Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH

Projekt Konrad – Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo)

Abschlussbericht zur Phase 2: Radionuklidausbreitung

André Rübel
Tanja Frank
Ulrich Noseck
Holger Seher
Jens Wolf

Februar 2025
KVGV1-21-12-Lem

Anmerkung:

Dieser Bericht wurde von der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH im Auftrag der Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE) im Rahmen des Vorhabens ÜsiKo erstellt.

Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt werden bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.

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

GRS-A-4078

Deskriptoren

Endlager, Gasbildung, Kolloide, Konrad, Langzeitsicherheitsnachweis, Nachbetriebsphase, Radionuklid, Transport

Inhaltsverzeichnis

Abgrenzung des Auftrags der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH durch BGE ... 11

1 Einleitung und Aufgabenstellung ... 13

2 Aspekt 1: Bewertung des Radionuklidtransports in der Gasphase ... 17

2.1 Beschreibung ... 17

2.2 Entwicklung des Endlagersystems bezüglich der Gasbildung und des Radionuklidtransports in der Gasphase ... 18

2.3 Gasproduktion ... 20

2.3.1 Mengen gasbildender Stoffe ... 21

2.3.2 Korrosion von Metallen ... 22

2.3.3 Zersetzung von Organika und Kunststoffen ... 24

2.3.4 Gasmenge und Gasbildungsrate für die numerische Modellierung ... 27

2.4 Numerische Analysen ... 30

2.4.1 Rechenmodell ... 31

2.4.2 Ergebnisse des Referenzfalls ... 37

2.4.3 Ergebnisse von Variationsrechnungen ... 44

2.4.3.1 Variation der Gasproduktion ... 45

2.4.3.2 Variation der Gastransportparameter ... 50

2.4.4 Einfluss von Altbohrungen und des Schachts auf die Gasausbreitung ... 51

2.5 Resümee ... 54

2.6 Literatur ... 55

3 Aspekt 2: Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide ... 61

3.1 Beschreibung ... 61

3.2 Bearbeitung ... 62

3.2.1 Kolloidchemie und Relevanz von Kolloiden unter den geochemischen Bedingungen am Standort Konrad ... 63

3.2.1.1 Geochemische Bedingungen im Endlager ... 64

3.2.1.2 Pseudokolloide 66
3.2.1.3 Eigenkolloide 70
3.2.1.4 Kolloidstabilität im Nahfeld 73
3.2.1.5 Sorption von Radionukliden an Kolloiden 80
3.2.1.6 Migration der Kolloide aus dem Nahfeld in das Fernfeld 83
3.2.2 Kolloidbeeinflusster Radionuklidtransport 85
3.2.2.1 Szenarien zum kolloidgetragenen Radionuklidtransport 85
3.2.2.2 Verhältnisse am Standort Konrad und betrachtete Radionuklide 87
3.2.2.3 Rechenprogramm COFRAME für den kolloidgetragenen Radionuklidtransport 89
3.2.2.4 Ableitung der Modellparameter 93
3.2.2.5 Ergebnisse 95
3.2.2.6 Rechnungen zu Eigenkolloiden 106
3.2.2.7 Fazit zu den Modellrechnungen 109
3.3 Resümee 111
3.4 Literatur 112

4 Aspekt 3: Überprüfung des Unterkreidepfades 119
4.1 Beschreibung 119
4.2 Bewertung der Diffusion 120
4.3 Bewertung der Sorption von Iod in der Oberkreide und des berücksichtigten Transportwegs im Unterkreidepfad 123
4.3.1 Datenlage zur Sorption von Iod 125
4.3.2 Berechnung des Radionuklidtransports über den Unterkreidepfad ohne Berücksichtigung einer Sorption für Iod in den Plänerkalken 129
4.4 Resümee 131
4.5 Literatur 132

5 Neuberechnung der Strahlenexposition 135
5.1 Beschreibung 135
5.2 Bearbeitung 135
5.3 Resümee 139
5.4 Literatur 140

6 Zusammenfassung 142

7 Literatur 145

A Grundzüge der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad 147

B Langzeitsicherheitsanalytische Rechenprogramme 157

C Nachrechnung der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad 162

D Überarbeitungen des Berichts auf Grund der fachöffentlichen Ergebnispräsentation 166

Gesamtseitenzahl: 169

Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1 Zeitliche Entwicklung der angenommenen Gasproduktionsrate für den Referenzfall und die Variante 29

Abb. 2.2 Zeitliche Entwicklung der angenommenen gebildeten Gasmenge für den Referenzfall und die Variante 30

Abb. 2.3 Darstellung des 3D-Modells 32

Abb. 2.4 Darstellung des 3D-Modells als Süd-Nordschnitt (5-fach überhöht) 33

Abb. 2.5 Abhängigkeit der relativen Permeabilität (oben) und der Saugspannung (unten) von der Sättigung für die vier unterschiedlichen Materialien 36

Abb. 2.6 Experimentell bestimmte Abhängigkeit der Saugspannung von der Sättigung für den Opalinuston /LEV 21/ 37

Abb. 2.7 Gasverteilung (Sättigung SL) des Referenzfalls nach 9.000 Jahren (5-fach überhöht). Zu diesem Zeitpunkt erreicht die Gasphase die Unterkante der Unterkreide 41

Abb. 2.8 Gasverteilung (Bereich mit Sättigung SL < 1) im Referenzfall in der 3D-Ansicht (rot) zum Zeitpunkt des Endes der Gasproduktion 41

Abb. 2.9 Gasverteilung (Sättigung SL) des Referenzfalls in 605 m Teufe (oberste Modellschicht des Kimmeridge) nach 500.000 Jahren. Zu diesem Zeitpunkt ist die maximale radiale Ausbreitung der Gasphase mit 2,8 km erreicht 42

Abb. 2.10 Relative Anteile der Gasphase im gasförmigen Zustand (g) und in Lösung (aq) für den Referenzfall 43

Abb. 2.11 Massen der Gasphase im gesamten System (Gas(tot)), in Lösung (Gas(aq)) und im gasförmigen Zustand (Gas(g)) für den Referenzfall 43

Abb. 2.12 Entwicklung des Fluiddrucks im Modell für den Referenzfall für die in Abb. 2.4 markierten Orte A und B 44

Abb. 2.13 Gasverteilung der Variante nach 3.000 Jahren (5-fach überhöht) 47

Abb. 2.14 Gasverteilung (Sättigung SL) im Fall der Variante der Gasproduktion in 605 m Teufe (oberste Modellschicht des Kimmeridge) nach 90.000 Jahren. Zu diesem Zeitpunkt ist die maximale radiale Ausbreitung der Gasphase mit 3,2 km erreicht 48

Abb. 2.15 Relative Anteile der Gasphase im gasförmigen Zustand (g) und in Lösung (aq) für die Variante der Gasproduktion 49

Abb. 2.16 Entwicklung des Fluiddrucks im Modell für die Variante der Gasproduktion für die in Abb. 2.4 markierten Orte im Grubengebäude A und B 49

Abb. 2.17 Schnitt durch das 3D-Modell, das zur Untersuchung des Schachts als Wegsamkeit für Gase verwendet wurde 53

Abb. 3.1 Kolloidkonzentration in Grundwasser und Zementporenwasser (CPW) in Abhängigkeit von der Ionenstärke (bearbeitet nach /WIE 04/) 69

Abb. 3.2 Löslichkeit von $Th(OH)_4$ bestimmt aus der Untersättigung in unterschiedlich Konzentrierter NaCl und $MgCl_2$ Lösungen /ALT 04/ 71

Abb. 3.3 Dynamisches Gleichgewicht zwischen Feststoff und Lösung sowie Redoxgleichgewicht von Plutonium in Anwesenheit von Sauerstoff /NEC 07/ 72

Abb. 3.4 Löslichkeit von Th bestimmt aus der Übersättigung in Abhängigkeit von der Kontaktlösung (NaCl und $MgCl_2$) sowie der Geschwindigkeit der Zentrifugation bei der Abtrennung der Kolloide /ALT 04/ 73

Abb. 3.5 Zeta-Potentiale von Hämatit und Silica in Abhängigkeit des pH-Wertes 75

Abb. 3.6 Gemessene Zeta-Potentiale für unterschiedliche Partikel aus CSH-Phasen in Abhängigkeit des Fest-/Flüssig-Verhältnisses /FUJ 03/ 78

Abb. 3.7 Wechselwirkungsenergie nach der DLVO-Theorie in der Abhängigkeit der Ca-Konzentration /FUJ 03/ 78

Abb. 3.8 Entwicklung der Kolloidgröße über die Zeit von „high fly ash and Silica fume-content Cement“ aus den Experimenten von /FUJ 03/ mit einer Ca-Konzentration von a) $2 \cdot 10^{-4}$ mol/L und b) $5 \cdot 10^{-4}$ mol/L 79

Abb. 3.9 Entwicklung der Kolloidkonzentration aus verschiedenen experimentellen Serien (S1, S2) sowie Quarz-Partikel in synthetischem Zementporenwasser (ACW: artificial cement pore water) über die Zeit /WIE 04/ 80

Abb. 3.10 Einfluss der Kolloide auf den Rückhalt von Radionukliden in einem Endlager mit zementhaltigen Materialien /WIE 01/. F_{red} ist der Reduzierungsfaktor, um den die Sorption auf den vorhandenen Materialien durch die Anwesenheit von Kolloiden verringert wird. 82

Abb. 3.11 Entwicklung der alkalischen Fahne in Fließrichtung der Lösung aus einem Endlager mit zementhaltigen Materialien /SAV 98/ 84

Abb. 3.12 Relevante geochemische Bedingungen im Nah- und Fernfeld des Endlagers für die Betrachtung von Szenarien zum kolloidgetragenen Transport 85

Abb. 3.13 Links: Szenario 1: Bedingungen bei der Bildung von Zementkolloiden im Nahbereich. Radionuklide sind initial auf Kolloiden gebunden. Rechts: Szenario 2: Radionuklide sind initial gelöst und können im Fernfeld an potenzielle Kolloide im Konradwasser gebunden werden..... 86

Abb. 3.14 Berechnete Radionuklidkonzentrationen am Ende des Transportpfades im Oxford /STO 86/ 88

Abb. 3.15 Gesteinskörper mit darin enthaltenen Klüften /REI 14/ 90

Abb. 3.16 Bestimmung der Modellparameter bei einer planaren Geometrie eines geklüftet-porösen Mediums /REI 14/ 91

Abb. 3.17 Wechselwirkungen zwischen Radionukliden und Kolloiden in COFRAME /REI 14/, /REI 16a/ 92

Abb. 3.18 Konzentrationen von Spalt- und Aktivierungsprodukten und Radionukliden der Zerfallsreihen mit Uranisotopen als Mutternukliden für Rechnung ohne Kolloideinfluss..... 97

Abb. 3.19 Einfluss der Kolloidfiltration auf den Kolloidtransport. Verteilung der Kolloidkonzentration entlang des Transportwegs der Kolloidfiltrationsrate: lineare (links) und logarithmische Darstellung (rechts) 98

Abb. 3.20 Konzentrationen von Spalt- und Aktivierungsprodukten und Radionukliden der Zerfallsreihen mit Uranisotopen als Mutternukliden für Rechnung unter Gleichgewichtsbedingungen. Freie Radionuklide (oben), kolloidgebundene Radionuklide (unten) 100

Abb. 3.21 Konzentrationen von Spalt- und Aktivierungsprodukten und Radionukliden der Zerfallsreihen mit Uranisotopen als Mutternukliden für Rechnung mit Reaktionskinetik. Ad-/Desorptionsrate = 10^{-4} a^{-1}. Freie Radionuklide (oben), kolloidgebundene Radionuklide (unten)..... 102

Abb. 3.22 Konzentrationen von Spalt- und Aktivierungsprodukten und Radionukliden der Zerfallsreihen mit Uranisotopen als Mutternukliden für Rechnung mit Reaktionskinetik. Ad-/Desorptionsrate = 10^{-5} a^{-1}. Freie Radionuklide (oben), kolloidgebundene Radionuklide (unten)..... 104

Abb. 3.23 Konzentrationen der kolloidgebundenen Fraktion von Isotopen der Actiniden, die keine Tochterisotope von Uranisotopen darstellen für die Rechnung mit Reaktionskinetik. Die Ad-/Desorptionsrate wurde zwischen 10^{-3} a^{-1} und 10^{-6} a^{-1} variiert..... 105

Abb. 3.24 Aktivitätsstrom aus dem Grubengebäude für ausgewählte Radionuklide, die in vierwertiger Form auftreten können. Die Rechnungen wurden mit den Referenz Nahfelddaten und für Varianten mit hoher Löslichkeit und ohne Sorption im Nahfeld durchgeführt. 108

Abb. 3.25 Summendosis für die Rechnungen zum Oxford-Pfad für Rechnungen mit den Referenz Nahfelddaten und der Variation mit hoher Löslichkeit und ohne Sorption im Nahfeld 109

Abb. 3.26 Relevanz von Kolloiden in Abhängigkeit der Kolloidfiltration bzw. der Radionukliddesorptionsrate an den Kolloiden 110

Abb. 4.1 Schematische Abbildung des Ausbreitungswegs Unterkreidepfad /STO 86/ 120

Abb. 4.2 Radionuklidkonzentration im oberflächennahen Aquifer für Modellrechnungen zu ∆31 mit (farbige, gestrichelte Linien) und ohne Anpassung (schwarze Linien) des Diffusionskoeffizienten 123

Abb. 4.3 Radionuklidkonzentration im oberflächennahen Aquifer für Modellrechnungen mit (blaue Kurve) und ohne (orangene Kurve) Berücksichtigung einer Sorption für Iod an den Plänerkalken..... 131

Abb. 5.1 Zeitverlauf der zusätzlichen effektiven Jahresdosis in der Biosphäre für den Unterkreidepfad (oben) und den Oxfordpfad (unten) 137

Abb. 5.2 Quotient der Dosiskonversionsfaktoren aller betrachteten Nuklide aus /HOR 25/ und /PRO 91/ für die Altersgruppe Erwachsene älter als 17 Jahre (nach /HOR 25/) 138

Abb. A.1 Radionuklidstrom aus dem Grubengebäude für ausgewählte Radionuklide 149

Abb. A.2 Schnitt (E-E´) durch das Modellgebiet mit Darstellung der modellierten Ausbreitungspfade (BfS, abgerufen 2017) 155

Abb. B.1 XENIA Benutzeroberfläche 159

Abb. C.1 Vergleich der Konzentration im oberflächennahen Aquifer [Bq/m³] bei Ausbreitung über den Unterkreidepfad aus den Rechnungen von 1991, 2000 und 2022 164

Tabellenverzeichnis

Tab. 1.1 Meilensteine in der Historie der Bergwerksanlage bzw. des Endlagers Konrad 14

Tab. 2.1 Mengen gasbildender Stoffe nach /KUG 03/ 22

Tab. 2.2 Reaktionsgleichungen und spezifische gebildete Gasmengen bei der Korrosion der Metalle 24

Tab. 2.3 Korrosionsdauer der Metalle in Jahren im Referenzfall 24

Tab. 2.4 Korrosionsdauer der Metalle in Jahren in der Variante 24

Tab. 2.5 Reaktionsgleichungen und spezifische gebildete Gasmengen bei der Zersetzung von Zellulose 25

Tab. 2.6 Reaktionsgleichungen und spezifische gebildete Gasmengen bei der Zersetzung von Kunststoffen 26

Tab. 2.7 Modellparameter bezüglich der Zersetzung von Organika 27

Tab. 2.8 Menge gebildeter Gase in Mol bei vollständiger Umsetzung der unterschiedlichen Ausgangsstoffe in den Rechenfällen 29

Tab. 2.9 Material- und Zweiphasenparameter des Referenzfalls 35

Tab. 2.9 Werte für den hydrostatischen Druck im Modell als Ergebnis der Modellierung für den Referenzfall und die angenommene minimale Hauptspannung 40

Tab. 2.11 Werte für den hydrostatischen Druck im Modell als Ergebnis der Modellierung für die Variante und die angenommene minimale Hauptspannung 46

Tab. 2.10 Vergleich der maximalen Gasausbreitung bei Variation der Eingangsparameter 50

Tab. 3.1 Eigenschaften Referenzwassers aus dem Korallenoolith (Oxford) /KIM 87/ 64

Tab. 3.2 Zusammensetzung des Referenzwassers aus dem Korallenoolith (Oxford) /KIM 87/ 64

Tab. 3.3 Relevante Parameter der Lösung im Einlagerungsbereich /RUE 23/ 66

Tab. 3.4 Radionuklidliste mit Farbkodierung für die Relevanz des kolloidgetragenen Radionuklidtransports 89

Tab. 3.5 Transportparameter für den vereinfachten Ausbreitungsweg Ib (Oxford) 93

Tab. 3.6 Wechselwirkungsparameter für die Radionuklide mit Kolloiden und der Gesteinsmatrix 94

Tab. 3.7 Vorgeschlagene Verteilungskoeffizienten K_{fr}*(m^3/kg) zur Wechselwirkung der Radionuklide mit der Gesteinsmatrix /STO 86/..... 94

Tab. 3.8 Vorgeschlagene Verteilungskoeffizienten K_{frm}, K_{fri} (m^3/kg) für die Sorption an Zementkolloiden unter reduzierenden Bedingungen; 20-fach erhöhter K_d-Wert für Kolloide aufgrund größerer spezifischer Oberfläche /WIE 02/. 95

Tab. 4.1 Mineralogische Zusammensetzung ausgewählter Gesteine in Prozentanteilen /ECK 91/ 128

Tab. 4.2 Maximale Konzentration von I-129 in Bq/m³ im oberflächennahen Aquifer und Zeitpunkt des Auftretens des Maximums in Jahren bei Ausbreitung über den Unterkreidepfad 130

Tab. 5.1 Eigenschaften des Maximums im Zeitraum bis 10^6 Jahre der über die Lebenszeit gemittelten zusätzlichen effektiven Jahresdosis einer repräsentativen Person 139

Tab. 5.2 Eigenschaften des Maximums im Zeitraum von 10^6 bis 10^8 Jahre der über die Lebenszeit gemittelten zusätzlichen effektiven Jahresdosis einer repräsentativen Person 139

Tab. A.1 In der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad betrachtete Schichtenfolge mit den angenommenen Durchlässigkeitsbeiwerten k_f im Modell (aus /RUE 19/ nach /STO 86/)..... 151

Abkürzungsverzeichnis

BfS	Bundesamt für Strahlenschutz
BGE	Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH
CCC	Critical Coagulation Concentration (Kritische Koagulationskonzentration)
CSH	Calcium-Silikat-Hydrat
DKF	Dosiskonversionsfaktor
ELB	Endlagerungsbedingungen (Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle – Endlager Konrad) /BFS 14/
ERAM	Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben
EU	Erläuternde Unterlage
GRS	Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit gGmbH
IEP	Isoelektrischer Punkt
IUPAC	International Union of Pure and Applied Chemistry
LZSA	Langzeitsicherheitsanalyse
NLfB	Niedersächsisches Landesamt für Bodenforschung
NMU	Niedersächsische Ministerium für Umwelt und Klimaschutz
PFB	Planfeststellungsbeschluss /PFB 02/
PFV	Planfeststellungsverfahren
PTB	Physikalisch-Technische Bundesanstalt
ÜsiKo	Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik
W&T	Wissenschaft und Technik

Abgrenzung des Auftrags der Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH durch BGE

Die Erstellung des nachfolgenden Berichts „Projekt Konrad – Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo), Abschlussbericht zur Phase 2: Radionuklidausbreitung“ wurde von der BGE an die Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH im Rahmen der ÜsiKo Phase 2 beauftragt (ÜsiKo = „*Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik*“). Die ÜsiKo wird – initiiert von der BGE als verantwortungsvolle Vorhabenträgerin – unabhängig von der jederzeit gegebenen behördlichen Überwachung, als selbstständige Überprüfung durch externe Fachgutachter und Sachverständige durchgeführt. Der Planfeststellungsbeschluss Konrad ist bestandskräftig. Er selbst ist kein Gegenstand der Überprüfung i. S. d. ÜsiKo.

