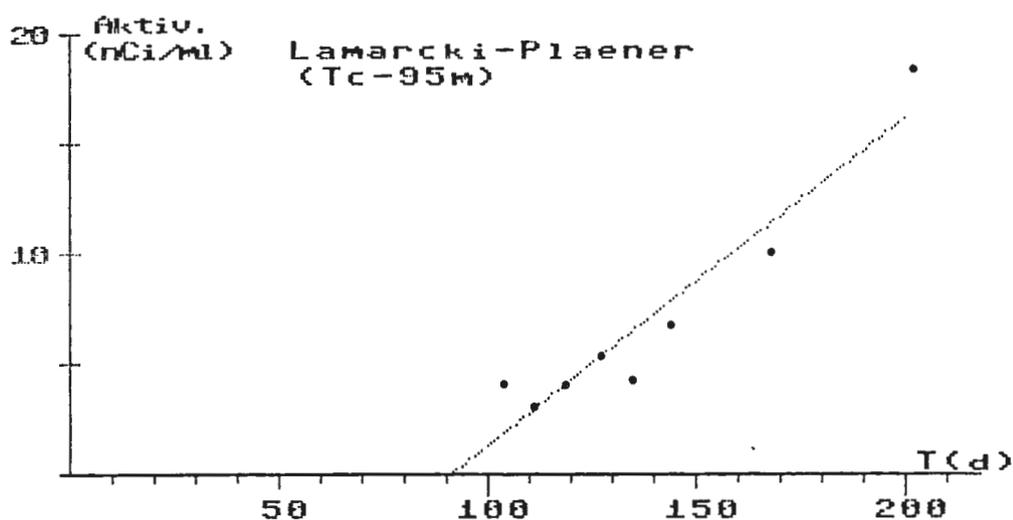


Abb. 68: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lamarcki-Pl./Söhle Wasser.

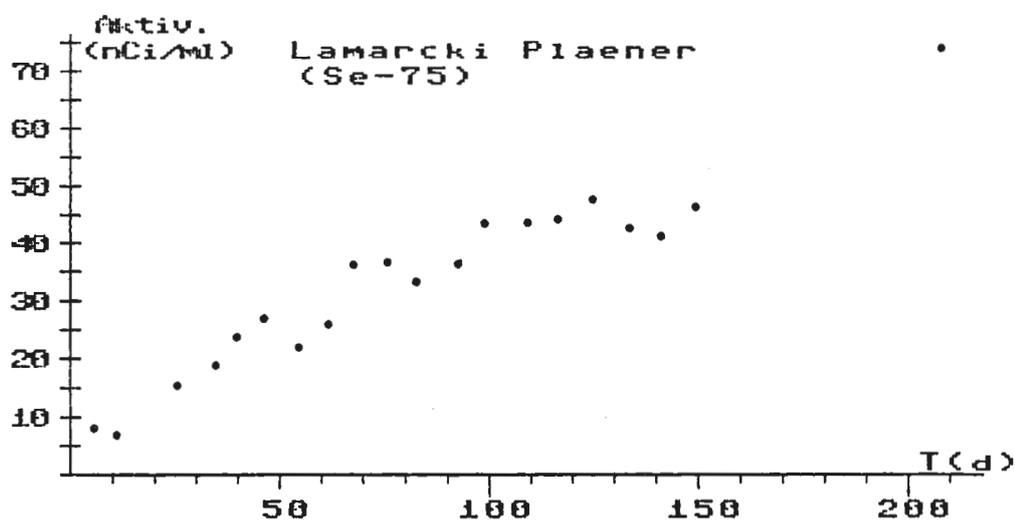


Abb. 69: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lamarcki-Pl./Söhle Wasser.

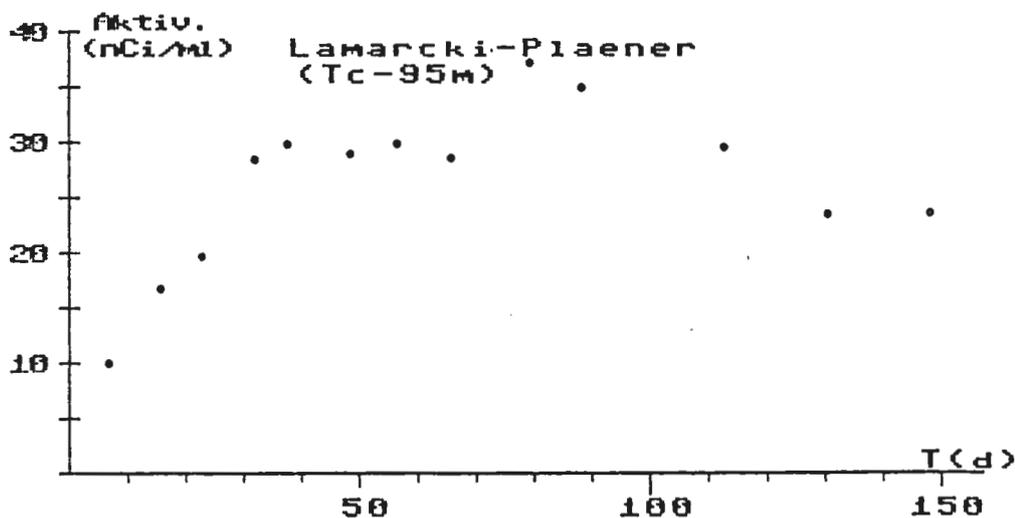


Abb. 70: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lamarcki-Pl./Söhle Wasser

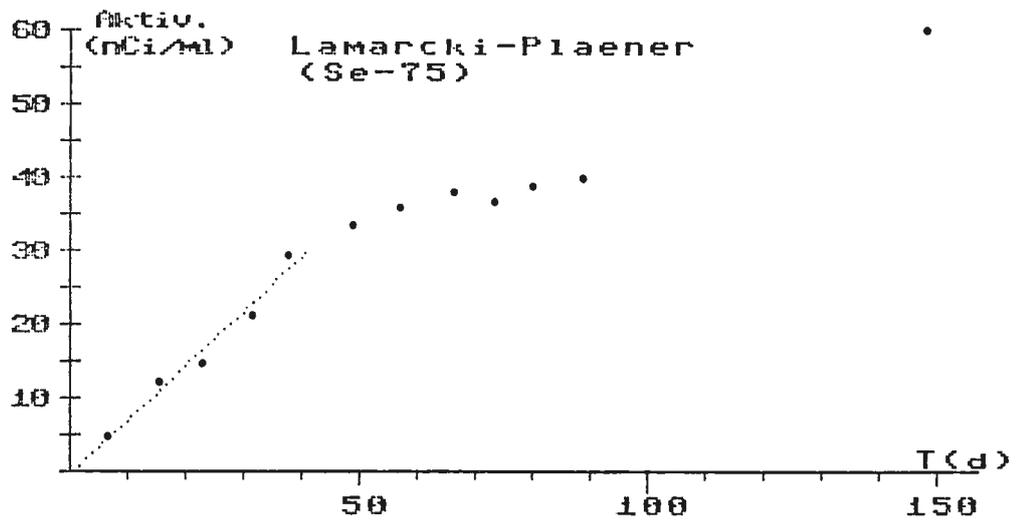


Abb. 71: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lamarcki-Pl./Söhle Wasser.

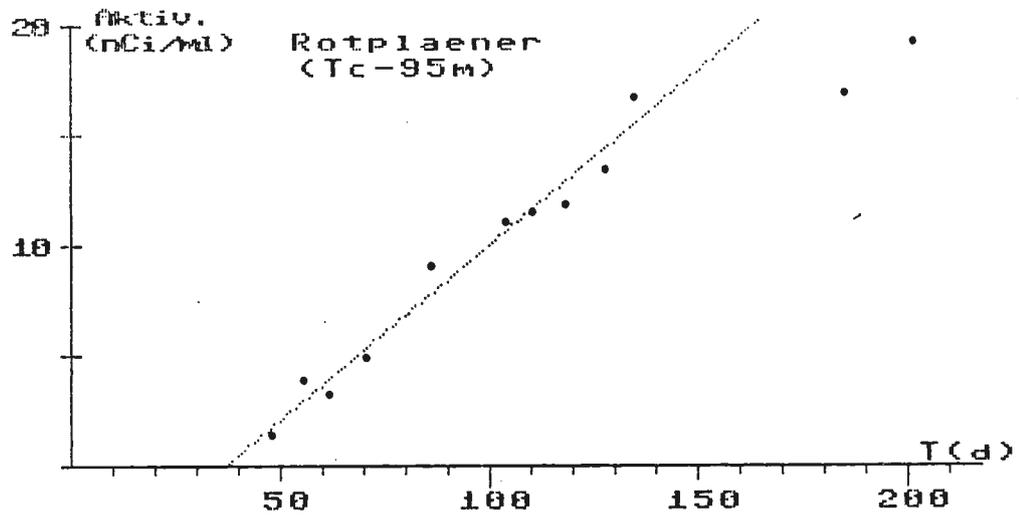


Abb. 72: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rotpläner/Söhle Wasser.