Inhalte und Ergebnisse des nachfolgenden Berichts liegen allein in der Verantwortung des jeweiligen Verfassers, der seinen Auftrag selbstständig und frei von Weisungen erfüllt hat. Die Ausführungen in diesem Kapitel erfolgen von Seiten der BGE und dienen ausschließlich der Einordnung der Bearbeitung des Auftrags für ÜsiKo Phase 2:

Die ÜsiKo umfasst bislang folgende zwei Phasen: Die Phase 1 (2017 - 2020) diente der Ermittlung des Überprüfungsbedarfs. Hier wurde fachgutachterlich untersucht, ob in Bezug auf die Sicherheitsanalysen für das Endlager Konrad ein allgemeiner Fortschritt im Stand von Wissenschaft und Technik eingetreten ist. Soweit dies der Fall ist, wurde dieser Fortschritt als sogenanntes Delta formuliert. Zum überwiegenden Teil wurde bereits in Phase 1 festgestellt, dass der konstatierte Fortschritt keine Relevanz in Bezug auf die Sicherheit des Endlagers Konrad aufweist. Konnte eine Relevanz in Bezug auf die Sicherheit des Endlagers Konrad – in vereinzelten Fällen – in Phase 1 nicht von vornherein ausgeschlossen werden, wurde insoweit ein weiterer Betrachtungsbedarf für Phase 2 ermittelt (sog. sicherheitsrelevante Deltas).

Die Feststellung eines sogenannten sicherheitsrelevanten Deltas in Phase 1 allein lässt keine Schlussfolgerungen in Bezug auf die Sicherheit des Endlagers Konrad zu. Es wird lediglich festgestellt, dass sich der aktuelle Stand von Wissenschaft und Technik in Bezug auf die Anforderungen an ein heute neu zu genehmigendes Endlager verändert hat und eine sicherheitstechnische Relevanz nicht von vornherein verneint werden kann.

Die ÜsiKo sieht für diesen Fall vor, dass eine weitergehende fachgutachterliche Betrachtung in Phase 2 (Aktualisierung von Sicherheitsanalysen) erfolgt.

Bei der Aktualisierung von Sicherheitsanalysen (Phase 2 der ÜsiKo) setzen sich die Fachgutachter mit den konkreten Ausprägungen eines Fortschritts im Stand von Wissenschaft und Technik mit Bezug zu den sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad (sog. Sicherheitsrelevanz) auseinander. Im Rahmen der Bearbeitung in Phase 2 werden z. B. neue Modellrechnungen vorgenommen. Sodann wird untersucht, ob eine Relevanz dieser Ergebnisse für die Sicherheitsanforderungen des Endlagers Konrad nach Phase 2 ausgeschlossen werden kann (1.) oder ob die Sicherheitsrelevanz weiter besteht (2.).

1. Soweit fachgutachterlich festgestellt wird, dass sich die in Phase 1 identifizierte potenzielle Sicherheitsrelevanz nach dem Ergebnis der Phase 2 nicht bestätigt, sind Folgerungen in Bezug auf die Sicherheit des Endlagers Konrad ausgeschlossen. In diesem Fall wird das Delta bereits mit der Aktualisierung der Sicherheitsanalysen geschlossen. Für den Fall, dass die Fachgutachter hier gleichwohl Empfehlungen abgeben, bedeutet dies nicht, dass ihre Umsetzung im Hinblick auf die Sicherheit des Endlagers geboten ist. In diesen Fällen wird die BGE in Abstimmung mit den Behörden vielmehr im Einzelfall bewerten, ob und wenn ja, in welcher Weise eine Realisierung erfolgt, um ggf. einen Beitrag zur überobligatorischen Optimierung der Sicherheit des Endlagers zu leisten.

2. Soweit die Sicherheitsrelevanz eines Deltas für das Endlager Konrad nach der fachgutachterlichen Untersuchung nicht ausgeschlossen werden kann, wird die BGE in Abstimmung mit den Behörden unter Einbeziehung etwaiger Empfehlungen der Gutachter über etwaige Maßnahmen beraten und diese – soweit erforderlich – anschließend umsetzen.

1 Einleitung und Aufgabenstellung

Das zukünftige Endlager für schwach- und mittelradioaktive Abfälle Konrad liegt im südöstlichen Niedersachsen auf dem Gebiet der Stadt Salzgitter. Die Schachtanlage Konrad hat zwei Schächte Konrad 1 und Konrad 2 mit Tiefen von 1.200 bzw. 1.000 Metern. Die wichtigsten zeitlichen Meilensteine in der Historie der Bergwerksanlage bzw. des Endlagers Konrad sind in Tab. 1.1 zusammengestellt.

Der untertägige Bereich des Endlagers wird als Erweiterung des Grubengebäudes eines bestehenden ehemaligen Eisenerzbergwerks errichtet. Das Eisenerzvorkommen in einer Tiefe von 1.300 bis 800 Metern hat eine Mächtigkeit von 12 bis 18 Metern. In zwei neu aufgefahrenen Einlagerungsbereichen in 800 m Tiefe sollen bis zu 303.000 Kubikmeter radioaktive Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung endgelagert werden. Im Jahr 1982 stellte die Physikalisch-Technische Bundesanstalt (PTB) als damals für die Endlagerung zuständige Behörde einen Antrag auf Einleitung eines Planfeststellungsverfahrens (PFV). Im Frühjahr 1989 reichte sie den Plan bei der zuständigen Genehmigungsbehörde Niedersächsisches Ministerium für Umwelt und Klimaschutz (NMU) ein. Mit seiner Gründung ging die Zuständigkeit für die Endlagerung der radioaktiven Abfälle im November 1989 auf das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) über. Die ursprünglichen Antragsunterlagen für das Endlager Konrad wurden in den 1990er Jahren erstellt und bis zur Erteilung des Planfeststellungsbeschlusses (PFB) im Jahr 2002 aktualisiert.

Das PFV für Konrad war ein atomrechtliches Genehmigungsverfahren, das sowohl eine Umweltverträglichkeitsprüfung als auch eine Öffentlichkeitsbeteiligung beinhaltete. Darauf basierend hat die Genehmigungsbehörde unter Beteiligung von Sachverständigen im Jahr 2002 mit dem PFB festgestellt, dass die erforderliche Vorsorge gegen Schäden aus der Endlagerung radioaktiver Abfälle gemäß dem damaligen Stand von W&T gewährleistet ist.

Die Verantwortung für das Endlager Konrad lag bis zum 24. April 2017 beim Bundesamt für Strahlenschutz (BfS). Auf Grundlage des Gesetzes zur Neuordnung der Organisationsstruktur im Bereich der Endlagerung, das am 30. Juli 2016 in Kraft trat und dem Bescheid des Bundes vom 24.4.2017, wurde die Aufgabenwahrnehmung der Planung, Errichtung und Betrieb der Endlager für radioaktive Abfälle so auch für das Endlager Konrad, auf die Bundesgesellschaft für Endlagerung mbH (BGE) übertragen.

Tab. 1.1 Meilensteine in der Historie der Bergwerksanlage bzw. des Endlagers Konrad

Jahr	Ereignis
1957	Beginn des Abteufens von Schacht Konrad 1
1965	Beginn der Eisenerzförderung
1975	Beginn der Eignungsuntersuchungen als Endlager
1976	Ende der Erzförderung
1982	Einleitung des Planfeststellungsverfahrens
1986	Erstellung der Langzeitsicherheitsanalyse
2002	Erteilung des Planfeststellungsbeschlusses
2007	Gerichtliche Bestätigung, Beginn der Umrüstung
2017	Übertragung der Betreiberaufgaben auf die BGE
2017	Beginn der ÜsiKo Phase 1
2020	Beginn der ÜsiKo Phase 2

Die „Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo)“ erfolgt vorsorglich. Der Prozess der Überprüfung begann im Jahr 2016 mit einem öffentlichen Workshop, welcher der Diskussion über das sinnvolle und notwendige Vorgehen bei der Überprüfung diente. Als Folge und unter Berücksichtigung der Diskussion wurden folgende vier Phasen für die ÜsiKo festgelegt:

1. Ermittlung des Überprüfungsbedarfs
2. Aktualisierung von Sicherheitsanalysen
3. ggf. Anpassung der Planung
4. ggf. Umsetzung im Bau

In Phase 1 der ÜsiKo wurde zunächst untersucht, ob in Bezug auf die Sicherheitsanalysen ein allgemeiner Fortschritt im Stand von Wissenschaft und Technik festzustellen ist. Soweit dies festgestellt wurde, wurde weiter untersucht, ob eine Relevanz für die Sicherheitsanforderungen des Endlagers Konrad ausgeschlossen werden kann. Soweit dies in Phase 1 nicht möglich war, wurde ein vertiefter Betrachtungsbedarf für einzelne Aspekte der Sicherheitsanalysen festgestellt, der in Phase 2 erfolgt. In den Jahren 2017 bis 2020

erfolgte in der ersten Phase der ÜsiKo unter anderem die Überprüfung der Langzeitsicherheitsanalysen zur Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase /RUE 19/. Im Rahmen dieser Überprüfung wurden Aspekte zu den genannten Themengebieten identifiziert, für die sich potenziell sicherheitsrelevante Abweichungen, auch als Delta (Δ) bezeichnet in der Argumentation zwischen dem Stand von W&T im Jahr 2019 gegenüber dem damaligen Stand von W&T zur Zeit der Erstellung ergeben.

Die in diesem Bericht beschriebenen Arbeiten sind Teil der Phase 2 („Aktualisierung von Sicherheitsanalysen“) der ÜsiKo. Im Rahmen der durchgeführten Analysen werden die neun in der ersten Phase der ÜsiKo identifizierten Deltas bewertet, die die Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase im Grubengebäude und in der Geosphäre betreffen. Die Nummerierung und Bezeichnung richtet sich nach der veröffentlichten Liste der BGE /BGE 21/. Die identifizierten Deltas der Phase 1 bezüglich der Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase werden drei Aspekten zugeordnet:

Aspekt 1: Bewertung des Radionuklidtransports in der Gasphase. Dieser Aspekt umfasst den Radionuklidtransport in der Gasphase im Grubengebäude sowie in der Geosphäre und die potenzielle Bildung von Gasfracs im Wirtsgestein.

Aspekt 2: Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide. Dies betrifft die Bewertung des Einflusses von Kolloiden auf den Radionuklidtransport in der Geosphäre.

Aspekt 3: Überprüfung des Unterkreidepfades. Dieser Aspekt umfasst eine Neubewertung der Ausbreitung gelöster Radionuklide über den Unterkreidepfad bezüglich der Diffusion, der Sorption von Iod in der Oberkreide sowie des berücksichtigten Transportpfades.

Die Ergebnisse der ersten Phase der ÜsiKo wurden durch ein unabhängiges Review-Team überprüft /ROE 19/. Die Aussagen dieses Reviews werden bei den durchgeführten Arbeiten berücksichtigt.

In den folgenden Kapiteln 2 bis 4 werden die drei oben genannten Aspekte und die damit verbundenen Deltas jeweils beschrieben analysiert. Zusätzlich zu den genannten Aspekten erfolgt in Kapitel 5 eine Neuberechnung der Strahlenexposition für die Langzeitsicherheitsanalyse Konrad. Die Notwendigkeit zu der Neuberechnung ergibt sich aus

den in einem anderen Vorhaben der ÜsiKo Phase 2 neu berechneten Dosiskonversionsfaktoren /HOR 25/.

Da die Dokumentation zur Bearbeitung der Aspekte entsprechend der Leistungsbeschreibung des Auftrags unabhängig voneinander lesbar und verständlich sein soll, wiederholen sich teilweise Textteile und Fußnoten in mehreren Kapiteln. Umfangreiche Informationen, die mehrere Aspekte betreffen, sind in Anhängen dargestellt. Die Literaturquellen sind für jeden Aspekt und jeden der Anhänge am Ende der entsprechenden Kapitel in separaten Literaturverzeichnissen angegeben. Die Literaturquellen für die allgemeinen Textteile in Einleitung und Zusammenfassung sind in Kapitel 7 angegeben.

Anmerkungen aus der Fachöffentlichen Ergebnispräsentation zur ÜsiKo Phase 2

Im Rahmen der Vorstellung der Ergebnisse zur fachöffentlichen Ergebnispräsentation der ÜsiKo Phase 2 am 23.10.2024 in Braunschweig wurden Anmerkungen zu den durchgeführten Arbeiten gemacht, die zu den in Anhang D beschriebenen Überarbeitungen dieses Berichts geführt haben.

2 Aspekt 1: Bewertung des Radionuklidtransports in der Gasphase

2.1 Beschreibung

In der Phase 1 der ÜsiKo wurde die Langzeitsicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad im Hinblick auf sicherheitsrelevante Abweichungen vom Stand von W&T zur Zeit des PFB zum Jahr 2019 begutachtet /RUE 19/. In Phase 1 wurde folgender Aspekt zur Bearbeitung in der ÜsiKo Phase 2 identifiziert:

Für gasförmige Radionuklide ist deren Freisetzung aus dem Grubengebäude und Transport in der Geosphäre zu bewerten. Falls sich Radionuklide in gasförmigem Zustand bis in die Biosphäre ausbreiten können, dann ist die potenzielle Strahlenexposition mit einem entsprechenden Expositionsmodell zu berechnen.

Diesem Aspekt sind vier identifizierte Deltas zugeordnet. Demnach sind Entwicklungen des Endlagersystems (Szenarien) zu beschreiben, die potenziell zu einer Freisetzung von gasförmigen Radionukliden in die Biosphäre (∆24) und/oder zu Gas-Fracs in den Barrieregesteinen um das Endlager Konrad (∆27) führen können. Die Relevanz einer Freisetzung von gasförmigen Radionukliden aus dem Grubengebäude (∆25) und deren Ausbreitung in der Geosphäre (∆26) sind zu bewerten. Die Nummerierung und Bezeichnung der Deltas (Δ) richtet sich nach der veröffentlichten Liste der BGE /BGE 21/.

Das Review-Team der Phase 1 der ÜsiKo empfiehlt zum Aspekt 1, dass als relevantes Radionuklid für den Transport in der Gasphase neben dem üblicherweise betrachteten C-14 auch methyliertes Se-79[1] berücksichtigt werden sollte /ROE 19/.

Die in /RUE 19/ festgestellten Deltas zum Aspekt der Bewertung des Radionuklidtransportes in der Gasphase sind weiterhin zutreffend. Ein Fortschritt im Stand von W&T in den Jahren 2019 bis 2022 ist für die Deltas dieses Aspekts nicht festzustellen. Über die in Phase 1 der ÜsiKo benannten Punkte hinaus wurden bei der Bearbeitung der Deltas in Phase 2 keine zusätzlichen sicherheitsrelevanten Aspekte identifiziert.

[1] Dies betrifft die Formen von Selen als Dimethylselenid und Dimethyldiselenid. Die Einschätzung gilt in gleicher Weise für Iod als Methyliodid.

2.2 Entwicklung des Endlagersystems bezüglich der Gasbildung und des Radionuklidtransports in der Gasphase

In der Nachverschlussphase eines geologischen Endlagers für radioaktive Abfälle können erhebliche Mengen an Gasen entstehen, die die langfristige Sicherheit des Endlagers auf unterschiedliche Weise beeinträchtigen könnten. Während radioaktive Gase der Strategie zur Isolierung und zum Einschluss unterliegen, müssen nicht-radioaktive Gase möglicherweise abgeleitet werden, um den Druckaufbau im Endlagersystem zu minimieren /CAP 15/. Die zu erwartenden Gasentwicklungsraten und -mengen variieren je nach Abfallart und Endlagerkonzept. Fragen, die sich aus der Gasentwicklung ergeben, müssen in den Sicherheitsnachweisen für alle Endlager behandelt werden, da sie nicht von vornherein ausgeschlossen werden können /ROD 03/.

Um die Gasbildung und die Konsequenzen einer möglichen Gasfreisetzung aus dem Endlager Konrad zu bewerten, wird im Folgenden die zukünftige Entwicklung des Endlagersystems beschrieben, die zur Gasbildung und dem Radionuklidtransport in der Gasphase führt. Diese Entwicklung wird als Grundlage für die weitergehenden Analysen zu Grunde gelegt. Die zukünftige Entwicklung wird auf Basis der Literatur zum Stand von W&T abgeleitet z. B. /ROD 03/, /RUE 04/, /SHA 13/, /CAP 15/, /LEU 16/, /LEV 21/ und an die Gegebenheiten des Endlagers Konrad angepasst.