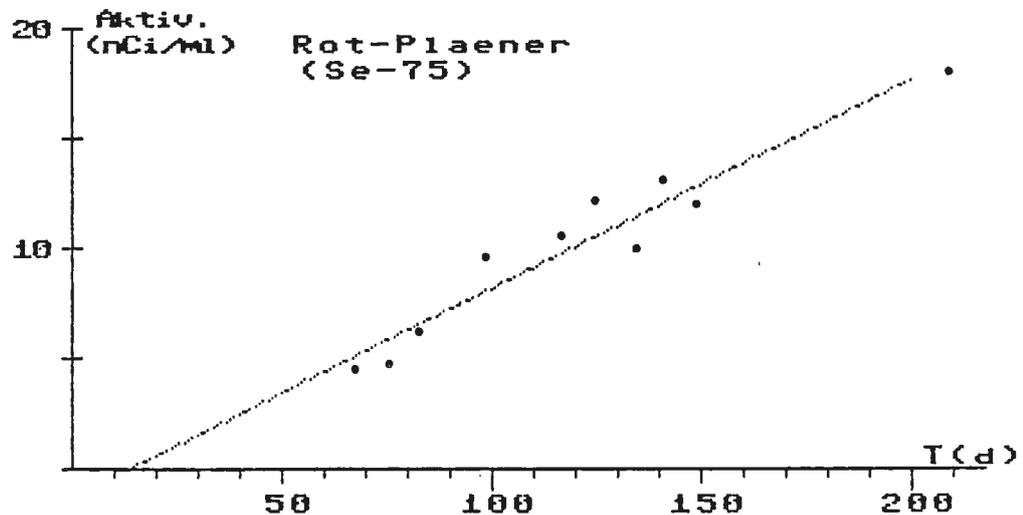


Abb. 73: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rotpläner/Söhle Wasser

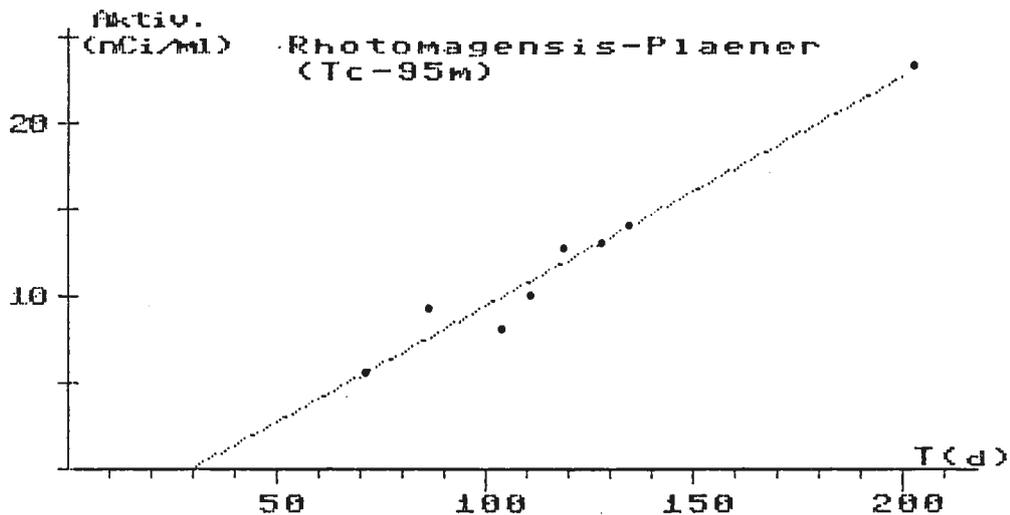


Abb.74 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rhotomagensis-Pl./Söhlde Wasser.

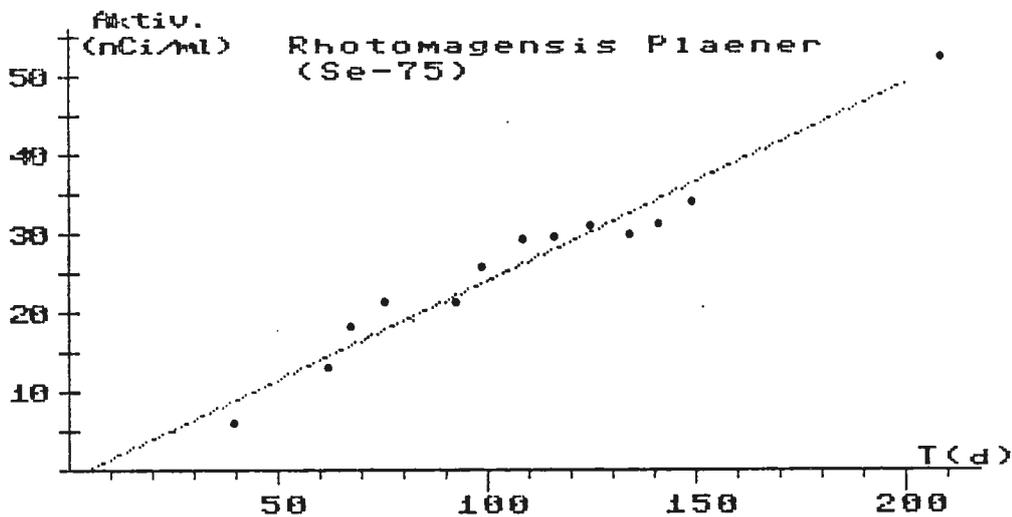


Abb.75 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rhotomagensis-Pl./Söhlde Wasser.

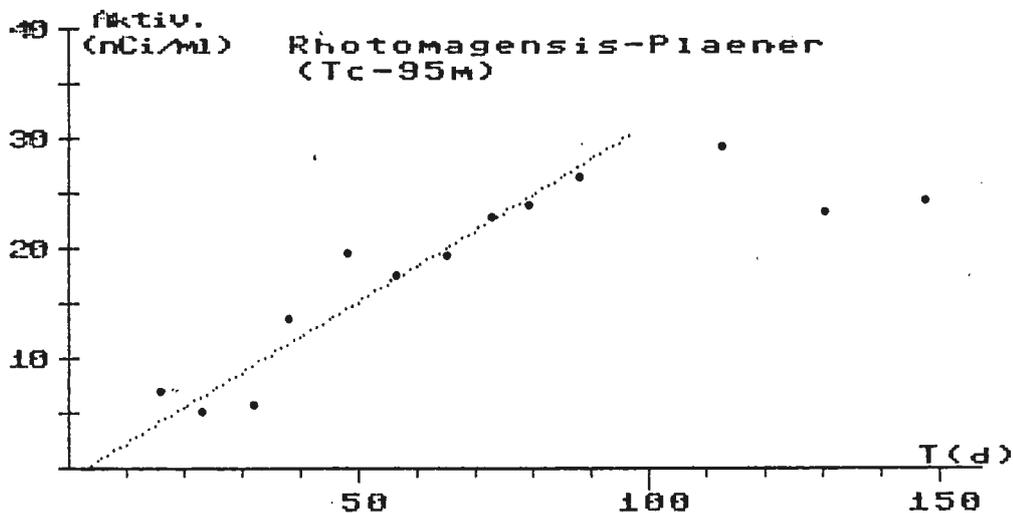


Abb.76 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rhotomagensis-Pl./Söhlde Wasser

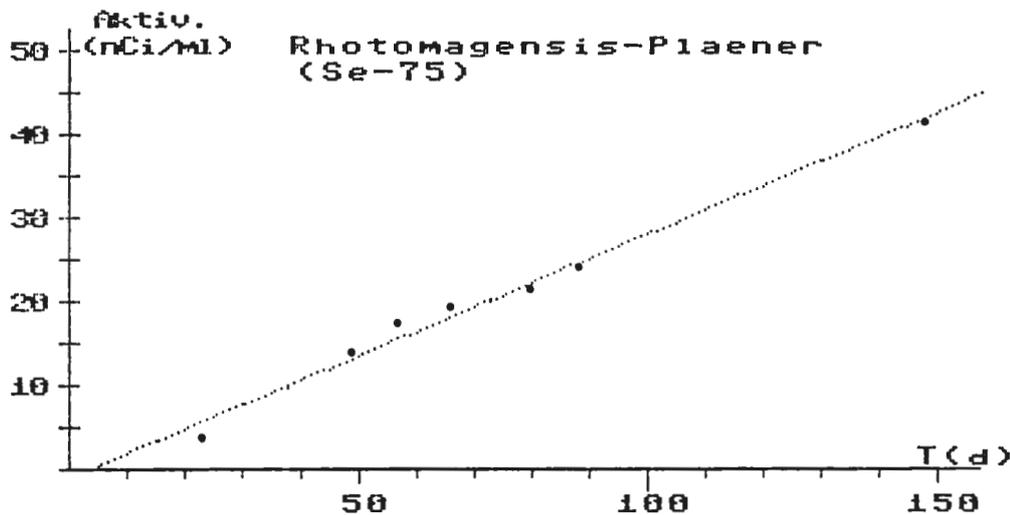


Abb. 77: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Rhotomagensis-Pl./Söhlde Wasser.