Auf Grund des natürlichen Wassergehalts der porösen Gesteine um das Endlager Konrad und der hydrostatischen Randbedingungen wird erwartet, dass nach dem Verschluss des Endlagers ein Zufluss von Lösung aus dem Wirtsgestein in das versetzte Grubengebäude stattfindet, der mit der Zeit das Grubengebäude zumindest teilweise mit Lösung auffüllt. In der Langzeitsicherheitsanalyse wird die Zutrittsrate von Wasser in das Grubengebäude zu 50 l/min abgeschätzt /STO 86/, und demnach ist das Grubengebäude nach 115 Jahren vollständig mit Lösung gefüllt.

Nach der Stilllegung des Endlagerbergwerks wird Sauerstoff aus der Grubenluft durch aerobe Bakterien und aerobe Korrosion von Metallen schnell verbraucht. Danach führt der Kontakt der Behälter, der darin enthaltenen Abfälle und sonstiger Objekte im Endlager aus Stahl mit Wasser in Abwesenheit von Sauerstoff zu einer anaeroben Korrosion, bei der das Eisen in Magnetit umgewandelt und erhebliche Mengen an Wasserstoff erzeugt werden (vgl. Kapitel 2.3). Weiterhin können durch anaerobe mikrobielle Degradation von Organika unterschiedliche weitere Gase wie z.B. Kohlendioxid oder Methan entstehen.

Die gebildeten Gasmengen sind im Allgemeinen zu groß, um in dem Porenraum des Versatzes im Grubengebäude gespeichert zu werden, weshalb sowohl ein Gasdruckaufbau als auch eine Gasbewegung im Grubengebäude zu erwarten ist. Die Bewegung von Gasen kann wiederum eine Bewegung von Lösung, sowie den Transport von gasförmigen oder gelösten Radionukliden verursachen. Die großen Mengen produzierter Gase können als Trägergas für geringe Mengen ebenfalls vorhandener radioaktiver Gase, wie z.B. $^{14}CO_2$ oder $^{14}CH_4$ fungieren, die damit aus dem Grubengebäude in die Geosphäre transportiert werden, unter Umständen bis in die Biosphäre gelangen und zu einer potenziellen Strahlenexposition der Bevölkerung führen können. Ein weiterer Einfluss der Gasbewegung ist die Verdrängung von Wasser und damit ein indirekter Einfluss auf den Radionuklidtransport in Lösung. Der letztgenannte Prozess wurde im Rahmen der Sicherheitsanalysen für die Nachbetriebsphase für das Endlager Konrad bewertet /PAH 89/, und es wurde festgestellt, dass die gebildeten Gase keinen signifikanten Einfluss auf die Grundwasserströmung und den Radionuklidtransport in der flüssigen Phase haben. Dieser Prozess wird daher hier nicht weiter betrachtet.

Bezüglich der Gasbewegung und des Transports gasförmiger Radionuklide ist zu unterscheiden, in welcher Form (gasförmig oder gelöst) und entlang welcher Wege (entlang des Grubengebäudes oder im Wirts- und Nebengestein) die Gase transportiert werden. Der Transport durch das Gestein kann durch die folgenden unterschiedlichen Prozesse stattfinden:

1. Lösung der Gase im Porenwasser und Transport in der gelösten Form durch Diffusion im Porenwasser oder durch Advektion bei Bewegung des Porenwassers,

2. ein advektiver Fluss als Gas im vorhandenen Porenraum des Gesteins durch Verdrängung von Porenwasser (Zweiphasenfluss) und.

3. ein advektiver Fluss auf neu erzeugten Wegsamkeiten (Risse) im Gestein als Folge von hohen Gasdrücken. Risse im Wirtsgestein können erst dann entstehen, wenn der Fluiddruck den lithostatischen Druck bzw. die minimale Hauptspannung übersteigt.

Die Diffusion gelöster Gase im Porenwasser hat nur einen mengenmäßig geringen Gasfluss zur Folge, der je nach gebildeter Gasmenge und Gasbildungsrate unter Umständen allein nicht ausreicht, um die im Endlager produzierten Gase abzutransportieren. Bei einem Zweiphasenfluss wird Porenwasser im Porenraum des Gesteins verdrängt, sobald der Gaseindringdruck – der Druck, welcher zusätzlich zum hydrostatischen Druck

mindestens benötigt wird, um Lösung aus dem gesättigten Porenraum zu verdrängen – überschritten wird.

Falls der Gasdruck den Gaseindringdruck übersteigt, kann das Gas in das Gestein eindringen. Falls das Gas auch den lithostatischen Druck, bzw. die minimale Hauptspannung übersteigt, können zusätzlich neue Wegsamkeiten (Gas-Fracs) entstehen. Auf Grund des Dichteunterschieds der Gase und der Lösung tendiert das Gas dazu vertikal aufzusteigen. Da unterschiedliche Typen von Gesteinen unterschiedliche Gaseindringdrücke aufweisen, kann der Gasaufstieg an Gesteinsübergängen zu Gesteinen mit sehr viel höherem Gaseindringdruck zum Erliegen kommen und sich die Gase dann lateral unterhalb dieser Sperrschicht (Gesteinsschicht mit hohem Gaseindringdruck) ausbreiten.

Entlang des gesamten Gastransportwegs wird sich Gas entsprechend dem Henry'schen Gesetz im Grund- und Porenwasser lösen, mit dem die Gasphase im Kontakt steht. Die gelösten Gase werden dann mit der Grundwasserströmung transportiert. Die tatsächlichen Gastransportwege können nur durch numerische Modellierung prognostiziert werden.

Falls radioaktive Gase bis an die Erdoberfläche und somit in die Biosphäre gelangen, dann können diese durch Inhalation oder Ingestion zu einer potenziellen Strahlenexposition der Bevölkerung führen.

Die in diesem Kapitel beschriebenen Prozesse und die daraus resultierende Entwicklung werden den weiteren Analysen zu den Deltas des Aspekts 1 zu Grunde gelegt.

2.3 Gasproduktion

In diesem Kapitel werden die im Endlager Konrad in der Nachbetriebsphase gebildeten Gasmengen und die Gasbildungsraten abgeschätzt. In der Nachbetriebsphase eines Endlagers für radioaktive Abfälle können signifikante Mengen an Gasen durch unterschiedliche Prozesse gebildet werden. In einem Endlager für schwach- und mittelradioaktive Abfälle wie dem Endlager Konrad sind für die Gasbildung primär die Korrosion von Metallen und die Zersetzung von organischen Stoffen zu betrachten. Vernachlässigt werden bezüglich der Abschätzung der Gasmenge weitere mögliche Prozesse, die nur Spuren an Gasen erzeugen. Beispiele hierfür sind radiolytische Prozesse, die auf Grund

der geringen Strahlung der Abfälle im Endlager Konrad im Hinblick auf die Gasbildung zu vernachlässigen sind und chemische Reaktionen, die nur im geringen Umfang stattfinden, wie jene, die in Kapitel 2.1 diskutierten Verbindungen von methyliertem Iod oder Selen erzeugen.

Bei der Gasbildung werden Metalle und organische Stoffe umgesetzt, die mit den Abfällen in das Endlager eingebracht wurden. Bei deren Umsetzungen wird entweder Wasser verbraucht, oder die Anwesenheit von Wasser ist erforderlich, ohne dass dieses verbraucht wird. Bei ausreichendem Wasserangebot sind die entstehenden Gasmengen den vorhandenen Mengen an Metallen und organischen Stoffen proportional. In der Langzeitsicherheitsanalyse wird die Zutrittsrate von Wasser in das Grubengebäude zu 50 l/min abgeschätzt /STO 86/, was etwa 46 mol pro Sekunde entspricht. Im Endlager Konrad kann im Vergleich zu den im Folgenden abgeleiteten Raten der umgesetzten Stoffmengen davon ausgegangen werden, dass der Wasserzutritt in das Grubengebäude ausreichend groß ist, so dass die Gasproduktion nicht durch die Verfügbarkeit von Wasser beschränkt ist.

Die Korrosion der Metalle und die Zersetzung der organischen Stoffe findet auch schon während der Betriebsphase des Endlagers statt. Dadurch wird ein Teil der gasbildenden Stoffe verbraucht. Dieser Verbrauch wird als gering im Vergleich zu den vorhandenen Stoffmengen angenommen und daher vernachlässigt. Es wird stattdessen angenommen, dass sämtliche gasbildende Stoffe zu Beginn der Nachbetriebsphase des Endlagers noch vollständig zur Verfügung stehen. Weiterhin wird davon ausgegangen, dass das gesamte Inventar der gasbildenden Stoffe an der Umsetzung teilnimmt. Diese Annahmen sind konservativ im Hinblick auf die insgesamt gebildete Gasmenge und den sich durch die Gase ergebenden Gasdruck.

2.3.1 Mengen gasbildender Stoffe

Das Stoffinventar im Endlager Konrad ist in /KUG 03/ angegeben und in Tab. 2.1 sind daraus die Mengen der relevanten gasbildenden Stoffe in den Einlagerungsfeldern zusammengefasst. Es zeigt sich, dass die weitaus größte Masse an gasbildenden Stoffen durch das Eisen der Endlagerbehälter in das Endlager eingebracht wird.

Tab. 2.1 Mengen gasbildender Stoffe nach /KUG 03/

Stoff	Masse [10^3 kg]
Eisen im Behälter	294.622
Eisen im Abfall	25.119
Aluminium im Abfall	916
Zink im Abfall	3,5
Zirkonium im Abfall	1.528
Organika/Zellulose im Abfall	815
Kunststoffe/Öle im Abfall	7.469
Kunststoff in den Fixierungsmitteln	974

2.3.2 Korrosion von Metallen

Unter anaeroben Bedingungen können Metalle durch Wasser oxidieren, wobei Wasserstoff freigesetzt wird. Die berücksichtigten Reaktionsgleichungen bei der Korrosion von Metallen und die dabei gebildeten spezifischen Gasmengen sind in Tab. 2.2 zusammengestellt.

Hinsichtlich der Korrosion von Metallen ist auf Grund der großen Menge in erster Linie das Eisen zu betrachten. Bei der anaeroben Korrosion des Eisens kann sich unter Verbrauch von Wasser Wasserstoff bilden. Bezüglich der gebildeten Gasmenge ist der ungünstigste Reaktionsweg die Bildung von Eisen(II)oxid, das anschließend in Magnetit umgewandelt wird /MUE 92/. Pro mol umgesetzten Eisens werden in diesem Fall 1,33 mol Gas produziert und 1,33 mol Wasser verbraucht. Andere ebenfalls mögliche Reaktionswege, wie z. B. die Bildung von Eisen(II)-hydroxid, Siderit oder Grünrost erzeugen eine geringere Menge an Wasserstoff. Eine aerobe Korrosion des Eisens, die während der Betriebsphase bei Vorhandensein von Sauerstoff stattfindet und die Menge an gasbildendem Eisen verringert, wird hier nicht berücksichtigt.

Eine Übersicht über die Literatur zu Korrosionsraten von Metallen in einem Endlager geben /DIO 14/ und /SWA 15/. Im Endlager Konrad ist auf Grund der großen Mengen an Beton, der mit dem Versatz (Dickstoff) und den Abfällen eingebracht wird, mit alkalischen hydrochemischen Bedingungen und einem pH-Wert größer als 12 zu rechnen /KIM 87/, was einen Einfluss auf die Korrosionsrate von Eisen hat. Die Korrosionsraten von Eisen

und Stahl unter anaeroben, alkalischen Bedingungen sind sehr gering und liegen laut der Zusammenstellung in Tabelle 3.4 in /DIO 14/ zwischen 3 und 27 nm/a, wobei die Mehrheit der Messwerte unterhalb von 10 nm liegt. Für den Referenzfall wird daher im Folgenden ein Wert von 10 nm/a angenommen. Ein größerer Wert für die Korrosionsrate, der die Bandbreite vollständig abdeckt, wird in einer Variante betrachtet (s. u.). Anhand der Mengenangaben zum Inventar ist ersichtlich, dass der größte Teil des Eisens durch die Endlagerbehälter in das Endlager eingebracht wird. Entsprechend der Endlagerungsbedingungen für das Endlager Konrad /BFS 14/ bestehen die Seitenwände der Container aus Stahlblech von mindestens 3 mm Dicke. Die minimale Materialstärke der Containerwände wird im Referenzfall als zu korrodierende Materialstärke angenommen, woraus sich eine Dauer bis zur vollständigen Korrosion des Eisens (Korrosionsdauer), bzw. eine Dauer bis zur vollständigen Bildung der Gase (Gasproduktionsdauer) von 300.000 Jahren ergibt. Bei einer größeren Materialstärke ergibt sich eine entsprechend längere Korrosionsdauer.

Da eine kürzere Korrosionsdauer zu einer schnelleren Gasbildung und potenziell auch zu einem höheren Gasdruck im Endlager führt, wird als Variante eine um einen Faktor 100 kürzere Korrosionsdauer für das Eisen angenommen. Die kürzere Korrosionsdauer kann zum einen durch einen Anteil an Eisen im Abfall mit einer geringeren Materialstärke, als auch durch eine schnellere Korrosionsrate verursacht werden. Eine entsprechend kurze Korrosionsdauer ist unter den gegebenen Umständen zwar eher nicht zu erwarten, dient aber zur Bewertung der Ungewissheit bezüglich des Werts der Korrosionsdauer auf das Systemverhalten. In dem alternativen Fall wird somit eine Gasproduktionsdauer von 3.000 Jahren angenommen. Dieser Wert liegt auch nahe an dem Wert für die Dauer der Gasproduktion von 5.000 Jahren, der im Rahmen der langzeitsicherheitsanalytischen Betrachtungen für das Endlager Konrad bei der Analyse zur Auswirkung der Gasproduktion auf die Grundwasserströmung verwendet wurde /PAH 89/. Dieser Wert wurde dort allerdings nicht begründet.

Die weiteren Metalle Aluminium, Zink und Zirkonium liegen ausschließlich im Abfall vor, und sie leisten auf Grund der vergleichsweise geringen Stoffmenge nur einen untergeordneten Beitrag zur gebildeten Gasmenge. Auf Basis der vorliegenden Informationen zum Inventar der sonstigen Metalle können keine belastbaren Informationen zu deren geometrischer Form gemacht werden. Es wird konservativ angenommen, dass ein größerer Teil der sonstigen Metalle fein verteilt im Abfall vorliegt und schnell korrodieren

kann. Als Korrosionsdauer für die sonstigen Metalle wird daher einheitlich eine Korrosionsdauer von 100 Jahren angenommen.

Tab. 2.2 Reaktionsgleichungen und spezifische gebildete Gasmengen bei der Korrosion der Metalle

Stoff	Reaktionsgleichung	Spez. Gasmenge [mol/kg]
Eisen	$3\ Fe + 4\ H_2O \rightarrow Fe_3O_4 + 4\ H_2$	33,31
Aluminium	$2\ Al + 6\ H_2O \rightarrow 2\ Al(OH)_3 + 3\ H_2$	55,59
Zink	$Zn + 2\ H_2O \rightarrow Zn(OH)_2 + H_2$	15,30
Zirkonium	$Zr + 2\ H_2O \rightarrow ZrO_2 + 2\ H_2$	21,92

Tab. 2.3 Korrosionsdauer der Metalle in Jahren im Referenzfall

Eisen	300.000
Aluminium	100
Zink	100
Zirkonium	100

Tab. 2.4 Korrosionsdauer der Metalle in Jahren in der Variante

Eisen	3.000
Aluminium	100
Zink	100
Zirkonium	100

2.3.3 Zersetzung von Organika und Kunststoffen

Die Zersetzung von Organika und Kunststoffen kann sowohl abiotisch als auch durch mikrobielle Prozesse erfolgen /LLO 21/. Bei der abiotischen Zersetzung findet keine Gasbildung statt, es werden aber von den Ausgangsstoffen kurzkettige organische Moleküle abgespalten, die nachfolgend leichter als der Ausgangsstoff in mikrobiellen Prozessen zersetzt werden können. Die abiotische Zersetzung unter alkalischen Bedingungen wurde z. B. in /VAN 98/ an Zellulose untersucht. Bei dem sogenannten Peeling-Prozess werden Endgruppen vom Ende des Zellulose-Makromoleküls abgespalten. Bei der alkalischen Hydrolyse wird die Zellulose-Kette nicht am Ende, sondern irgendwo in

der Mitte gespalten. Dies führt zu kürzeren Ketten, die wiederum dem Peeling-Prozess unterliegen. Die Teilung der Makromoleküle in eine immer größere Anzahl kleinerer reaktiver Abschnitte führt zu einer Beschleunigung des Zellulose-Abbaus.

Für die Gasbildung bei der Zersetzung von Organika und Kunststoffen sind letztendlich die mikrobiellen Prozesse verantwortlich. Dabei sind die Prozesse Fermentation, Methanogenese, Denitrifikation und Sulfatreduktion zu betrachten. Die Reaktionen für alle Zersetzungsprozesse und die entstehenden spezifischen Gasmengen bezogen auf die Masse der organischen Stoffe sind zusammenfassend in Tab. 2.5 und Tab. 2.6 angegeben. Dabei werden zelluloseartige Stoffe als $C_6H_{12}O_6$ und Kunststoffe als C_2H_4 abgebildet. Die größte spezifische Gasmenge wird jeweils bei der Zersetzung durch Fermentation gebildet. Hierbei wird Wasser verbraucht und es werden Kohlendioxid, Wasserstoff und Methan gebildet. Als konservativer Ansatz bezüglich der gebildeten Gasmenge wird für die weiteren Betrachtungen die Fermentation berücksichtigt. Andere Prozesse zur Umsetzung der Organika sind mit einer geringeren oder keiner Gasbildung verbunden, so dass die angegebenen Werte als ungünstige Annahme anzusehen sind.