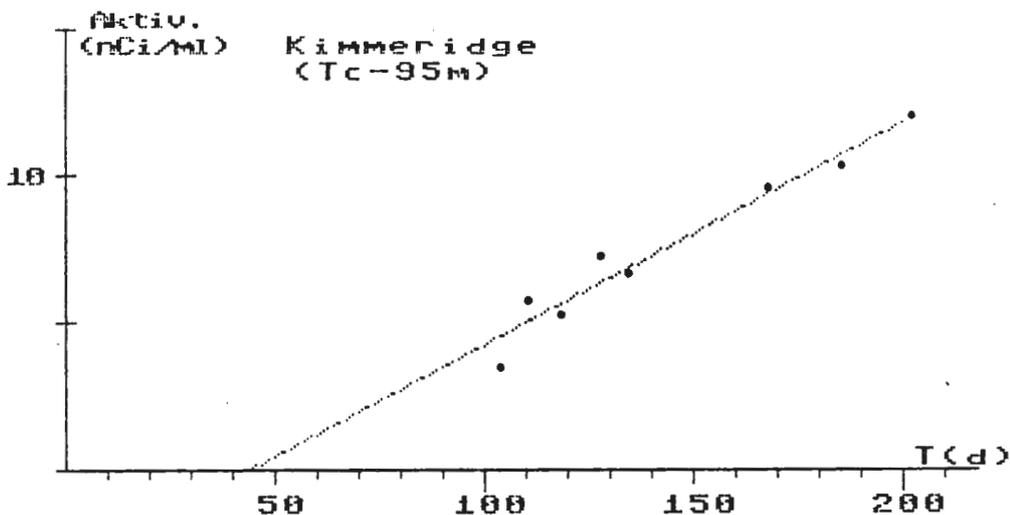


Abb. 78: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Kimmeridge/Wasser der Str.670

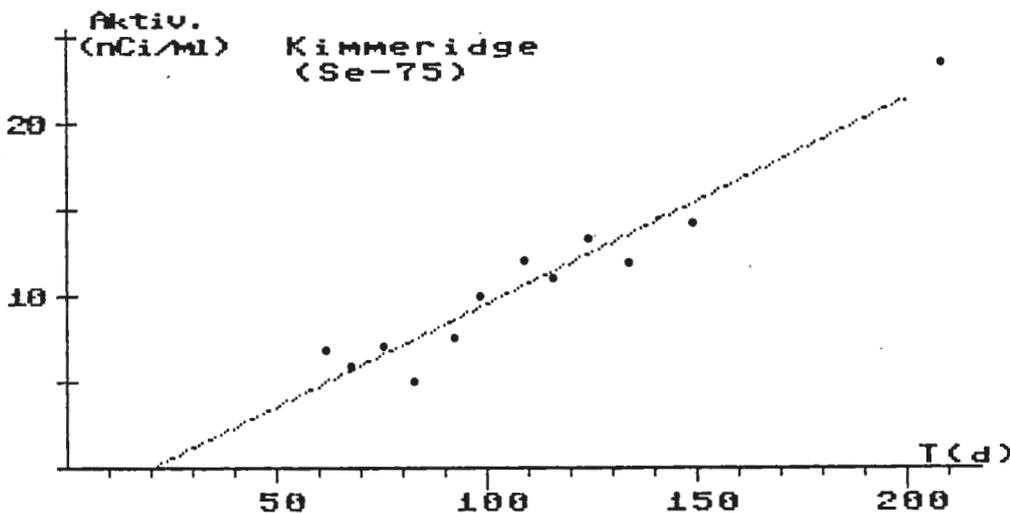


Abb. 79: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Kimmeridge/Wasser der Str.670.

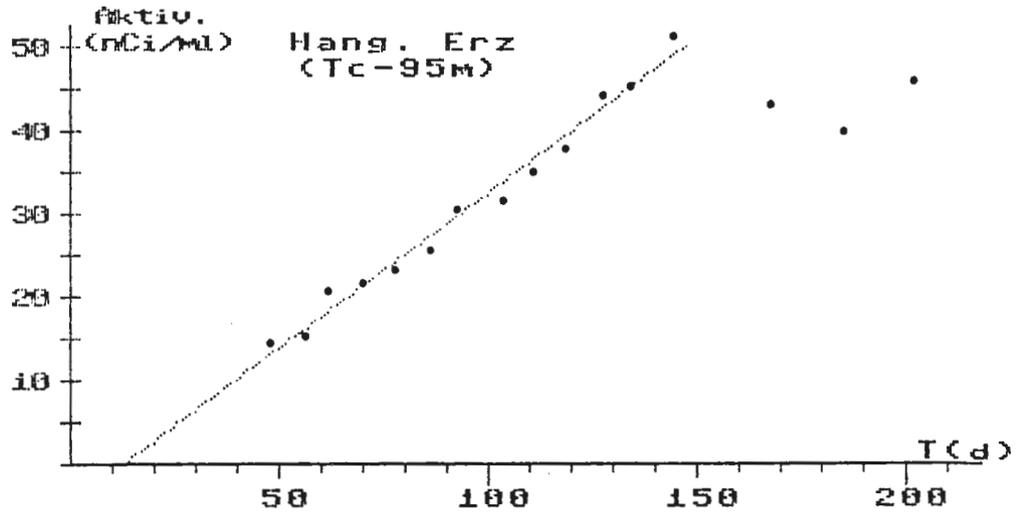


Abb.80 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Hang.Erz/Wasser der Str.670.

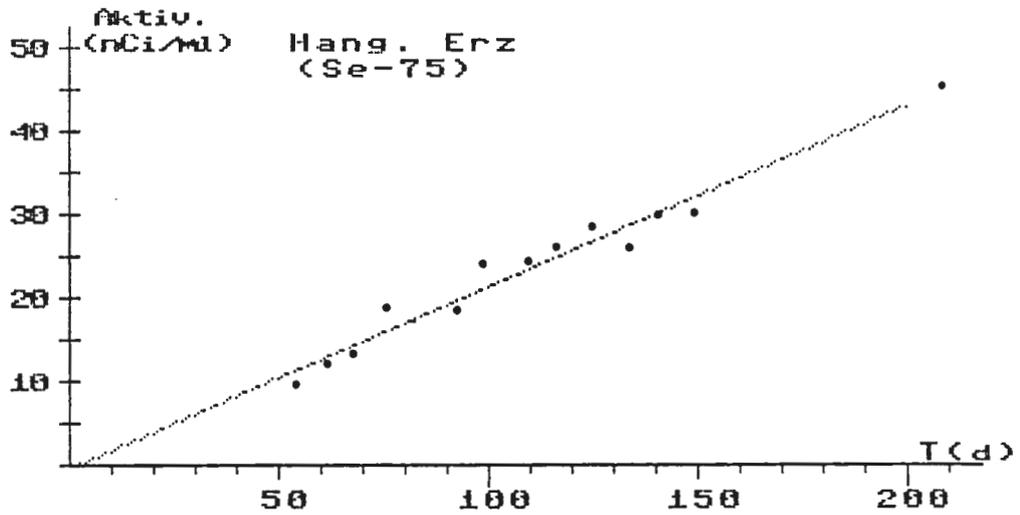


Abb.81 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Hang.Erz/Wasser der Str.670

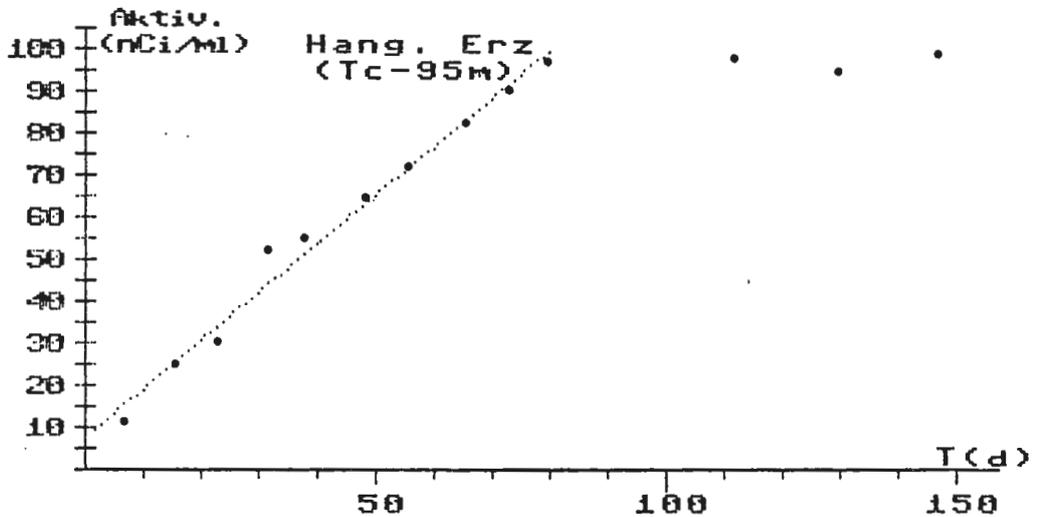


Abb.82 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Hang.Erz/Wasser der Str.670.