Tab. 2.5 Reaktionsgleichungen und spezifische gebildete Gasmengen bei der Zersetzung von Zellulose

F = Fermentation, M = Methanogenese, D = Denitrifikation, S = Sulfatreduktion, C = Ausfällung des CO_2 als Carbonat

Prozess	Reaktionsgleichung		Spez. Gasmenge [mol/kg]
F	$C_6H_{12}O_6 + 2\ H_2O$	$\rightarrow 4\ CO_2 + 4\ H_2 + 2\ CH_4$	55,51
F + C	$C_6H_{12}O_6 + 2\ H_2O$	$\rightarrow 4\ H_2 + 2\ CH_4$	33,31
F + M	$C_6H_{12}O_6$	$\rightarrow 3\ CO_2 + 3\ CH_4$	33,31
D	$5\ C_6H_{12}O_6 + 24\ NO^{3-} + 24\ H^+$	$\rightarrow 30\ CO_2 + 12\ N_2 + 42\ H_2O$	46,63
S	$C_6H_{12}O_6 + 3\ SO_4^{2-} + 6\ H^+$	$\rightarrow 6\ CO_2 + 3\ H_2S + 6\ H_2O$	49,96

Tab. 2.6 Reaktionsgleichungen und spezifische gebildete Gasmengen bei der Zersetzung von Kunststoffen

F = Fermentation, M = Methanogenese, D = Denitrifikation, S = Sulfatreduktion, C = Ausfällung des CO_2 als Carbonat

Prozess	Reaktionsgleichung	Spez. Gasmenge [mol/kg]
F	$6\ C_2H_4 + 16\ H_2O \rightarrow 8\ CO_2 + 20\ H_2 + 4\ CH_4$	190,13
F + C	$6\ C_2H_4 + 16\ H_2O \rightarrow 20\ H_2 + 4\ CH_4$	142,60
F + M	$6\ C_2H_4 + 6\ H_2O \rightarrow 3\ CO_2 + 9\ CH_4$	71,30
D	$5\ C_2H_4 + 12\ NO^{3-} + 12\ H^+ \rightarrow 10\ CO_2 + 6\ N_2 + 16\ H_2O$	57,30
S	$2\ C_2H_4 + 3\ SO_4^{2-} + 6\ H^+ \rightarrow 4\ CO_2 + 3\ H_2S + 4\ H_2O$	62,67

Für das Endlager Konrad ist auf Grund der großen Mengen an Zement im Versatz und den Abfällen davon auszugehen, dass das gebildete Kohlendioxid nicht als Gas vorliegt, da es entsprechend der Reaktionsgleichung $CO_2 + Ca(OH)_2 \rightarrow CaCO3 + H_2O$ mit dem Calciumhydroxid des Zements reagiert und als Carbonat ausfällt. Dementsprechend wird im Referenzfall das gebildete CO_2 bei den entstehenden Gasmengen nicht berücksichtigt (Gleichung F + C in Tab. 2.5 und Tab. 2.6). In der Variante wird hingegen als konservative Annahme die Carbonatisierung des CO_2 vernachlässigt und das gesamte gebildete Gas inklusive des CO_2 berücksichtigt. Zusätzliche gasreduzierende mikrobielle Prozesse, wie die experimentell beobachtete Methanogenese des bei der Eisenkorrosion primär gebildeten Wasserstoffs /SMA 21/, werden konservativ vernachlässigt.

Eine Modellierung der Zersetzung der organischen Abfallbestandteile erfolgte z. B. für das Endlager für Radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) in /POP 02/. Die Umsetzungsraten für Kunststoffe weisen demnach eine große Bandbreite auf, wobei grundsätzlich die Zersetzung der Kunststoffe wesentlich langsamer als die der Zellulose erfolgt. Aus der Bandbreite der modellierten Gasentwicklung für das ERAM wurden in /BEC 09/ Dauern für die Umwandlung von Organika parametrisiert, wonach Zersetzungsdauern von einigen hundert bis tausend Jahre für die Zersetzung von Zellulose und von 100.000 Jahren für die Zersetzung von Kunststoffen zu erwarten sind. Für das Endlager Konrad werden in den Einlagerungsgrubenbauen eine hohe Salinität der Lösung und auf Grund der großen Mengen an Zement ein hoher pH-Wert der Lösung größer als 12 erwartet /KIM 87/. Für so hohe pH-Werte ist die mikrobielle Aktivität deutlich eingeschränkt

/MAC 89/, kann aber nicht vollständig ausgeschlossen werden /LLO 21/. Es ist aber mit einer verringerten Umsetzungsrate zu rechnen.

Eine detaillierte Modellierung der Umwandlungsrate wird für die Fragestellung und auf Grund der Ungewissheiten bezüglich der Zusammensetzung der in das Endlager eingebrachten Materialien als nicht sinnvoll erachtet, und deshalb werden die für das ERAM abgeleiteten Zersetzungsdauern im Folgenden als Grundlage für den Referenzfall angenommen. Die verwendeten Umsetzungsdauern für die Zersetzung von Organika sind in Tab. 2.7 angegeben. Zur Berücksichtigung der Ungewissheiten in der Umwandlungsrate von Organika wird in der Variante jeweils eine um einen Faktor 10 schnellere Umsetzung betrachtet.

Tab. 2.7 Modellparameter bezüglich der Zersetzung von Organika

Modellparameter	Referenzfall	Variante
Spezifische Gasmenge Zersetzung Zellulose [mol/kg]	33,31	55,51
Gasbildungsdauer Zellulose [a]	1.000	100
Spezifische Gasmenge Zersetzung Kunststoff [mol/kg]	142,60	190,13
Gasbildungsdauer Kunststoff [a]	100.000	10.000

2.3.4 Gasmenge und Gasbildungsrate für die numerische Modellierung

Aus den in den Kapiteln 2.3.1 bis 2.3.3 beschriebenen Einzelaspekten wird im Folgenden die im Endlager insgesamt resultierende Gasmenge und Gasbildungsrate bei einer vollständigen Umsetzung der Gesamtmenge der angegebenen gasbildenden Stoffe und einer maximalen Gasbildung bei deren Umsetzung als Eingangsparameter für die weiteren numerischen Analysen abgeleitet. Die angegebenen Werte überschätzen die zu erwartende Gasmenge, so dass bei einer realistischeren Betrachtung auch größere Mengen an gasbildenden Ausgangsstoffen durch diese Werte mit abgedeckt sind. Die Annahmen zu den insgesamt gebildeten Gasmengen sind in Tab. 2.8 zusammengefasst. Über 80 % der Gase entstehen durch die Korrosion des Eisens der Abfallbehälter. Da sowohl die geometrische Form der Abfallbehälter als auch die Korrosion von Eisen unter alkalischen Bedingungen vergleichsweise gut bekannt sind, ist anzunehmen, dass die im Referenzfall und der Variante angenommene Bandbreite der Parameter die Ungewissheit bezüglich der Gasbildung vollständig abdeckt. Die Ungewissheiten bezüglich

der Zersetzung von Organika spielen deshalb nur eine untergeordnete Rolle. Der Unterschied in der insgesamt gebildeten Gasmenge zwischen der Variante und dem Referenzfall ergibt sich durch die Berücksichtigung bzw. Nichtberücksichtigung der Ausfällung von CO_2. Der Unterschied ist nicht wesentlich und beträgt nur etwa 5 %.

Im Referenzfall werden demnach $8{,}95 \cdot 10^9$ mol Gas im Grubengebäude gebildet. In /STO 86/ wird in Tabelle 2-4 das Resthohlraumvolumen im Grubengebäude ohne die alten Abbaufelder zu 739.000 m³ errechnet. Geht man davon aus, dass das Volumen der Einlagerungsfelder entsprechend der Beschränkung der Abfallmenge von 650.000 auf 303.000 m³ in gleicher Weise proportional abnimmt, dann ergäbe sich ein Resthohlraumvolumen im Endlager Konrad von etwa 543.000 m³ (vgl. auch Anhang C) in denen entsprechend dem Molvolumen für ein ideales Gas maximal $2{,}42 \cdot 10^7$ mol Luft unter Atmosphärendruck (0,1 MPa) enthalten sind. Dies bedeutet, dass etwa 370-mal so viel Gas im Endlager gebildet wird, wie ursprünglich als Luft im Grubengebäude enthalten ist und dass diese Gasmenge ohne Abtransport zu einem Druckanstieg auf 37,5 MPa führen könnte.[2] Das gebildete Gas kann somit nicht im Resthohlraum des Endlagers gespeichert werden, sondern es muss Gas aus dem Grubengebäude in die Geosphäre entweichen. Modellrechnungen im Rahmen des PFV /JAV 92/ zeigen, dass das Gas auf Grund seiner gegenüber dem Grundwasser geringeren Dichte senkrecht nach oben steigt, die über dem Grubengebäude liegenden Gesteinsschichten teilweise entsättigt und als Gasphase innerhalb von 5.000 Jahren bereits 200 Meter aufgestiegen ist und die Mitte des Kimmeridge erreicht[3]. Bei einer gleichbleibenden Aufstiegsgeschwindigkeit könnte die Gasphase und sich darin befindliche Radionuklide die Oberfläche in nur 25.000 Jahren erreichen. Eine Quantifizierung der weiteren Ausbreitung der Gase ist nur mit einer numerischen Modellierung möglich, die im Folgenden durchgeführt wird.

Mit Hilfe der in den vorangegangenen Kapiteln genannten Korrosionsdauern für die unterschiedlichen Materialien ergibt sich die in Abb. 2.1 dargestellte zeitliche Abhängigkeit der Gasbildungsrate für den Referenzfall und die Variante. Dabei wird jeweils die Korrosionsrate als konstant über die gesamte Dauer zur Korrosion eines der betrachteten Stoffe angenommen.

---

[2] Dieser Abschätzung liegt die Annahme zu Grunde, dass der Porenraum im Versatz zu Beginn luftgefüllt ist. Sollte der Porenraum teilweise lösungsgefüllt sein, dann würde der abgeschätzte Druck entsprechend höher ausfallen.

[3] Modellierungen in /PAH 89/ zeigten demgegenüber einen räumlich schrägen und zeitlich schnelleren Gasaufstieg. Der Unterschied in den Modellergebnissen konnte zu Zeiten des PFV nicht geklärt werden.

Tab. 2.8 Menge gebildeter Gase in Mol bei vollständiger Umsetzung der unterschiedlichen Ausgangsstoffe in den Rechenfällen

Ausgangsstoff	Referenzfall	Variante
Eisen im Behälter	$7{,}03 \cdot 10^{9}$	$7{,}03 \cdot 10^{9}$
Eisen im Abfall	$6{,}00 \cdot 10^{8}$	$6{,}00 \cdot 10^{8}$
Aluminium im Abfall	$5{,}09 \cdot 10^{7}$	$5{,}09 \cdot 10^{7}$
Zink im Abfall	$5{,}35 \cdot 10^{4}$	$5{,}35 \cdot 10^{4}$
Zirkonium im Abfall	$3{,}35 \cdot 10^{7}$	$3{,}35 \cdot 10^{7}$
Organika/Zellulose im Abfall	$2{,}71 \cdot 10^{7}$	$4{,}52 \cdot 10^{7}$
Kunststoffe/Öle im Abfall	$1{,}07 \cdot 10^{9}$	$1{,}42 \cdot 10^{9}$
Kunststoff in den Fixierungsmitteln	$1{,}39 \cdot 10^{8}$	$1{,}85 \cdot 10^{8}$
Summe	$8{,}95 \cdot 10^{9}$	$9{,}37 \cdot 10^{9}$

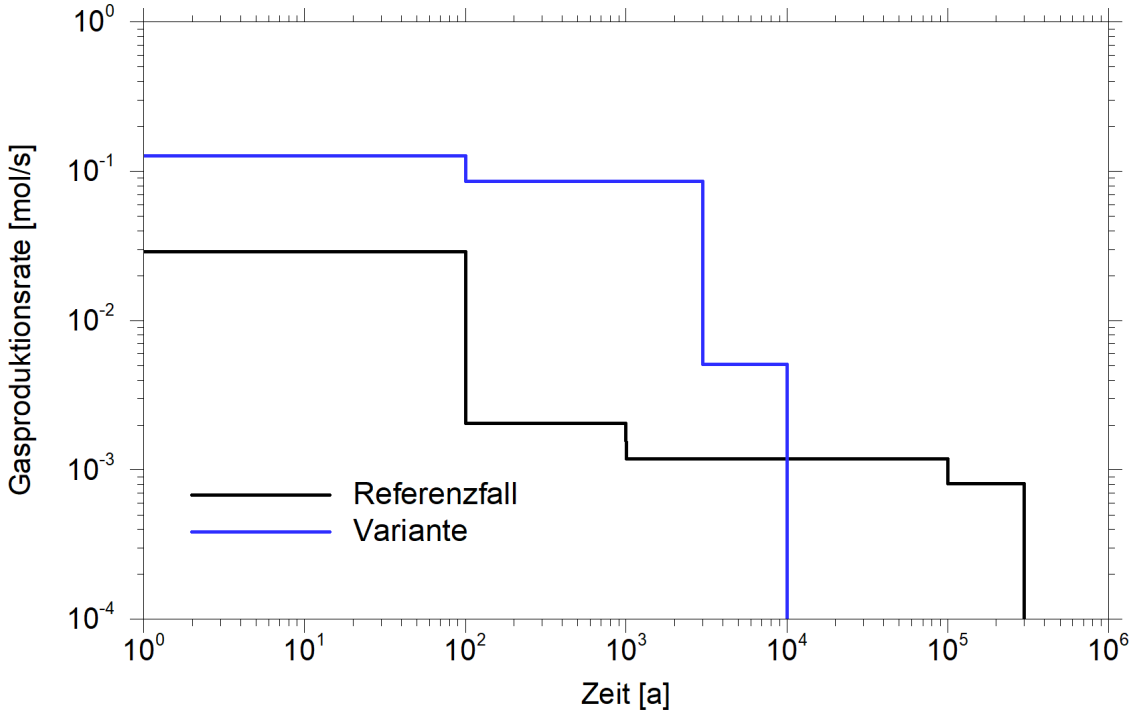

Abb. 2.1 Zeitliche Entwicklung der angenommenen Gasproduktionsrate für den Referenzfall und die Variante

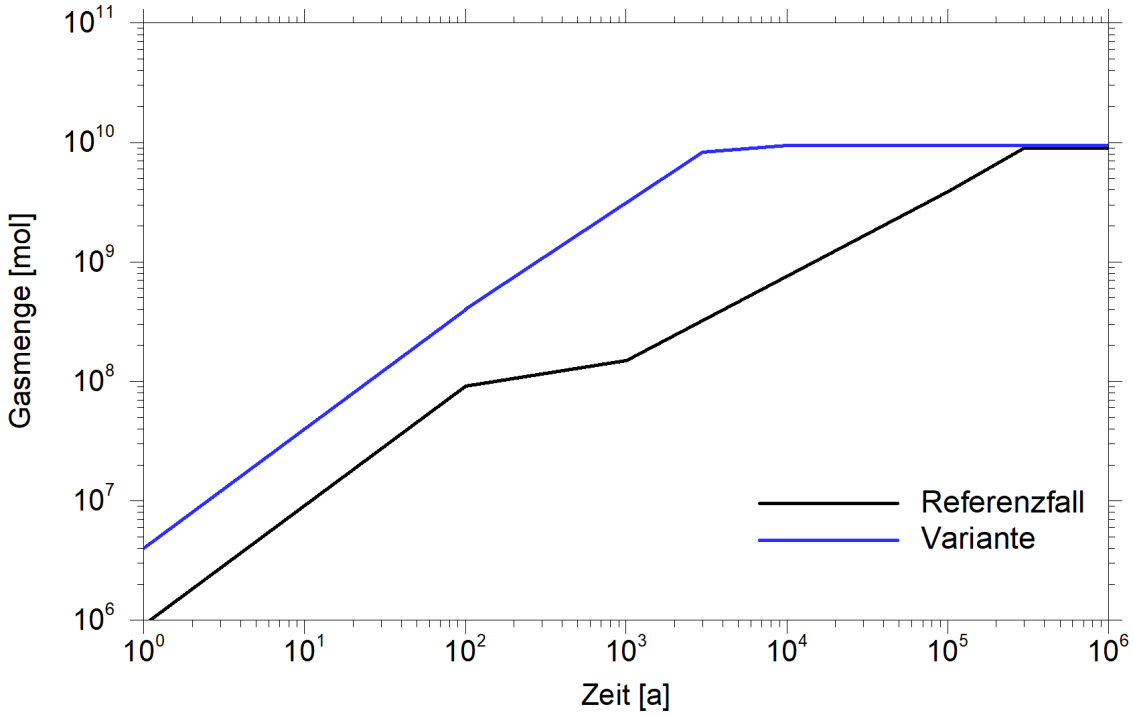

Abb. 2.2 Zeitliche Entwicklung der angenommenen gebildeten Gasmenge für den Referenzfall und die Variante

2.4 Numerische Analysen

Das Szenario zur Gasproduktion und dem Gastransport wurde in Kapitel 2.2 beschrieben. In Kapitel 2.3 wurde die im Endlager Konrad gebildete Gasmenge abgeschätzt und dargelegt, dass zu erwarten ist, dass in der Nachbetriebsphase Gas aus dem Grubengebäude in die Geosphäre entweicht. Da sowohl die Gasproduktion im Grubengebäude als auch die Gasfreisetzung aus dem Grubengebäude in die Geosphäre zu erwarten sind, sind die in der Phase 1 der ÜsiKo identifizierten Deltas ∆24 und ∆26 bezüglich des Transports von Radionukliden in der Gasphase weiterhin als offen einzustufen und bezüglich ihrer Sicherheitsrelevanz quantitativ zu bewerten. Folgende Fragen sind dabei zu beantworten:

- Werden radioaktive Gase in die Biosphäre freigesetzt?
- Werden durch den Anstieg des Fluiddrucks neue Wegsamkeiten erzeugt?

Dabei wird sich an der in Phase 1 der ÜsiKo skizzierten Vorgehensweise orientiert (/RUE 17/ Formblatt 4.2, S. 193, Empfehlung zum Umgang mit dem Delta): „*Durchfüh-*

rung von numerischen Modellrechnungen mit einem 2-Phasen-Transportprogramm ähnlich derer in EU 321 und GS 26, aber unter Berücksichtigung eines größeren Modellgebiets und eines längeren Zeitraums. Dabei sind insbesondere die Schichten im Hangenden des Kimmeridge mit in die Rechnungen mit einzubeziehen. In diesem Fall sind für die zusätzlich zu betrachtenden Gesteinsschichten die Modellparameter für den Zweiphasenfluss zu definieren, da diese im Verfahren bisher nicht vorliegen.“ Die in dem Zitat genannten Literaturstellen EU 321 und GS 26 entsprechen /PAH 89/ und /JAV 92/.

Im Folgenden werden Arbeiten dargestellt, welche zur Modellierung der Ausbreitung der Gasphase mit dem Code TOUGH2 /PRU 12/ durchgeführt wurden. TOUGH2 ist ein Code zur Simulation mehrphasiger thermo-hydraulischer Strömungsvorgänge in porösen Medien, der vom Lawrence Berkeley National Laboratory, Kalifornien, USA, entwickelt wurde. Dieser ausgiebig validierte Code /WU 96/, /PRU 96/ wird weit verbreitet und international im Zusammenhang mit Endlagerprojekten eingesetzt (z. B. /SHA 13/ und /LEV 21/). Die im Folgenden beschriebene Modellierung beschränkt sich auf hydraulische Prozesse. Thermische Prozesse können auf Grund der geringen Wärmeproduktion der Abfälle im Endlager Konrad vernachlässigt werden. Für den Fall, dass der hydraulische Druck mit Berücksichtigung der Gasproduktion die hydraulischen Gleichgewichtsbedingungen wesentlich übersteigt, muss unter Umständen eine Kopplung der hydraulischen mit mechanischen Prozessen in Erwägung gezogen werden. Diese Frage wird im Zusammenhang mit den Ergebnissen zum zweiten oben genannten Punkt bezüglich der Erzeugung von neuen Wegsamkeiten diskutiert.

2.4.1 Rechenmodell

Eine Freisetzung von Gasen aus dem Endlager wurde bereits im Rahmen des PFV zum Endlager Konrad betrachtet /PAH 89/, /JAV 92/. Die Analyse bezog sich auf die Frage, ob durch die Gasfreisetzung die Grundwasserströmung in relevanter Weise beeinflusst werden kann. In einem ersten Schritt wurde das 2D-Modell von /JAV 92/ nachgebildet und erweitert, die Ergebnisse von /JAV 92/ erfolgreich reproduziert und erste Testrechnungen durchgeführt. Danach wurde ein dreidimensionales, planares Rechenmodell erstellt, welches die Unterkreide, den Kimmeridge und den Oxford mit dem darin liegenden Grubengebäude umfasst (vgl. Anhang A). Die Unterkreide wird zusätzlich von der Oberkreide überlagert, die ähnliche Eigenschaften aufweist. In Abb. 2.3 ist das 3D-Modell dargestellt, welches eine Süd-Nord und Ost-West Ausdehnung von jeweils 5 km und eine vertikale Ausdehnung von 650 m hat, in welcher die genannten Schichten jeweils

als homogen betrachtet werden. In dem betrachteten Gebiet sind keine größeren Störungen bekannt, die die Unterkreide und Oberkreide betreffen. Abb. 2.4 zeigt den Süd-Nord Schnitt (vertikal um den Faktor 5 überhöht dargestellt) des TOUGH2 Modells, welcher durch das Grubengebäude verläuft und in Abb. 2.3 gelb markiert ist. Die Diskretisierung ist in Süd-Nord und Ost-West Richtung gleich.

Die Ergebnisse des Referenzfalls sind in Kapitel 2.4.2 dargestellt. In Kapitel 2.4.3.1 und 2.4.3.2 sind die Ergebnisse der Variationsrechnungen zu finden. Der Einfluss von Altbohrungen und des Schachts auf die Gasausbreitung wird in Kapitel 2.4.4 diskutiert.

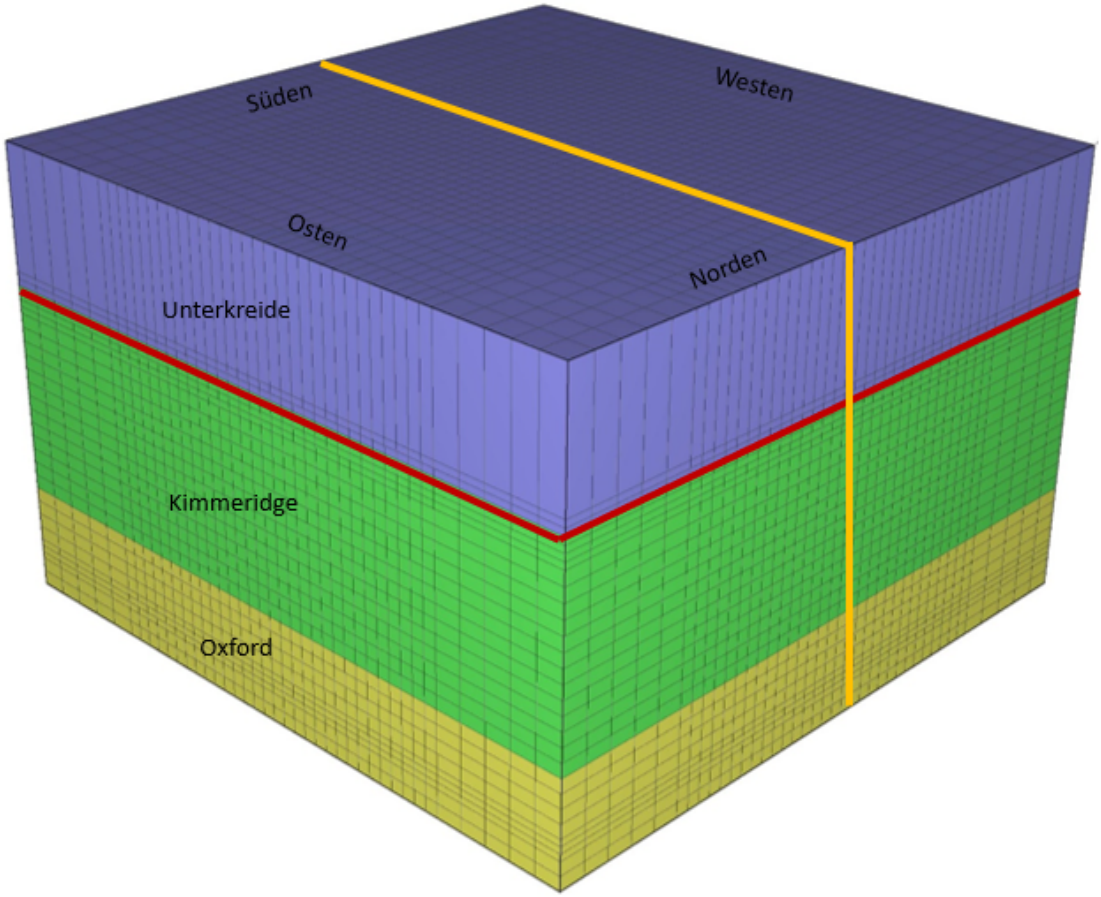

Abb. 2.3 Darstellung des 3D-Modells

Der rot markierte Schnitt kennzeichnet die oberste Schicht des Kimmeridge in 605 m Teufe und der gelb markierte Schnitt ist der Schnitt durch das Grubengebäude (dieser Schnitt ist in Abb. 2.4 abgebildet). Für diese beiden Schnitte wird in Kapitel 2.4.2 die Gasausbreitung dargestellt

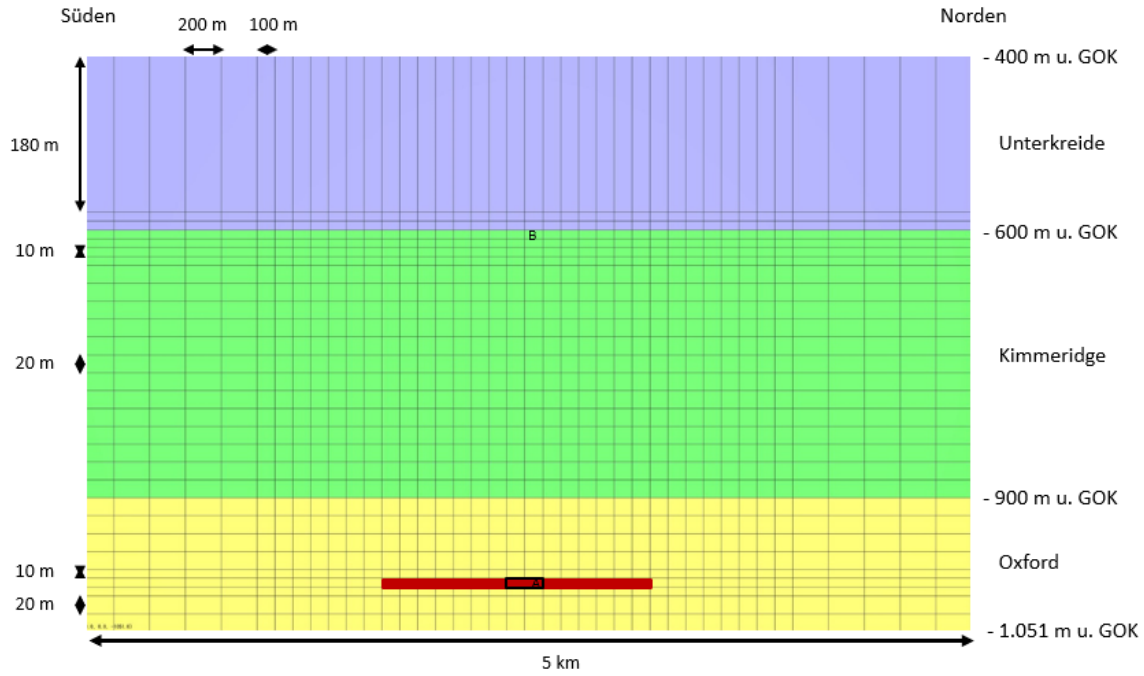

Abb. 2.4 Darstellung des 3D-Modells als Süd-Nordschnitt (5-fach überhöht)

Die rot markierten Volumenelemente kennzeichnen das Grubengebäude, wobei die schwarz umrandeten die gasgenerierenden sind. A markiert das Volumenelement im Grubengebäude und B das Volumenelement im Kimmeridge, in dem der Fluiddruck in Kapitel 2.4.2 betrachtet wird

Es werden für die Modelleinheiten Kimmeridge und Oxford die Material- und Zweiphasenparameter für die van-Genuchten-Funktion von /JAV 92/ übernommen, da eine Literaturrecherche keine belastbaren neueren Zweiphasenparameter für diese Einheiten ergeben hat. Die Material- und Zweiphasenparameter des Grubengebäudes stammen mit Ausnahme der Porosität ebenfalls von /JAV 92/. Die Porosität im Grubengebäude wird gemäß /STO 86/ gewählt. Für die Unterkreide werden Material- und Zweiphasenparameter des Opalinuston verwendet /NAG 08/, da der Opalinuston und die Unterkreidetone vergleichbare mineralogische Eigenschaften aufweisen. Der hohe Gaseindringdruck P_0 von 18 MPa im van-Genuchten-Modell, welcher vom Opalinuston für die Unterkreidemodelleinheit übernommen wurde, wird gestützt durch experimentell bestimmte Kapillardruckkurven (vgl. Abb. 2.6) und einen vergleichbaren Wert des Callovo-Oxfordian Tons /ENS 11/, /LEV 21/. Ein etwas höherer Wert für P_0 für die Unterkreide von 20 MPa wurde im Vorhaben RESUS angewendet /ALF 20/. Die im Referenzfall verwendeten Material- und Zweiphasenparameter für die van-Genuchten-Funktion in TOUGH2 /PRU 12/ sind in Tab. 2.9 zusammengefasst, und in Abb. 2.5 sind die relative Permeabilität und der

Kapillardruck dargestellt. Weiterhin werden die für den Referenzfall abgeschätzten Gasproduktionsraten aus Kapitel 2.3.4 zu Grunde gelegt. Die Gasproduktion erfolgt im Modell ausschließlich in den in Abb. 2.4 schwarz umrandeten Modellsegmenten. Die vier Modellsegmente, in denen die Gasproduktion angenommen wird, haben ein Volumen von 400.000 m³ und bei einer Porosität von 0,4 ein Hohlraumvolumen von 160.000 m³. Diese Volumnia sind auf Grund der Diskretisierung im Modell etwas geringer als das zu erwartende Volumen der Einlagerungsfelder (vgl. Kapitel 2.3.4), was für die Modellierung konservativ zu einem höheren Gasdruck führt.

Der hydrostatische Druck bei vollständiger Sättigung an der südlichen Modelloberkante beträgt 3,964 MPa entsprechend der Teufe von -400 m unter GOK und einer angenommenen Dichte der Lösung von 1.000 kg/m³. Aus dem Süd-Nord gerichteten hydraulischen Gradienten von 0,001 m/m /COL 89/ ergibt sich ein nach Norden gerichteter Druckgradient von 10 Pa/m. Die stationären Druck- und Geschwindigkeitsverteilungen bei den genannten Druckrandbedingungen und bei gesättigter Wasserströmung wurden in einer Vorrechnung berechnet und als Anfangszustand definiert. Im Grubengebäude entspricht der anfängliche Druck dem atmosphärischen Druck.

Tab. 2.9 Material- und Zweiphasenparameter des Referenzfalls

* Modellannahme; **/NAG 08/; ***/JAV 92/

Die mathematischen Formeln zur Beschreibung der Zweiphasenströmung nach van Genuchten, in die diese Parameter eingehen, sind in der TOUGH2-Dokumentation in den Anhängen G und H /PRU 12/ angegeben.

Parameter	Unterkreide	Kimmeridge	Oxford	Grubengebäude
Porosität n [-]	0,2**	0,1***	0,1***	0,4*
Permeabilität κ [m²]	$6 \cdot 10^{-18}$**	$1 \cdot 10^{-16}$***	$1 \cdot 10^{-15}$***	$1 \cdot 10^{-11}$***
Residuale Wassersättigung S_{lr} [-]	0,5**	0,35***	0,275***	0,2***
Residuale Gassättigung S_{gr} [-]	0,003**	0,05***	0,035***	0,02***
Maximale Wassersättigung [-]	1,0*	1,0*	1,0*	1,0*
Initiale Wassersättigung $S_{w\,ini}$ [-]	1,0*	1,0*	1,0*	0,7*
Gaseindringdruck P_0 [Pa]	$1{,}8 \cdot 10^{7}$**	7.500***	5.000***	1.500***
Abschneidekriterium P_{max} [Pa]	$1 \cdot 10^{9}$*	$1 \cdot 10^{9}$*	$1 \cdot 10^{9}$*	$1 \cdot 10^{9}$*
Formfaktor λ [-]	0,5**	0,9***	0,85***	0,83***
Feststoffdichte [kg/m³]	2.600*	2.600***	2.600***	2.600***
Porenkompressibilität [Pa^{-1}]	$5{,}8 \cdot 10^{-10}$*	$5{,}8 \cdot 10^{-10}$***	$5{,}8 \cdot 10^{-10}$***	$5{,}8 \cdot 10^{-10}$***

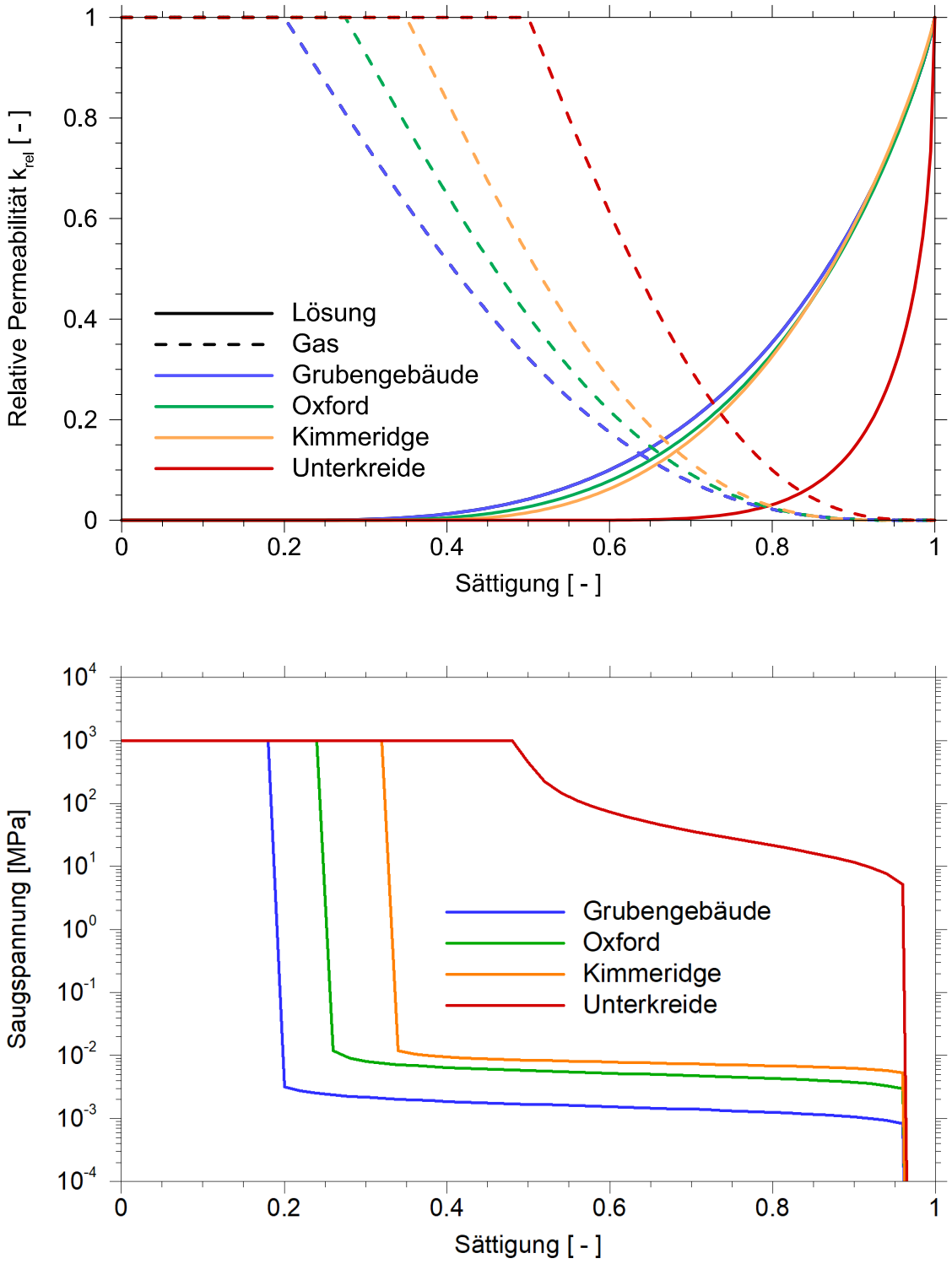

Abb. 2.5 Abhängigkeit der relativen Permeabilität (oben) und der Saugspannung (unten) von der Sättigung für die vier unterschiedlichen Materialien