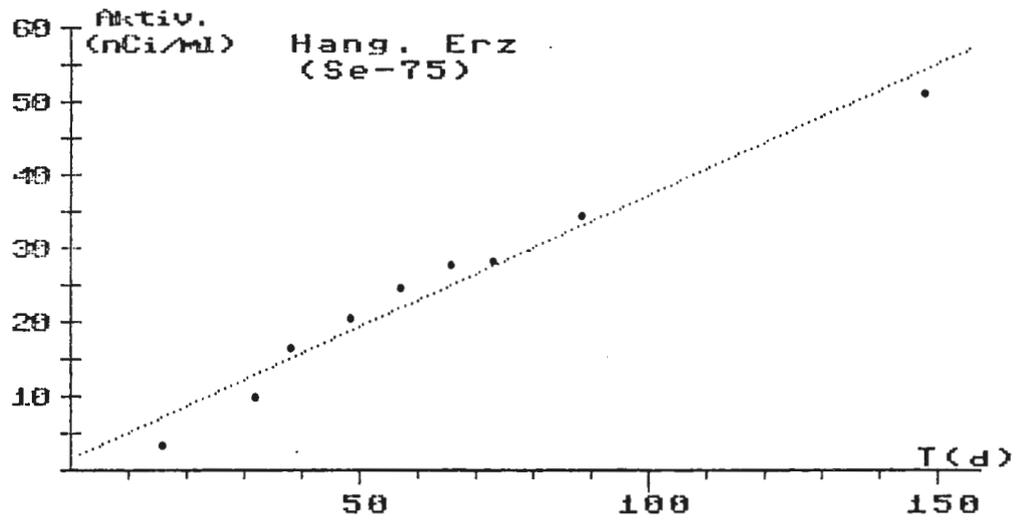


Abb.83 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Hang.Erz/Wasser der Str.670.

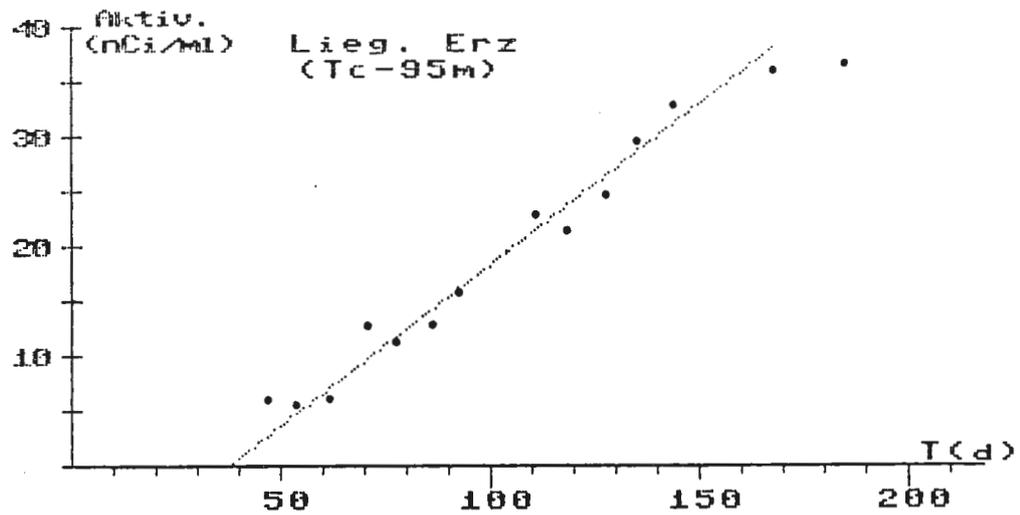


Abb.84 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lieg.Erz/Wasser der Str.670

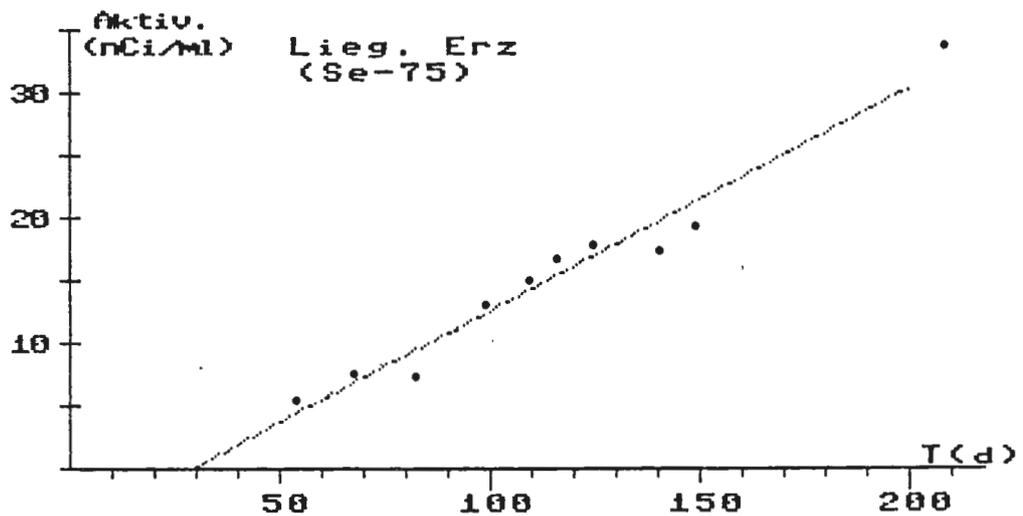


Abb. 85: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lieg.Erz/Wasser der Str.670.

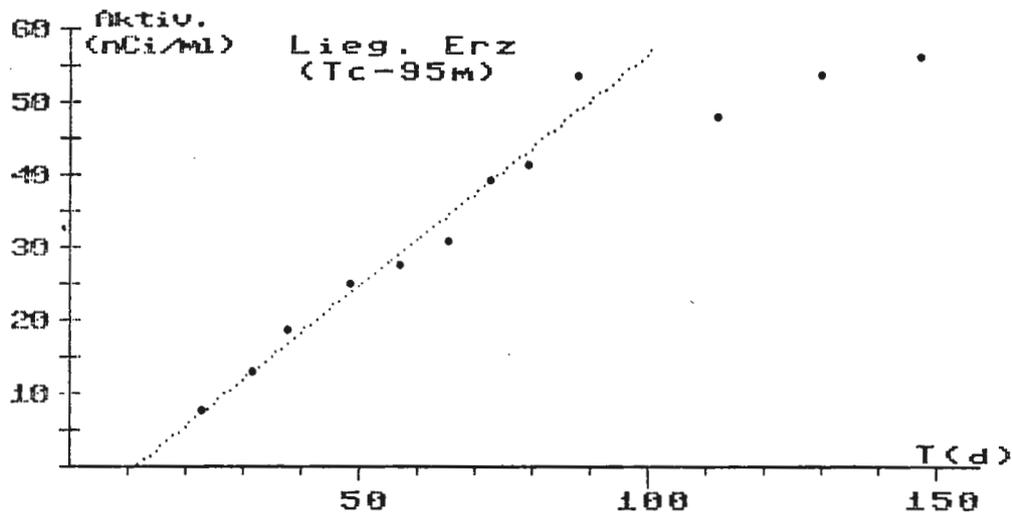


Abb. 86: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lieg.Erz/Wasser der Str.670.

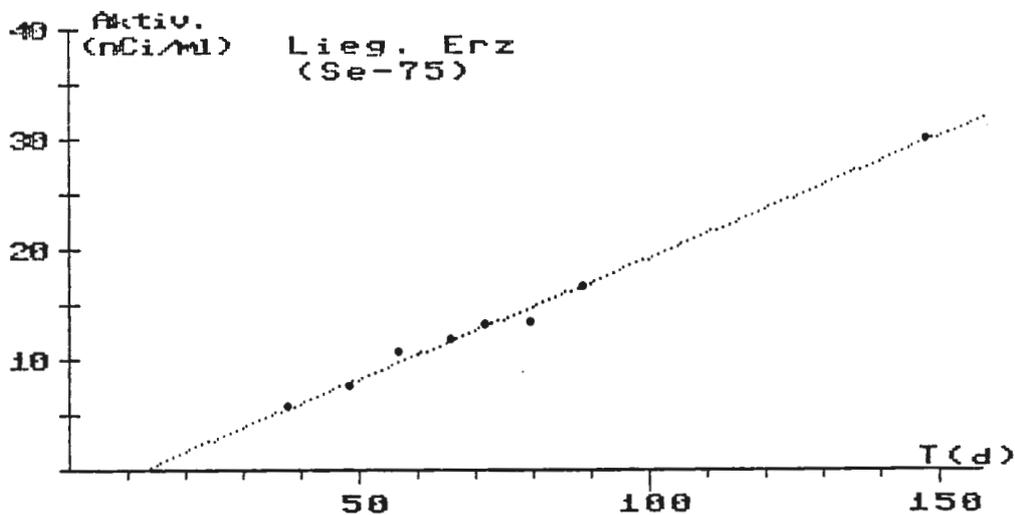


Abb. 87: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Lieg.Erz/Wasser der Str.670