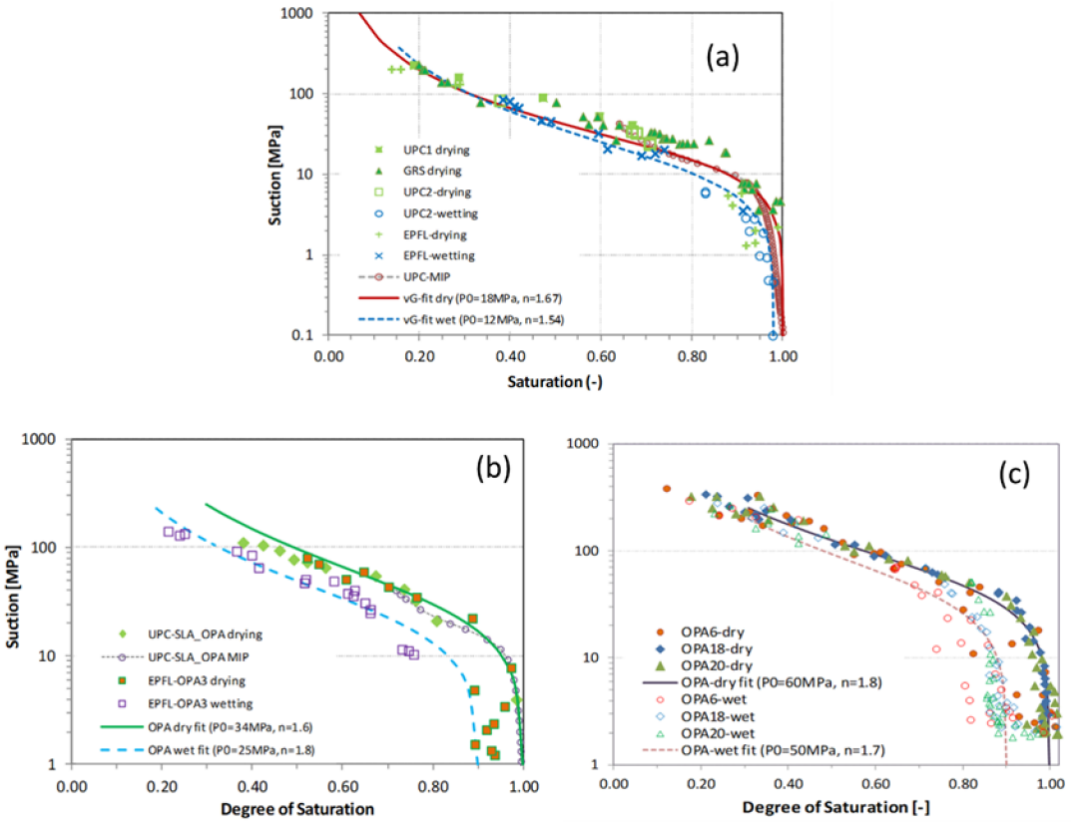

Abb. 2.6 Experimentell bestimmte Abhängigkeit der Saugspannung von der Sättigung für den Opalinuston /LEV 21/

2.4.2 Ergebnisse des Referenzfalls

Die Ergebnisse der Modellierung der Gasausbreitung für den Referenzfall werden im Folgenden erläutert. Es findet über einen Zeitraum von 4 Monaten eine Aufsättigung des Grubengebäudes statt und der anfänglich atmosphärische Druck steigt an, bis dieser nach 90 Jahren dem hydrostatischen Druck bei vollständiger Sättigung entspricht (vgl. Abb. 2.12). Diese Zeitspanne passt gut zu den Angaben in /STO 86/ (vgl. Kapitel 2.2). Die Gasphase kann sofort den Gaseindringdruck des Oxford überwinden und somit in diesen eindringen. Das im Endlager erzeugte Gas steigt lokal über den gasproduzierenden Modellelementen auf und erreicht nach 400 Jahren die Modellschicht an der Grenze zwischen Oxford und Kimmeridge. Nach 8.000 Jahren erreicht das Gas die oberste Modellschicht des Kimmeridge und damit die Unterkante der Unterkreide (Abb. 2.7).

Aufgrund des hohen Gaseindringdrucks der Unterkreide kann die Gasphase nicht in die Modelleinheit der Unterkreide eindringen, weshalb das Gas sich in der obersten Modell-

schicht des Kimmeridge lateral radial ausbreitet. Nach 300.000 Jahren endet die Gasproduktion. Zu diesem Zeitpunkt hat sich die Gasphase bis zu einem Durchmesser von ca. 2,6 km ausgebreitet (Abb. 2.8). Die oberste Modellschicht des Kimmeridge wird maximal bis zu einem Sättigungswert von 0,6 entsättigt. Dieser Wert ist größer als der Parameterwert der residualen Sättigung des Kimmeridge. Die Wahl der residualen Sättigung, nach /JAV 92/ hat damit keinen Einfluss auf die Gasausbreitung an der Grenze Kimmeridge-Unterkreide. Nach Ende der Gasproduktion wird die Gasphase entsprechend dem hydraulischen Gradienten weitere 200 m nach Norden transportiert und es beginnt die Auflösung der Gasphase. Die Gasphase hat einen maximalen Durchmesser von 2,8 km nach 500.000 Jahren (Abb. 2.9). Nach 1 Mio. Jahren sind einzelne Volumenelemente noch bis zu einem Sättigungswert von 0,9 entsättigt. Nach 2,1 Mio. Jahren hat sich das Gas entlang der obersten Schicht des Kimmeridge vollständig aufgelöst und es befinden sich nur noch residuale Sättigungsmengen in den Elementen zwischen dem Grubengebäude und dem Kimmeridge, wo sich das Gas nach ca. 8 Mio. Jahre ebenfalls aufgelöst hat (Abb. 2.10).

Abb. 2.10 zeigt die relativen Anteile der Gasphase im flüssigen und gasförmigen Zustand normiert auf die gesamte Masse Gas im System zu dem entsprechenden Zeitpunkt. Anfänglich liegt nur ein Anteil von 0,06 der Gasphase gasförmig vor, dieser sinkt jedoch rapide durch die Aufsättigung des Grubengebäudes. Nach einem Jahr steigt der relative Anteil der Gasphase im gasförmigen Zustand durch die einsetzende Gasproduktion an. Die Stufen der Kurve spiegeln die Stufen der Gasproduktionsrate und damit die stufenweise Umsetzung der Ausgangsstoffe wider. Da die Gasproduktionsrate zu späteren Zeiten niedriger ist, nimmt der relative Anteil nach 8400 Jahren wieder ab. Nach 300.000 Jahren endet die Gasproduktion im Referenzfall und der gasförmige Anteil nimmt durch die Auflösung der Gasphase sehr schnell ab bis sich die Gasphase nach 8 Mio. Jahren vollständig aufgelöst hat. Zum Vergleich sind die vorliegenden Massen des gasförmigen und flüssigen Anteils in Abb. 2.11 dargestellt.

Es wurden zwei Stellen im Modell identifiziert (markiert in Abb. 2.4), an welchen der berechnete Fluiddruck im Modell zu betrachten ist, um dessen Auswirkung auf die Systementwicklung zu überprüfen:

A: Im Einlagerungsbereich in 995 m Teufe und

B: in der obersten Modellschicht des Kimmeridge in 605 m Teufe, an der Stelle an der das Gas diese erreicht.

Neue Wegsamkeiten könnten durch den Anstieg des Fluiddrucks entstehen (Gasfracs), falls der Fluiddruck die minimale Hauptspannung im Gestein übersteigt. Die Vertikalspannung σ_1 ergibt sich aus der angenommenen mittleren Gesteinsdichte von 2.600 kg/m³ und der jeweils betrachteten Teufe. Für die Teufe des Grubengebäudes (Stelle A) ergibt sich σ_1 zu 25,4 MPa und für die Oberkante des Kimmeridge (Stelle B) zu 15,4 MPa. Ein anisotroper Spannungszustand kann dazu führen, dass die minimale Hauptspannung σ_3 geringer ist als σ_1. Messungen in /KLE 16/ für das Grubengebäude sowie /WIT 91a/ und /WIT 91b/ für die Unterkreide lassen einen Wert für σ_3/σ_1 von 0,5 erwarten, so dass für die minimale Hauptspannung and der Stelle A im Grubengebäude 12,7 MPa und an der Oberkante des Kimmeridge (Stelle B) 7,72 MPa angenommen wird.

In Abb. 2.12 ist die Entwicklung des Fluiddrucks an diesen beiden Stellen dargestellt, und die wesentlichen Werte sind in Tab. 2.10 zusammengestellt. Im Einlagerungsbereich steigt der Fluiddruck von initial atmosphärischem Druck an und entspricht dem hydrostatischen Gleichgewichtsdruck an der Stelle A des Modells[4] von etwa 9,34 MPa nach 300 Jahren. Der Fluiddruck in der Modellrechnung übersteigt den hydrostatischen Gleichgewichtsdruck an der Stelle A um nur 0,002 MPa. Dieser Anstieg des hydrostatischen Drucks ist als geringfügig einzuschätzen und hat eine Differenz von 3,35 MPa zur angenommenen minimalen Hauptspannung in der entsprechenden Teufe.

In der Umgebung des Grubengebäudes sinkt der Fluiddruck von dem initialen hydrostatischen Gleichgewichtsdruck bei vollständiger Sättigung auf einen niedrigeren Wert ab, da ein Lösungsfluss in das und ein Druckausgleich mit dem Grubengebäude stattfindet. Dieser Effekt ist auch in dem Volumenelement an der Stelle B im Kimmeridge im Zeitbereich von 0 bis 300 Jahre in Abb. 2.12 erkennbar. Eine entsprechende Druckerniedrigung stellt sich in der Realität bereits während der Offenhaltungszeit für Errichtung und Betrieb des Endlagers ein. Nach einem Jahr steigt der Fluiddruck im Modell wieder an und nähert sich dem hydrostatischen Gleichgewichtsdruck an der Stelle B des Modells von 5,55 MPa. Der Fluiddruck übersteigt den hydrostatischen Druck maximal um 0,013 MPa Dieser Anstieg des hydrostatischen Drucks ist als geringfügig einzuschätzen, und

[4] Auf Grund des angenommenen hydraulischen Gradienten und der Modellparameter der Gesteine ist der errechnete hydrostatische Gleichgewichtsdruck im Modell für eine feste Teufe leicht unterschiedlich. Der angegebene Wert gilt somit nur jeweils an dieser Stelle A oder B des Modells.

es besteht eine Differenz zur angenommenen minimalen Hauptspannung in der entsprechenden Teufe von etwa 2,2 MPa.

Tab. 2.10 Werte für den hydrostatischen Druck im Modell als Ergebnis der Modellierung für den Referenzfall und die angenommene minimale Hauptspannung

Alle Werte sind in MPa angegeben

	Grubengebäude (Stelle A)	Oberkante Kimmeridge (Stelle B)
Hydrostatischer Fluiddruck im Gleichgewicht im Modell	9,342	5,547
Maximaler Fluiddruck im Modell (Referenzfall)	9,344	5,560
Druckerhöhung des Fluiddrucks im Maximum (Referenzfall)	0,002	0,013
Angenommene minimale Hauptspannung	12,69	7,72

Der Fluiddruck ist folglich an beiden Stellen A und B nur geringfügig höher als der hydrostatische Gleichgewichtsdruck und deutlich geringer als die minimale Hauptspannung in der jeweiligen Teufe, sodass von einer Bildung von Gasfracs nicht auszugehen ist. Dies gilt auch für alle anderen Orte im betrachteten Modell. Bei den gewählten Modellrandbedingungen ist daher die Bildung von neuen Wegsamkeiten für den Transport der Gasphase auszuschließen. Da der modellierte hydrostatische Druck mit Berücksichtigung der Gasproduktion den hydrostatischen Gleichgewichtsdruck im Modell nicht wesentlich überschreitet, ist auch keine relevante mechanisch-hydraulische Wechselwirkung zu erwarten, so dass die Ergebnisse des rein hydraulischen Modells mit dem Code TOUGH2 als aussagekräftig für die betrachtete Fragestellung angesehen werden können.

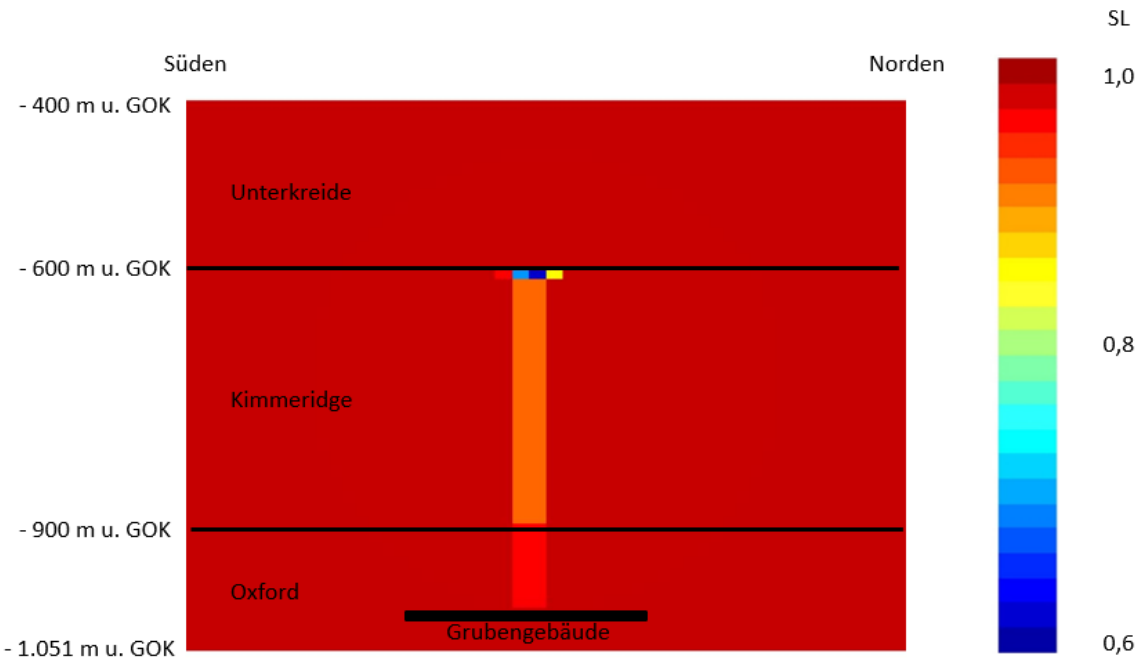

Abb. 2.7 Gasverteilung (Sättigung SL) des Referenzfalls nach 9.000 Jahren (5-fach überhöht). Zu diesem Zeitpunkt erreicht die Gasphase die Unterkante der Unterkreide

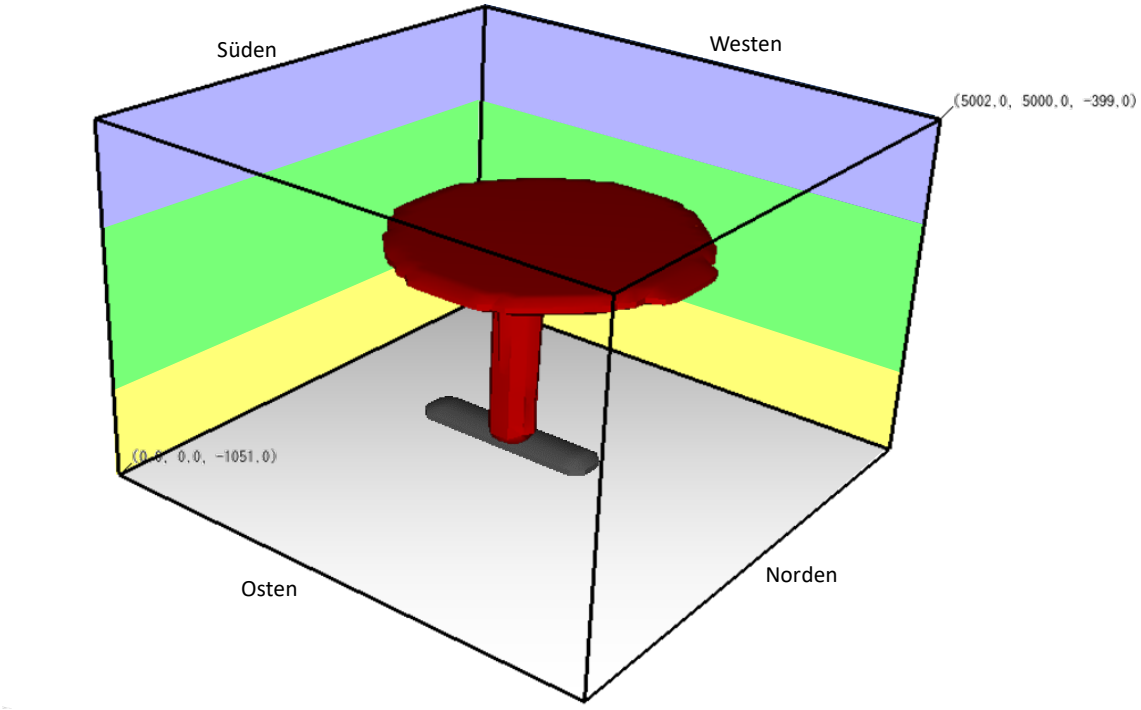

Abb. 2.8 Gasverteilung (Bereich mit Sättigung SL < 1) im Referenzfall in der 3D-Ansicht (rot) zum Zeitpunkt des Endes der Gasproduktion

Das Grubengebäude (in dunkelgrau) und die geologischen Schichten (Farben vgl. Abb. 2.3) sind zur Orientierung mit eingezeichnet

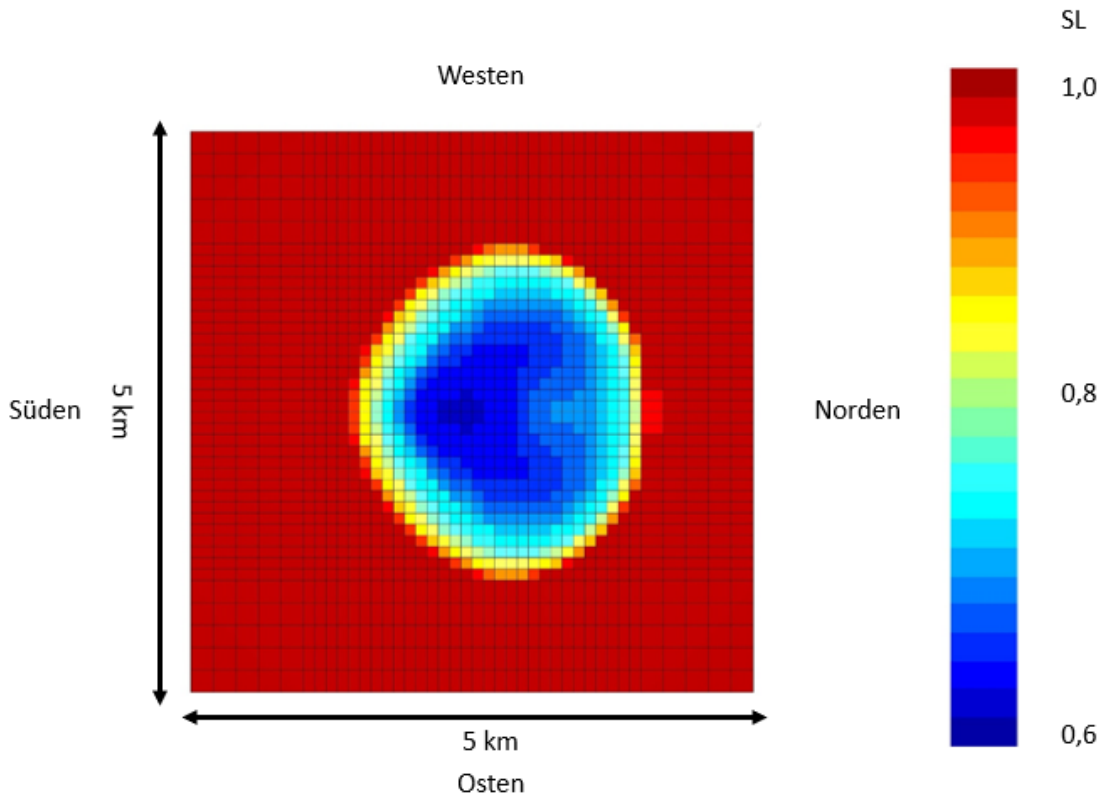

Abb. 2.9 Gasverteilung (Sättigung SL) des Referenzfalls in 605 m Teufe (oberste Modellschicht des Kimmeridge) nach 500.000 Jahren. Zu diesem Zeitpunkt ist die maximale radiale Ausbreitung der Gasphase mit 2,8 km erreicht

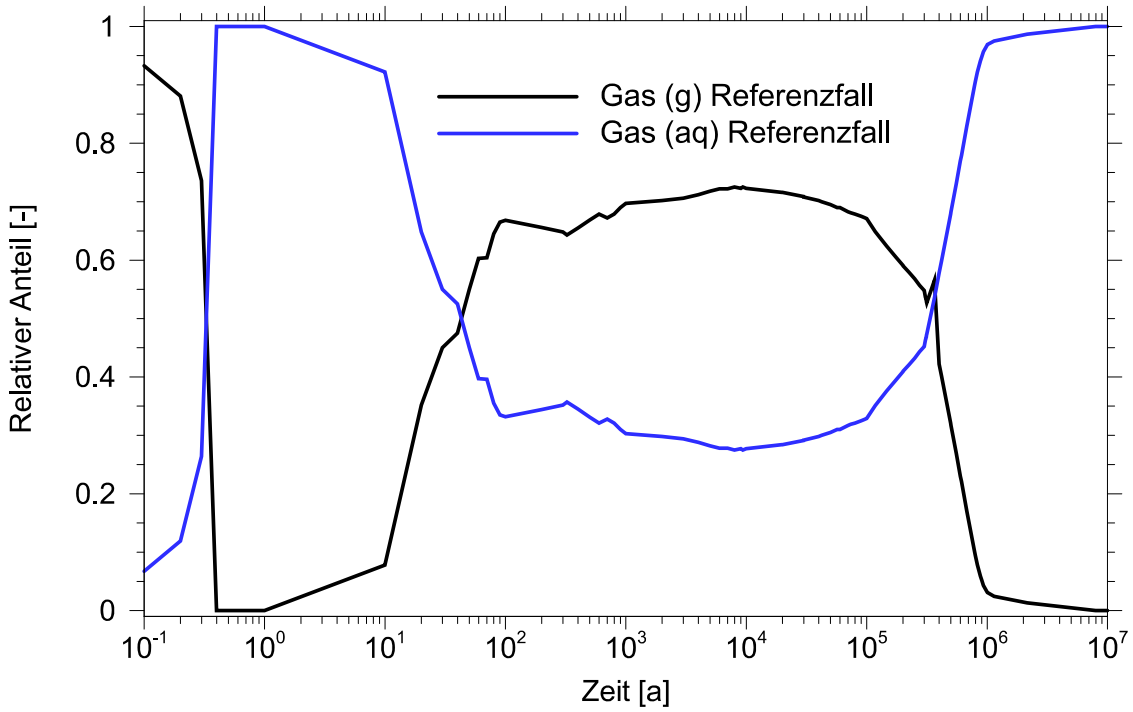

Abb. 2.10 Relative Anteile der Gasphase im gasförmigen Zustand (g) und in Lösung (aq) für den Referenzfall

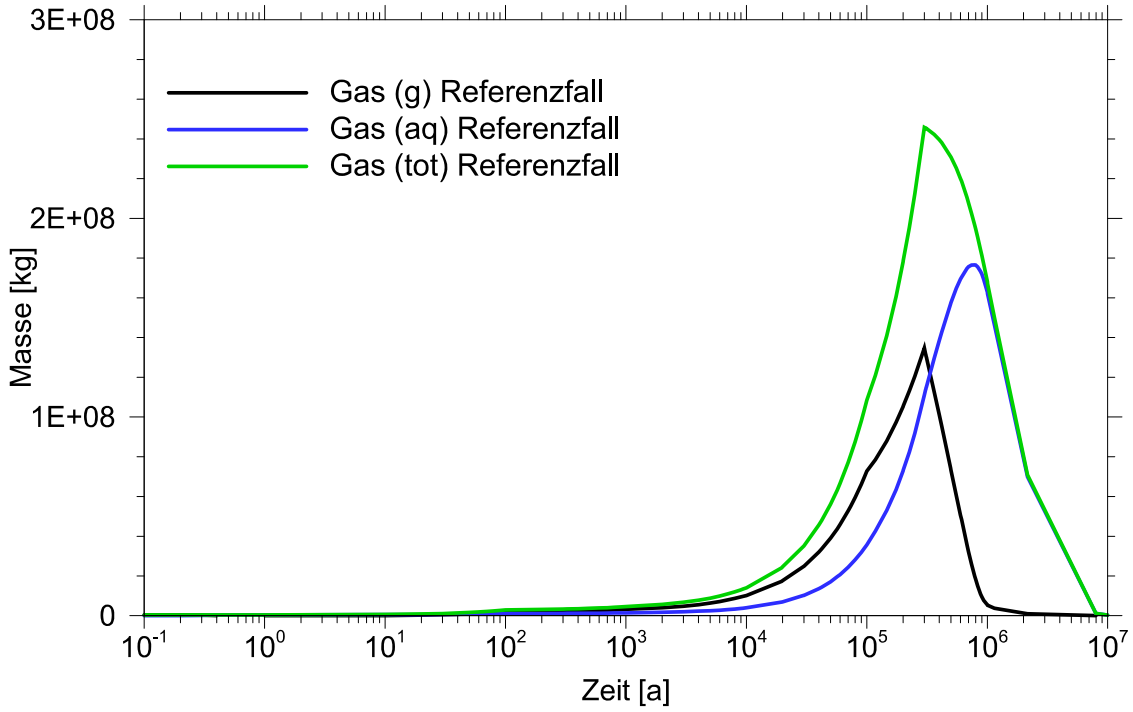

Abb. 2.11 Massen der Gasphase im gesamten System (Gas(tot)), in Lösung (Gas(aq)) und im gasförmigen Zustand (Gas(g)) für den Referenzfall

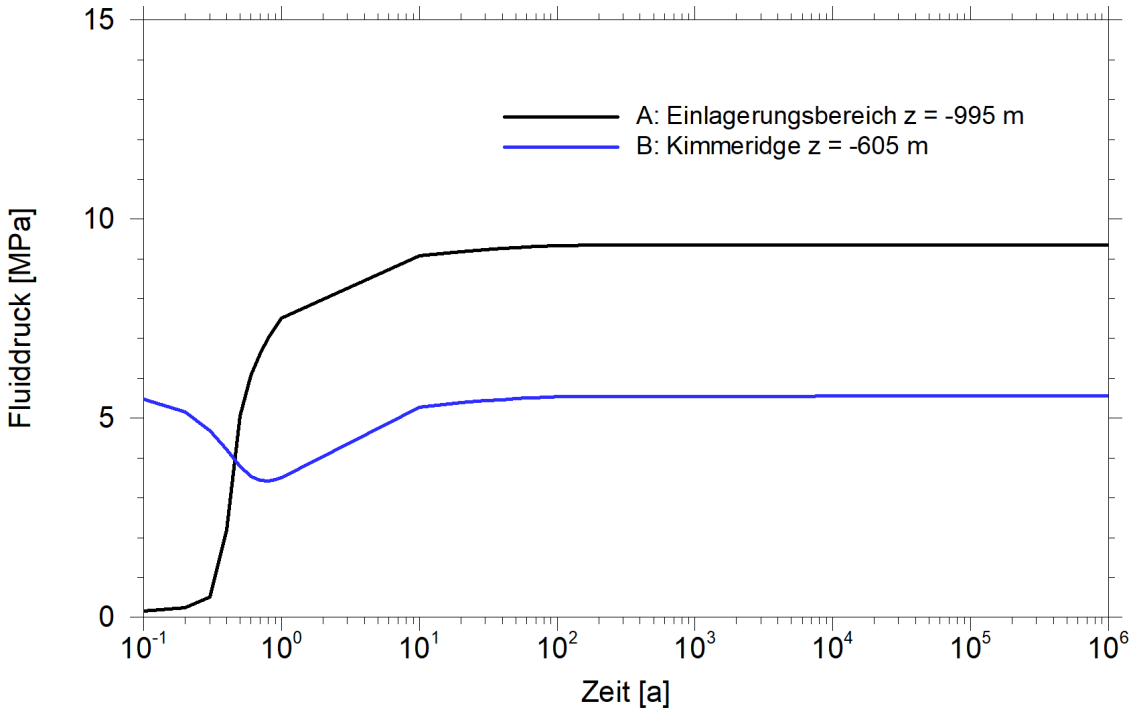

Abb. 2.12 Entwicklung des Fluiddrucks im Modell für den Referenzfall für die in Abb. 2.4 markierten Orte A und B

2.4.3 Ergebnisse von Variationsrechnungen

Zur Betrachtung der Auswirkungen der Ungewissheiten auf das Systemverhalten der Gasausbreitung wurden Variationsrechnungen durchgeführt, die im Folgenden diskutiert werden. In den Variationsrechnungen wurden folgende Parameter gegenüber dem Referenzfall variiert:

1. Gasproduktion
2. Permeabilität des Oxford und Kimmeridge
3. Porosität des Oxford und Kimmeridge
4. Formfaktor des Oxford und Kimmeridge
5. Gaseindringdruck der Unterkreide

Die Auswahl der variierten Parameter erfolgte sukzessive auf Grundlage der gesammelten Erfahrungen bei den Modellrechnungen[5]. Die Variationen 2 bis 5 werden gemeinsam im Abschnitt 2.4.3.2 diskutiert.

2.4.3.1 Variation der Gasproduktion

Im Folgenden werden die Ergebnisse für den Fall der Variante der Gasproduktion (Kapitel 2.3.4) erläutert. Aufgrund der anfänglich höheren Gasproduktionsrate erreicht im Fall der Variante die Gasphase die oberste Schicht des Kimmeridge bereits nach 400 Jahren. Da mehr Gas generiert wird als horizontal in der obersten Schicht des Kimmeridge abtransportiert werden kann, entsättigen außerdem darunter liegende Modellschichten (vgl. Abb. 2.13). Nach Ende der Gasproduktion steigt die Gasphase weiter auf, breitet sich nach Norden und Süden aus und es beginnt die Auflösung der Gasphase. Nach 90.000 Jahren hat sich die Gasphase 3,2 km radial ausgebreitet, dies entspricht der maximalen Ausbreitung (Abb. 2.14). Nach Ende des Aufstiegs wird die Gasphase entsprechend dem hydraulischen Gradienten nach Norden transportiert. Nach 1 Mio. Jahre hat die Gasphase einen Durchmesser von 400 m und die Volumenelemente sind maximal bis zu einem Sättigungswert von 0,95 entsättigt. Nach 1,8 Mio. Jahren hat sich das Gas entlang der obersten Schicht des Kimmeridge vollständig aufgelöst und es befinden sich noch residuale Sättigungsmengen in den Elementen zwischen dem Grubengebäude und dem Kimmeridge, wo sich das Gas nach 5,3 Mio. Jahre ebenfalls aufgelöst hat (Abb. 2.15), und ein Radionuklidtransport ist nur noch in Lösung möglich. Auch im Fall der Variante können radioaktive Gase zwar aus dem Grubengebäude freigesetzt werden und in die Geosphäre gelangen, diese werden aber nicht in die Biosphäre freigesetzt, da die Gasphase nicht durch die Unterkreide gelangt, sondern diese, aufgrund ihres hohen Gaseindringdrucks, als Barriere wirkt, sodass die Gasphase sich lateral unterhalb dieser Sperrschicht ausbreitet. Es konnte daher gezeigt werden, dass eine Strahlenexposition durch im Endlager gebildete gasförmige Radionuklide nicht zu erwarten ist.

[5] Weitere Parametervariationen wurden zu Beginn der Arbeiten an dem 2D-Modell durchgeführt und nicht mit dem 3D-Modell wiederholt, da diese sich bereits zu diesem Zeitpunkt als nicht relevant für die Fragestellung erwiesen haben. Aus diesem Grund werden diese Parametervariationen im Weiteren nicht diskutiert. Dies betrifft Variationen der initialen Sättigung im Grubengebäude und der residualen Sättigung des Kimmeridge.

Im Fall der Variante der Gasproduktion steigt der Fluiddruck im Einlagerungsbereich an und entspricht dem hydrostatischen Gleichgewichtsdruck nach 70 Jahren. Der Fluiddruck im Einlagerungsbereich (Stelle A) übersteigt in seinem Maximum den hydrostatischen Gleichgewichtsdruck lediglich um 0,04 MPa (vgl. Tab. 2.11). An der Stelle B im Kimmeridge übersteigt der Fluiddruck den hydrostatischen Gleichgewichtsdruck um 0,38 MPa (Abb. 2.16). Zum Zeitpunkt des maximalen Druckanstiegs besteht zwischen dem lokalen Fluiddruck und der minimalen Hauptspannung and der Stelle A im Einlagerungsbereich eine Differenz von 3,3 MPa und an der Stelle B im Kimmeridge von 1,8 MPa. Damit ist auch für die Variante der Gasproduktion nicht von der Bildung von Gasfracs auszugehen.

Tab. 2.11 Werte für den hydrostatischen Druck im Modell als Ergebnis der Modellierung für die Variante und die angenommene minimale Hauptspannung

Alle Werte sind in MPa angegeben

	Grubengebäude (Stelle A)	Oberkante Kimmeridge (Stelle B)
Hydrostatischer Fluiddruck im Gleichgewicht im Modell	9,342	5,547
Maximaler Fluiddruck im Modell (Variante)	9,382	5,928
Druckerhöhung des Fluiddrucks im Maximum (Variante)	0,039	0,381
Angenommene minimale Hauptspannung	12,69	7,72

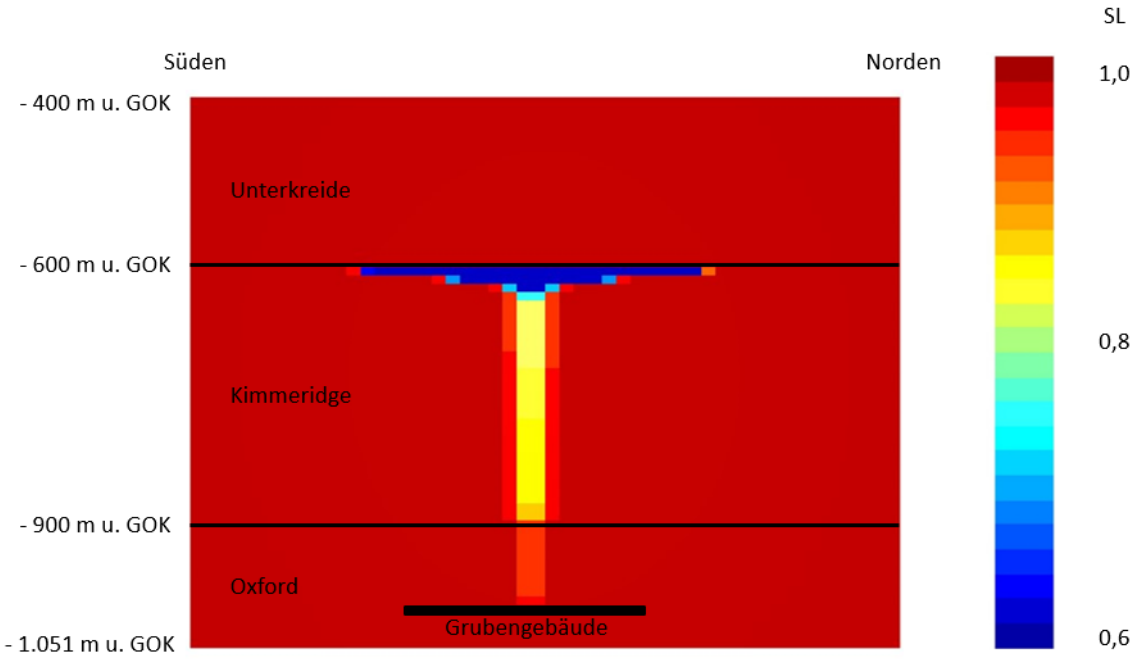

Abb. 2.13 Gasverteilung der Variante nach 3.000 Jahren (5-fach überhöht)