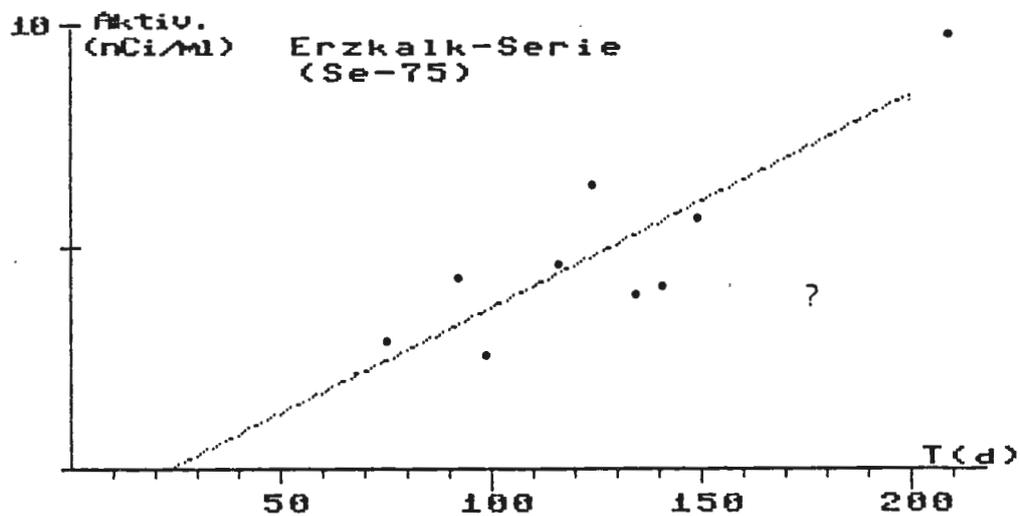


Abb. 88: Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Erzalk-Serie/Wasser der Str.670.

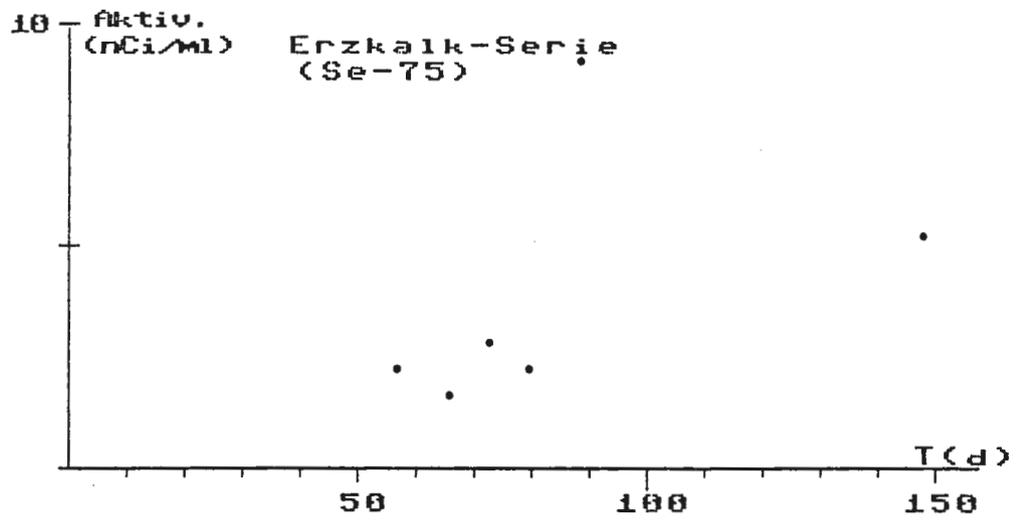


Abb.89 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Erzkaalk-Serie/Wasser der Str.670.

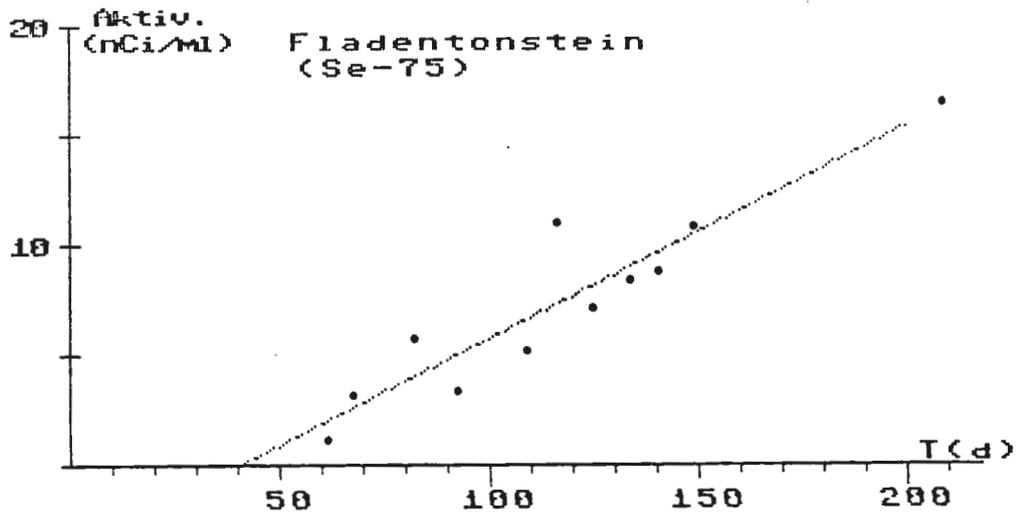


Abb.90 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Fladentonstein/Wasser der Str.670

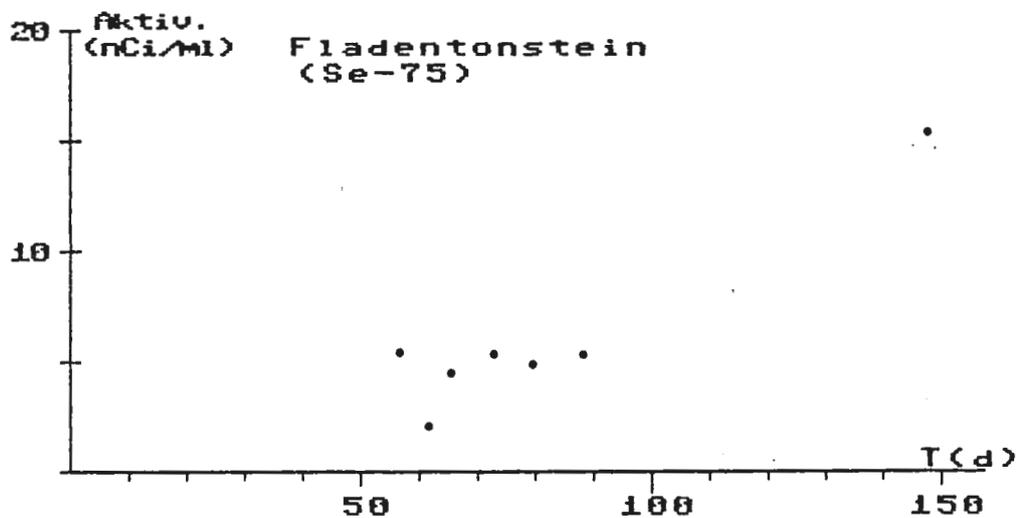


Abb.91 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Fladentonstein/Wasser der Str.670.

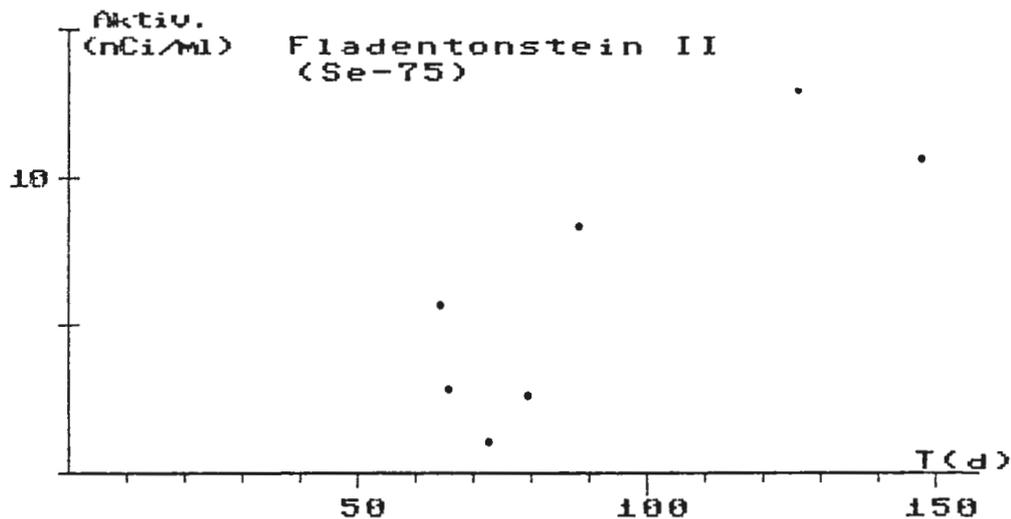


Abb.92 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Fladentonstein/Wasser der Str.670.

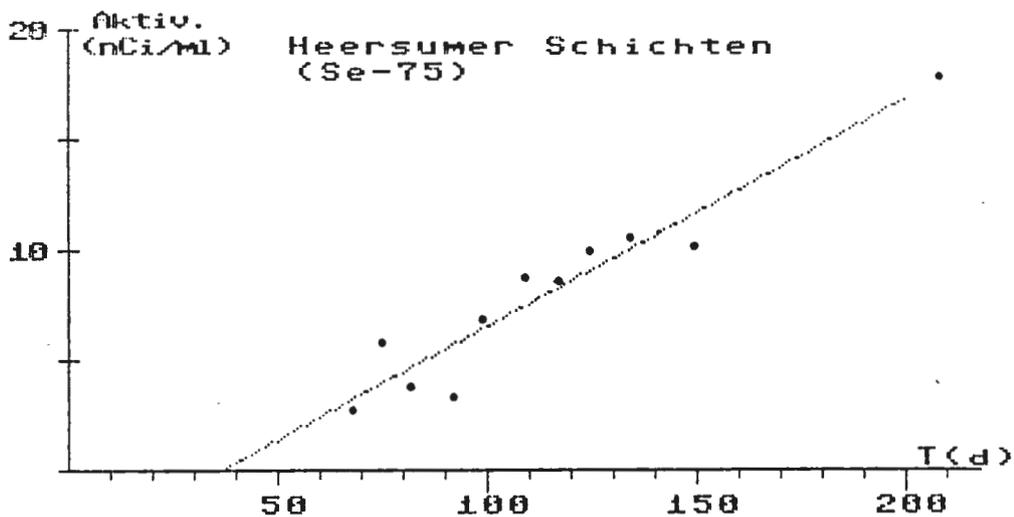


Abb.93 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Heersumer Sch./Wasser der Str.670

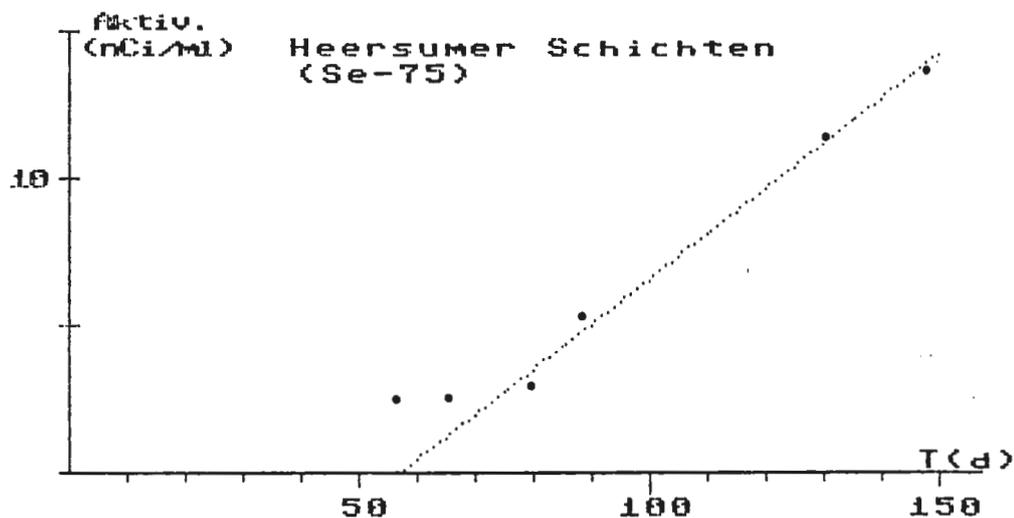


Abb.94 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Heersumer Sch./Wasser der Str.670.

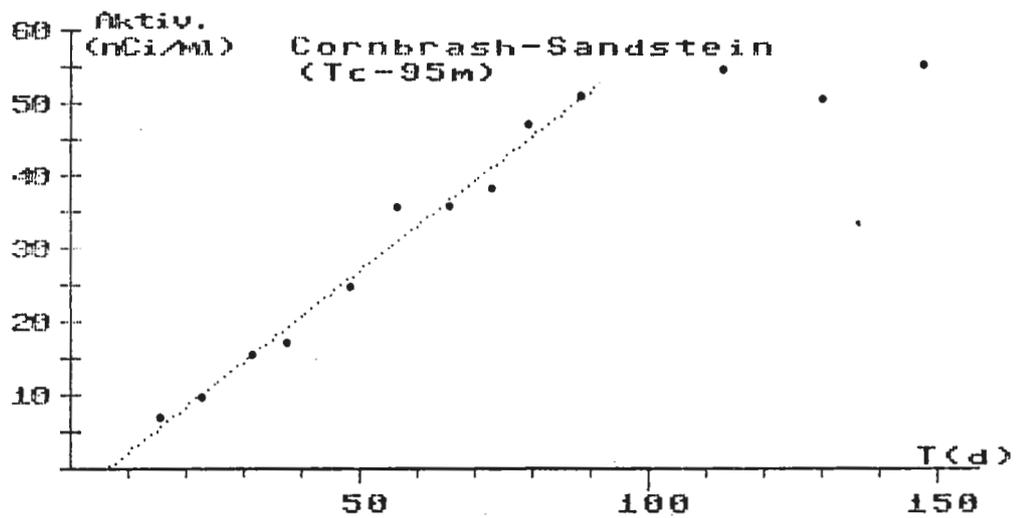


Abb.95 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Tc-95m) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Cornbrash-Sdst./Wasser der Str.670.

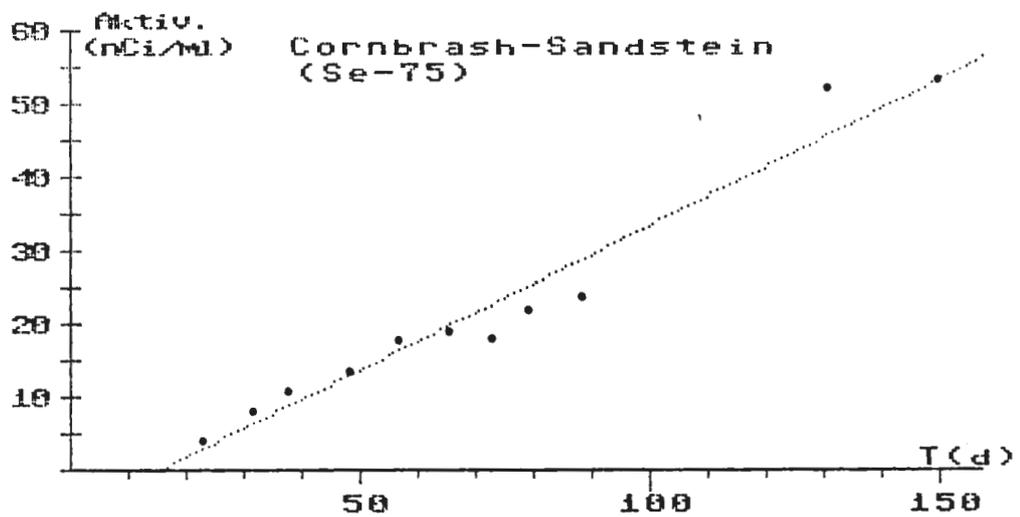


Abb.96 : Zeitlicher Konzentrations - Verlauf (Se-75) in der inaktiven Gefäßhälfte im System Cornbrash Sdst./Wasser der Str.670

GESTEIN	NUKLID	D (cm <sup>2</sup> /s)	K <sub>D</sub> (ml/g)	ALPHA (errech.)	Abb.	ALPHA (Auslaug.)	K <sub>D</sub> (ml/g)
Lamarcki Pl.	Tc-95m	1.7 E-8	.63	1.9	68		
	Se-75	-	-	-	69		
	Tc-95m	-	-	-	70	0.5	0.11
	Se-75	9.4 E-8	0	0.19	71	0.11	0
Rotpläner	Tc-95m	1.6 E-8	.2	0.61	72	0.153	0.03
	Se-75	7.3 E-9	.01	0.11	73	0.05	0
Rhotom.-Pl.	Tc-95m	1.5 E-8	.07	0.30	74	0.266	0.06
	Se-75	2.2 E-8	0	0.08	75	0.09	0
	Tc-95m	4.3 E-8	.01	0.14	76	0.39	0.1
	Se-75	3.8 E-8	.02	0.15	77	0.08	0
Kimmeridge	Tc-95m	5.5 E-9	.09	0.27	78	0.057	0.008
	Se-75	6.7 E-9	.05	0.16	79	0.05	0.006
	Tc-95m	-	-	-			
	Se-75	-	-	-			
Hang.Erz	Tc-95m	5.1 E-8	.06	0.39	80	0.023	0
	Se-75	2.3 E-8	0	0.04	81	0.028	0
	Tc-95m	-	-	-	82	0.66	0.14
	Se-75	-	-	-	83	0.27	0.02
Lieg.Erz	Tc-95m	3.4 E-8	.13	0.68	84	0.275	0.007
	Se-75	1.6 E-8	0	0.24	85	0.204	0
	Tc-95m	6.6 E-8	.13	0.70	86	0.38	0.03
	Se-75	2.3 E-8	.003	0.28	87	0.137	0
Erzkalk-Serie	Tc-95m	-	-	-			
	Se-75	-	-	-	88		
	Tc-95	-	-	-			
	Se-75	-	-	-	89		
Fladentonstein	Tc-95m	-	-	-			
	Se-75	9.2 E-9	.09	0.4	90		
	Tc-95m	-	-	-			
	Se-75	-	-	-	91		
	Tc-95m	-	-	-			
	Se-75	-	-	-	92		
Heersumer Sch.	Tc-95m	-	-	-		0.17	0
	Se-75	1.2 E-8	.01	0.27	93	0.113	0
	Tc-95m	-	-	-		0.46	0.08
	Se-75	2.0 E-8	.26	1.01	94	0.08	0
Cornbrash-Sdst.	Tc-95m	1.1 E-7	.14	0.67	95	0.64	0.14
	Se-75	6.8 E-8	.28	1.05	96	0.07	0

Tab. 99: Aus den Diffusionsversuchen (Abb.68-96) ermittelte Diffusionskoeffizienten D, Gesteinskapazitätsfaktoren und Verteilungskoeffizienten K<sub>D</sub>.

Einer der möglichen Gründe für die kleinen  $K_D$ -Werte könnte im Zusammenhang zwischen dem errechneten Gesteinskapazitätsfaktor und den eingesetzten Porositäten liegen. Ausgehend von den in den Rechnungen eingesetzten effektiven Porositäten muß unterschieden werden zwischen dem für den Transport zur Verfügung stehenden Porenraum ("offener Porenraum") und dem weniger durchlässigen, z.T. nur in einer Richtung geöffneten Porenraum, der für den Diffusionsvorgang im Gestein eine den Durchbruch verzögernde Funktion hat.

An einigen der Gesteinsplättchen erfolgte unmittelbar nach Versuchsende die experimentelle Bestimmung des Gesteinskapazitätsfaktors durch Auslaugung. Die Gesteine wurden in einem definierten Volumen inaktiven Formationswassers plaziert und die Aktivitätskonzentration gemessen bis keine Änderungen mehr auftraten. Der Wert für den Gesteinskapazitätsfaktor ergibt sich direkt aus der Summe des aus dem Gestein freigesetzten Radionuklids. Aus den ermittelten Werten, aufgeführt in Tab. 99 (Auslaugung), wurden unter Verwendung dieser  $\alpha$ -Werte die  $K_D$ -Werte berechnet (s. Tab. 99). Diese durch Auslaugung ermittelten Gesteinskapazitätsfaktoren bestätigen z.T. die errechneten Werte bzw. sind mit Ausnahmen etwa um den Faktor 2 kleiner.

Die Auftragung der Konzentrations - Orts - Verteilungen zeigen die Abb. 97 - 103. Aufgetragen wurde die gemessene Konzentration gegen die Gesteinsdicke, beginnend auf der Seite der aktiven Gefäßhälfte (=0mm).

Für das System Lamarcki-Pläner/Söhle-Wasser (Abb.97) kann das Auftreten von Technetium in meßbarer Konzentration nur im letzten halben Millimeter erkannt werden, verbunden mit einer gleichfalls höheren Selenaktivität, die demgegenüber aber zuvor eine deutliche Abnahme in Richtung der inaktiven Gefäßhälfte zeigt.

Für das System Kimmeridge/Wasser der Strecke 670 (Abb. 98) ist für Selen eine ähnliche Verteilung erkennbar, während Technetium eine fast gleichmäßige Festlegung bis zu einer Eindringtiefe von 5mm zeigt und erst danach eine Abnahme erkennen läßt. Im letzten halben Millimeter liegt der Wert unterhalb der Nachweisgrenze.

Für die dargestellten beiden Verteilungen des Systems Erzkalke/Wasser der Strecke 670 (Abb. 99 u. 100) läßt sich für beide untersuchten Proben beim Selen mit zunehmender Eindringtiefe eine Abnahme der Aktivität erkennen. In einer der Proben zeigt Technetium eine etwa gleiche Konzentrationsabnahme (Abb. 99), während in der 7.8mm dicken zweiten Probe eine Konzentrationsverteilung erkennbar ist, deren Maximum etwa in der Probenmitte liegt (Abb. 100). Im Randbereich zur inaktiven Gefäßhälfte (ca. 1.5mm) ist kein Technetiumgehalt mehr erkennbar.

Die Konzentrations - Orts - Verteilungen im Fladentonstein wurde an drei Parallelproben untersucht (Abb. 101-103).

Insgesamt zeigt sich, wie auch in den vorhergehenden Abbildungen für das Technetium gegenüber dem Selen eine höhere Festlegung. Während bei der in der Abb. 101 dargestellten Verteilung eine relativ gleichmäßige Konzentrationsverteilung erkennbar ist, kommt es in den beiden anderen Proben zu einer Festlegung in den ersten Millimetern mit einer nachfolgend starken Abnahme bis hin zu nicht meßbaren Gehalten in den letzten Millimetern.

Zusammenfassend läßt sich aus den Konzentrations - Orts - Verteilungen erkennen, daß das Radionuklid Technetium in den betrachteten Gesteinen gegenüber dem Selen einen größeren Rückhalt erfährt.

Die Formen der Verteilungskurven lassen, unter Berücksichtigung der unterschiedlichen Versuchsdauer sowie der verschiedenen Gesteinsdicken, nach einer Gleichgewichtseinstellung eine gleichmäßige Festlegung im Gestein erwarten.

Demgegenüber steht die Betrachtung der Konzentrations - Orts - Verteilung im Lamarcki - Pläner, der als Gestein mit deutlichem Radionukliddurchbruch gleichfalls untersucht wurde (vgl. a. Abb. 68 u. 69). Hier kann infolge der geringen Festlegung und bedingt durch die Halbwertszeit kein Technetium mehr nachgewiesen werden, während das Selen im allgemeinen ein deutliches Konzentrationsgefälle zeigt.

Die auftretenden Unterschiede in den Ergebnissen der Schüttel- und Diffusionsversuche ( $R_S$ - und  $K_D$ - Werte) sind wahrscheinlich auf das zum Zeitpunkt des Abschlusses dieses Berichtes noch in der Diskussion befindliche Auswerteverfahren für die Diffusionsversuche zurückzuführen.

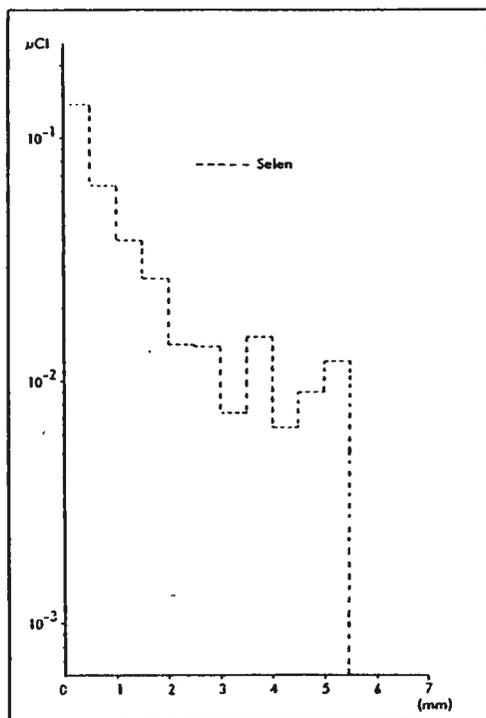


Abb. 97: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Lamarcki-Pl.; Kontaktzeit: RN-Lsg.-Gestein > 200d

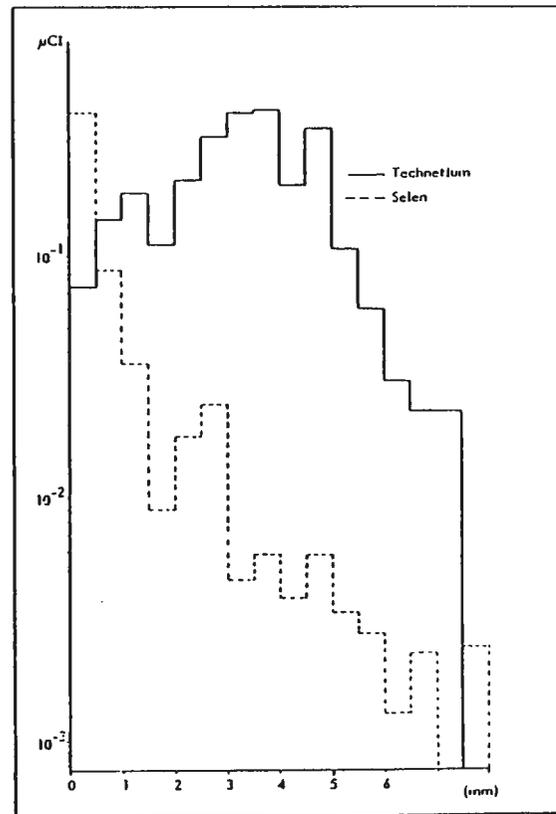


Abb.98: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Kimmeridge; Kontaktzeit: RN-Lsg.-Gestein > 200d.

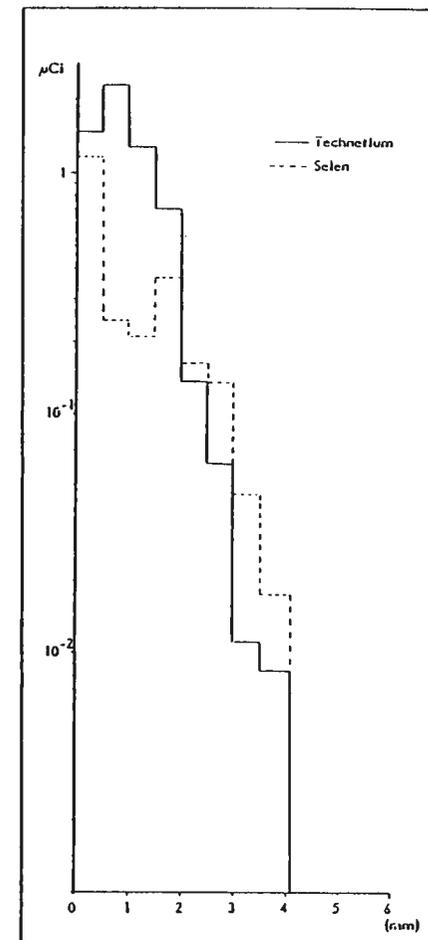


Abb. 99: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Erzkalke; Kontaktzeit: RN-Lsg.-Gestein > 200d.

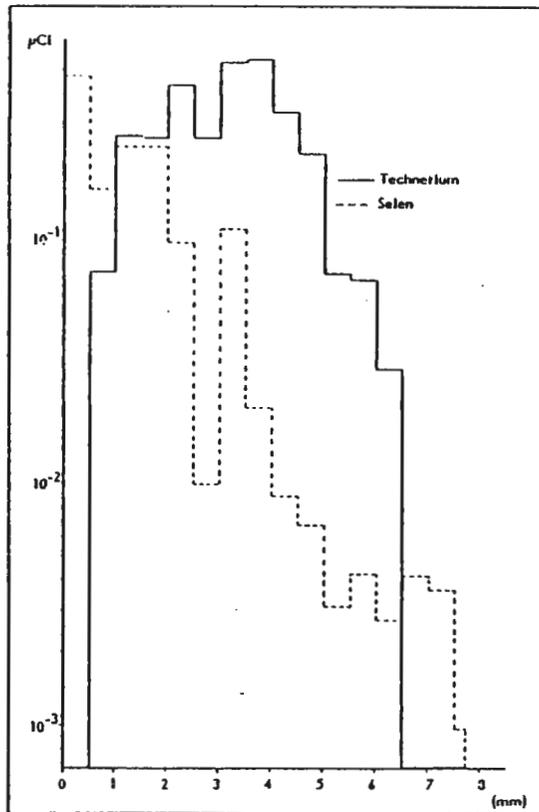


Abb. 100: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Erzkalke; Kontaktzeit: RN-Lsg.-Gestein > 150d.

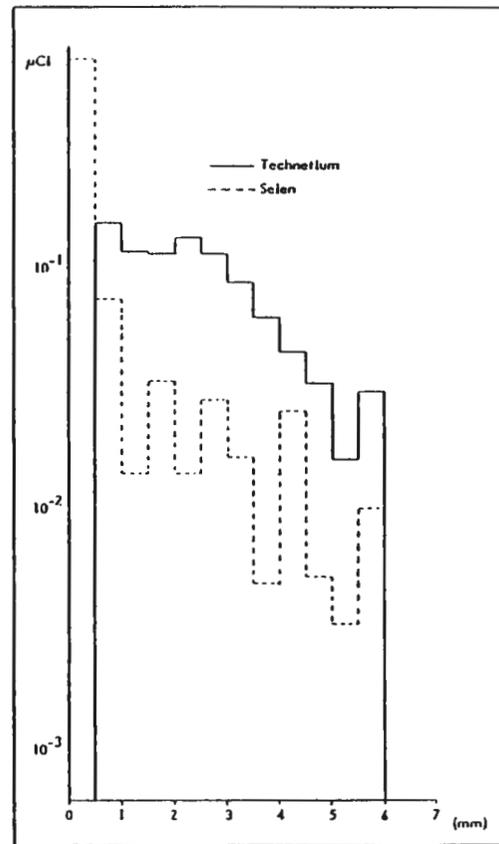


Abb. 101: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Fladentonstein; Kontaktzeit: RN-Lsg.-Gestein > 200d.

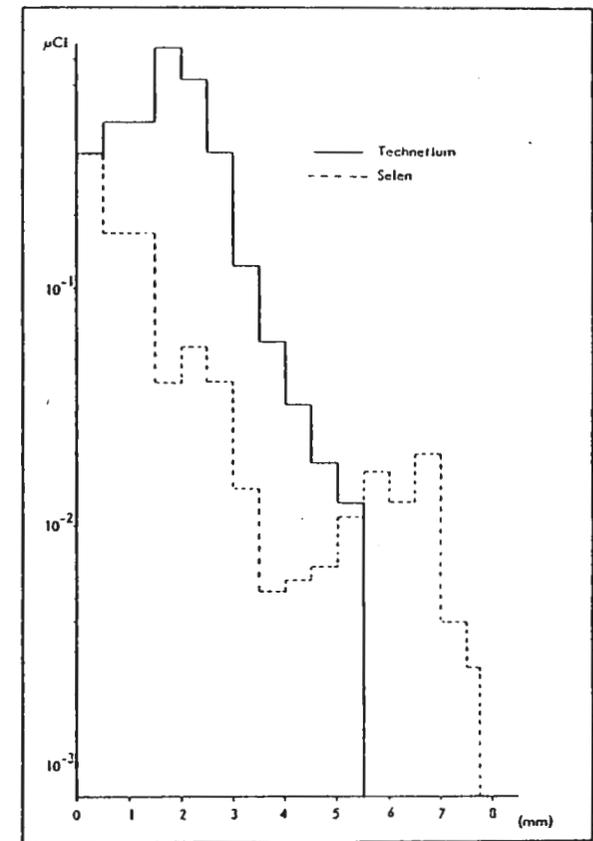


Abb. 102: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Fladentonstein; Kontaktzeit RN-Lsg.-Gestein > 150d

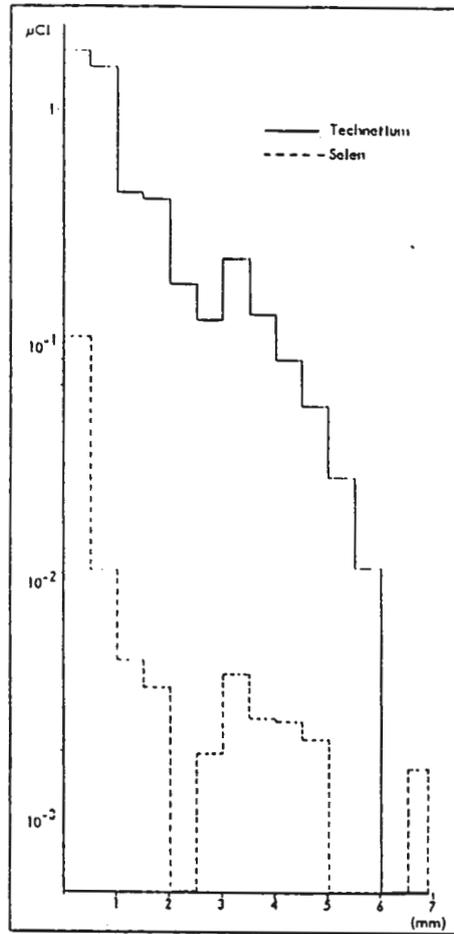


Abb. 103: Konzentrations-Orts-Verteilung nach Abschluß des Diffusionsversuches; Gestein: Fladentonstein; Kontaktzeit: RN-Lsg.-Gestein > 150d.

## 6. Literatur

- BRADBURY, M. H., LEVER, D. & KINSEY, D.(1982): Aqueous phase diffusion in crystalline rock.- Scientific Basis for Nuclear Waste Management V (W.Lutze, ed.), Elsevier Science Publ., p. 569-578
- SCHNEIDER, W. & ZACHMANN, D.(1984): Sedimentpetrographische Untersuchungen zur Ermittlung von Gesteinsparametern für die Bestimmung von Sorptionswerten an "Konrad-Gesteinen", sowie Vorschläge geeigneter überflügiger Probenahmepunkte.- Abschlußbericht, durchgeführt im Auftrage der Physikalisch-Technischen-Bundesanstalt Braunschweig.