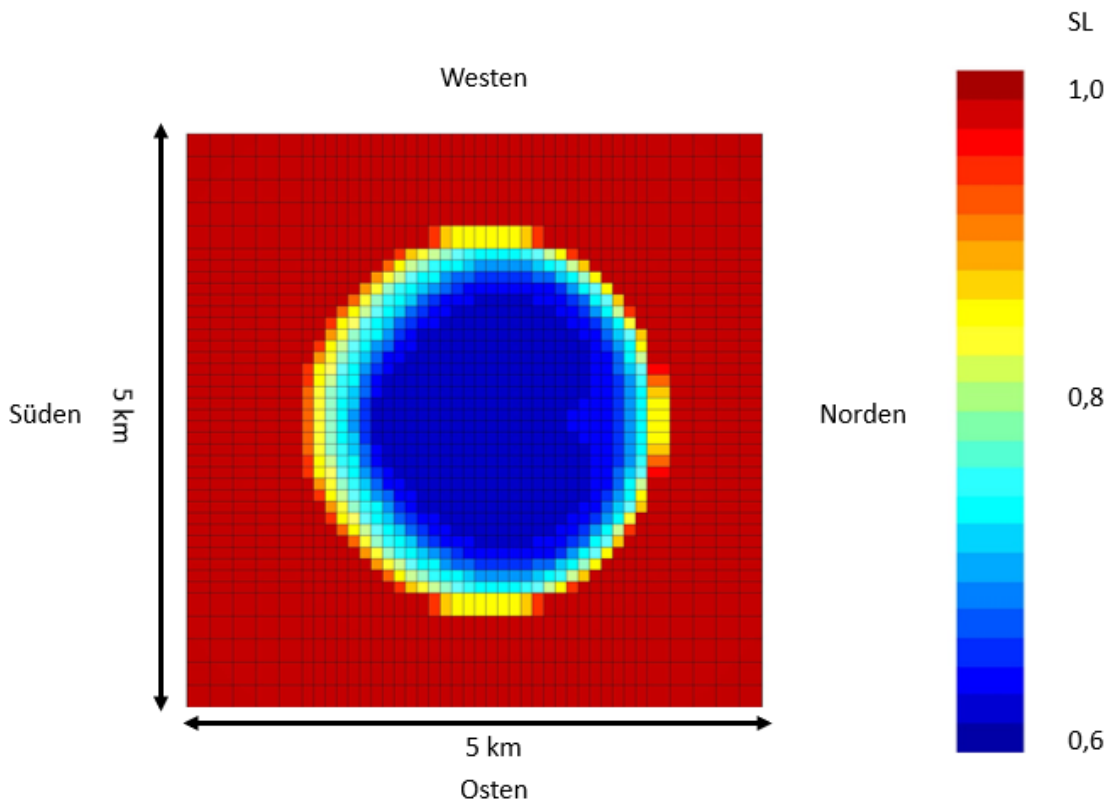

Abb. 2.14 Gasverteilung (Sättigung SL) im Fall der Variante der Gasproduktion in 605 m Teufe (oberste Modellschicht des Kimmeridge) nach 90.000 Jahren. Zu diesem Zeitpunkt ist die maximale radiale Ausbreitung der Gasphase mit 3,2 km erreicht

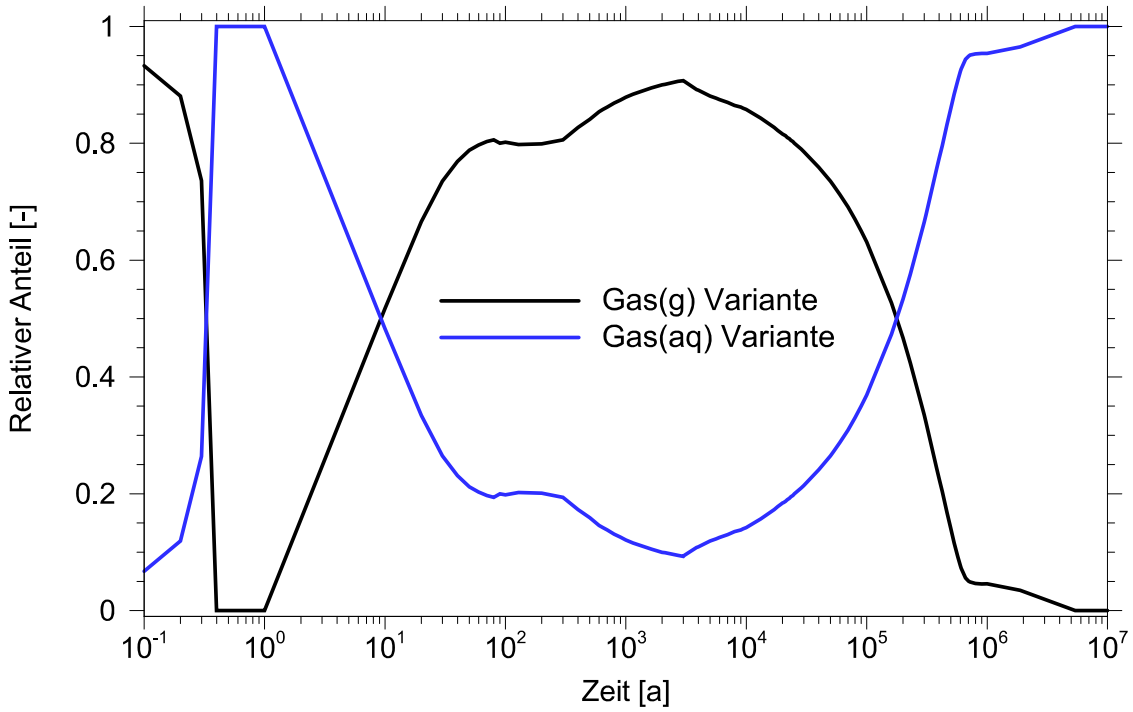

Abb. 2.15 Relative Anteile der Gasphase im gasförmigen Zustand (g) und in Lösung (aq) für die Variante der Gasproduktion

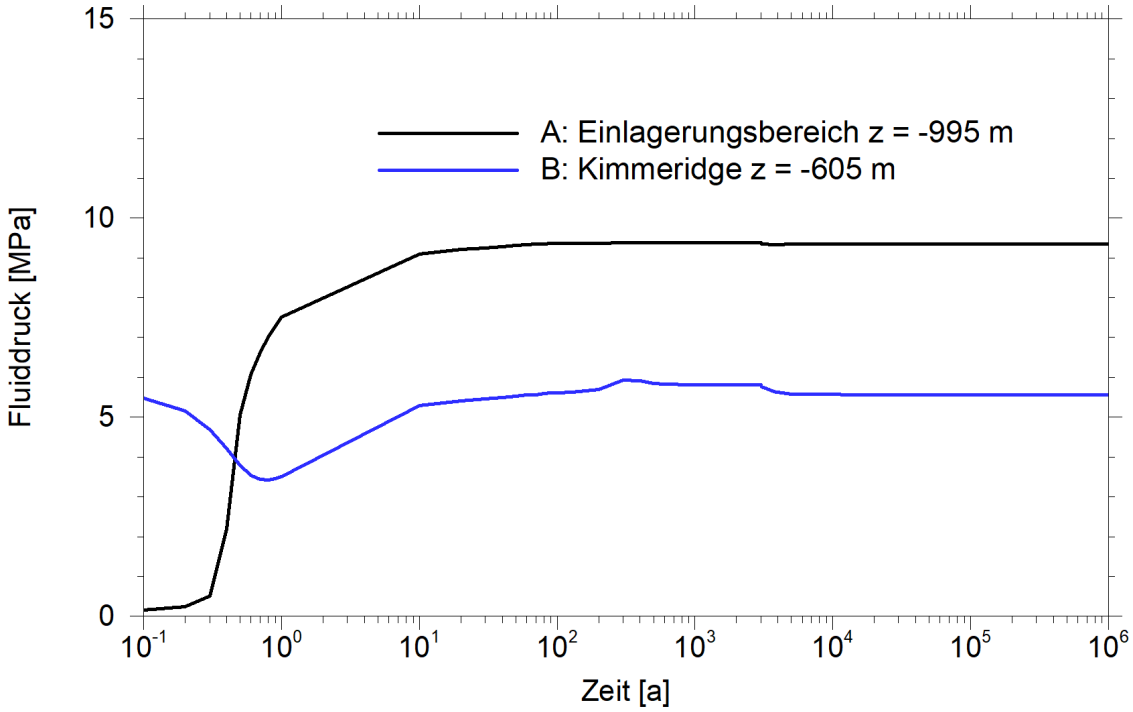

Abb. 2.16 Entwicklung des Fluiddrucks im Modell für die Variante der Gasproduktion für die in Abb. 2.4 markierten Orte im Grubengebäude A und B

2.4.3.2 Variation der Gastransportparameter

Die Eingangsparameter sind mit Ungewissheiten behaftet. Um die Auswirkungen dieser Ungewissheiten zu untersuchen, wurden bestimmte Parameter variiert. In Tab. 2.12 sind die durchgeführten Rechenfälle dargestellt und die Parameter aufgelistet, welche im Vergleich zum Referenzfall (vgl. Tab. 2.9) variiert wurden. Aus diesen Variationen resultiert eine veränderte horizontale Eindringtiefe in die oberste Modellschicht des Kimmeridge.

Tab. 2.12 Vergleich der maximalen Gasausbreitung bei Variation der Eingangsparameter

n = Porosität, κ = Permeabilität, λ = Formfaktor, P_0 = Gaseindringdruck

Abweichend vom Referenzfall	Maximaler Durchmesser [km]
Keine	2,8
κ (Kimmeridge) = $6 \cdot 10^{-15}$ m² κ (Oxford) = $6 \cdot 10^{-15}$ m² κ (Unterkreide) = $6 \cdot 10^{-17}$ m² n (Kimmeridge) = 0,25 n (Oxford) = 0,25 n (Unterkreide) = 0,30	2,0
$\kappa_{horizontal}$ (Kimmeridge) = 10^{-15} m² $\kappa_{vertikal}$ (Kimmeridge) = 10^{-16} m²	2,8
λ (Oxford) = 0,5 λ (Kimmeridge) = 0,5	3,0
P_0 (Unterkreide) = $1{,}8 \cdot 10^6$ Pa	2,8

Bei Variation der Permeabilität und der Porosität der geologischen Einheiten Kimmeridge, Oxford und Unterkreide führt dies zu einer Verringerung des maximalen Durchmessers der Gasphase auf 2 km. Die Gasphase erreicht die gleiche Distanz in Richtung Norden wie im Referenzfall, breitet sich jedoch wesentlich weniger in Richtung Süden aus. Im Gegensatz zum Referenzfall breitet sich die Gasphase nicht ausschließlich in der obersten Schicht des Kimmeridge aus, sondern auch in den darunter liegenden Schichten des Kimmeridge und Oxford, weshalb sich der maximale Durchmesser der Gasphase verringert. Die Variation der Permeabilität und Porosität führt zu einem veränderten hydraulischen Regime, sodass eine Vorrechnung zur Bestimmung der stationären Druck- und Geschwindigkeitsverteilungen nötig wäre. Diese Veränderung der Druck- und Geschwindigkeitsverteilungen wurde jedoch vernachlässigt.

Wird der Gaseindringdruck der Unterkreide um eine Größenordnung verkleinert ($1{,}8 \cdot 10^6$ Pa), wirkt diese weiterhin als Sperrschicht und die Gasphase verbleibt ebenfalls unterhalb der Unterkreide.

2.4.4 Einfluss von Altbohrungen und des Schachts auf die Gasausbreitung

Durch die in den vorangegangenen Kapiteln beschriebenen Betrachtungen konnte gezeigt werden, dass die Unterkreide eine Sperrschicht für die im Endlager gebildeten Gase darstellt. Im Folgenden wird diskutiert, ob Altbohrungen oder die Schächte des Endlagers einen relevanten präferentiellen Ausbreitungspfad der Gase durch die Unterkreide darstellen können.

Anhand der in /GER 88/ angegebenen Koordinaten, Stratigraphie und Teufen wurden sieben Altbohrungen identifiziert, die die Unterkreide durchörtern und im räumlichen Bereich der modellierten Gasausbreitung liegen. Nach Stand von W&T ist es nicht zu erwarten, dass diese Altbohrungen in dem Zeitraum, in dem sich die Gase unterhalb der Unterkreide ausbreiten, einen potenziellen vertikalen Ausbreitungspfad für relevante Gasmengen durch die Unterkreide bis in oberflächennahe Bereiche darstellen könnten. Dies ist vor allem durch die lange Dauer, bis die Gase die Unterkreide erreichen und die günstigen Eigenschaften von Tongestein zurückzuführen, die zu einer Abdichtung der Bohrungen führen:

Die alten Bohrungen wurden ursprünglich abschnittsweise verfüllt. Über eine Verfüllung aus Zement wurde eine Spülung aus Dickstoff eingebracht. Der Dickstoff setzt sich mit der Zeit über dem Zement ab und führt zu einer Sedimentschicht, die etwa 50 % der ursprünglich eingebrachten Höhe des Dickstoffs füllt /LEI 91/. Es ist aber anzunehmen, dass sich die Sedimentschicht mit der Zeit weiter kompaktiert. Der obere Teil des Abschnitts verbleibt dabei zunächst lösungsgefüllt, aber offen. In mehreren in-situ Versuchen mit offenen Bohrlöchern wurde gezeigt, dass der mit Lösung, aber nicht mit Feststoff gefüllte Teil des Bohrlochs im Tongestein zu einem starken Ausbruchverhalten führt und sich das ausgebrochene Tongestein im unteren Teil des Bohrlochs absetzt und dort zu einer weiteren Verfüllung des Bohrlochs führt /WIT 91/. Das Ausbruchsmaterial führt in Laborexperimenten nach einer Sedimentationsdauer von 170 Tagen zu einem Material mit einer Durchlässigkeit von $1{,}2 \cdot 10^{-9}$ m/s und $3{,}1 \cdot 10^{-9}$ m/s.

Es ist somit zu erwarten, dass die Verfüllung im Bohrloch bereits kurz nach dessen Verschluss aus einer sich abschnittsweise wiederholenden Schichtung von Zement, Sediment aus Dickstoff und Sediment aus arteigenen Tongestein besteht. Eventuell bleiben zu Beginn noch Bereiche, die nur mit Lösung, nicht aber mit Feststoff gefüllt sind.

Das Tongestein der Unterkreide (und auch jenes der Oberkreide) ist ein plastisches und quellfähiges Material. Die plastischen Eigenschaften von Tongestein führen zu einer Konvergenz von Hohlräumen z. B. /ARM 13/, die zusammen mit der Quellfähigkeit über längere Zeiträume hin zu einem Verschwinden der Hohlräume führen wird /BOC 10/. Sowohl in-situ Versuche als auch Laborexperimente an kleinen bis sehr großen und stark gestörten Tongesteinskörpern zeigen, dass sich die verbleibenden Störungen im Gestein wieder vollständig schließen und die Permeabilität ähnliche Werte wie das ungestörte Gestein annimmt, sobald wieder die volle Gebirgsspannung wirkt /ZHA 08/, /ZHA 17/.

Insgesamt ist davon auszugehen, dass sich die Bereiche in den Bohrlöchern, die anfänglich mit gesteinseigenem Sediment verfüllt oder offen sind, in den mehrere hundert bis mehrere tausend Jahre dauernden Zeitraum, bis die aufsteigenden Gase die Unterkreide erreichen, vollständig verschließen und danach Parameterwerte für den Gastransport aufweisen, die ein Eindringen von Gasen verhindern (vgl. folgende Berechnungen für den Schacht). Die alten Bohrlöcher stellen dann keine Wegsamkeit für die Gase mehr dar.

Der Einfluss des Schachts als Wegsamkeit durch die Unterkreide wurde anhand von Modellrechnungen mit einem kleineren 3D-Modell untersucht, in welchem der Schacht mit einem Querschnitt von zehn mal zehn Metern durch eigene Gitterzellen aufgelöst wird (vgl. Abb. 2.17). Für den Schacht wurden im Modell mit zwei Ausnahmen die Material- und Zweiphasenparameter der Unterkreide angenommen: für die Permeabilität und den Gaseindringdruck der Schachtverfüllung bzw. des Schachtverschlusses wurden um bis zu zwei Größenordnungen erhöhte Parameterwerte gegenüber der Unterkreide angenommen. Auch bei diesen Parameterwerten für Gaseindringdruck und Permeabilität kann das Gas in den Modellrechnungen nicht im Schacht durch die Unterkreide aufsteigen.

Nach Abschluss des Endlagerbetriebes sollen die Schächte zur Wiederherstellung der Barrierewirkung der Deckschichten des Endlagers qualifiziert verfüllt und abgedichtet werden. Dazu regelt die Nebenbestimmung A.7-1 des PFB:

Die Ausführungsplanung als Bestandteil des bergrechtlichen Betriebsplanverfahrens für die Verfüllung der Schächte ist rechtzeitig vor dem Abschluss des Endlagerbetriebes und vor Beginn der Arbeiten der zuständigen Bergbehörde zur Prüfung und Zulassung vorzulegen. Hierbei sind die der Langzeitsicherheitsanalyse zugrunde liegenden Kenndaten, das Qualitätssicherungsprogramm, die Belange der Arbeitssicherheit sowie die nach dem Stand von Wissenschaft und Technik anzuwendenden Regelwerke zu berücksichtigen.

Bezüglich der Kenndaten des Verschlussmaterials im Bereich von Unter-/Oberkreide ist bei der Planung ein Material mit einem Gaseindringdruck und einer Permeabilität vorzusehen, dessen Parameterwerte wie im Modell angenommen maximal zwei Größenordnungen unter jenen der Unterkreide liegen (Gaseindringdruck: $1{,}8 \cdot 10^{5}$ – $1{,}8 \cdot 10^{7}$ Pa, Permeabilität: $6 \cdot 10^{-16}$ – $6 \cdot 10^{-18}$ m²), damit der Schacht keine Wegsamkeit für das Gas darstellt.

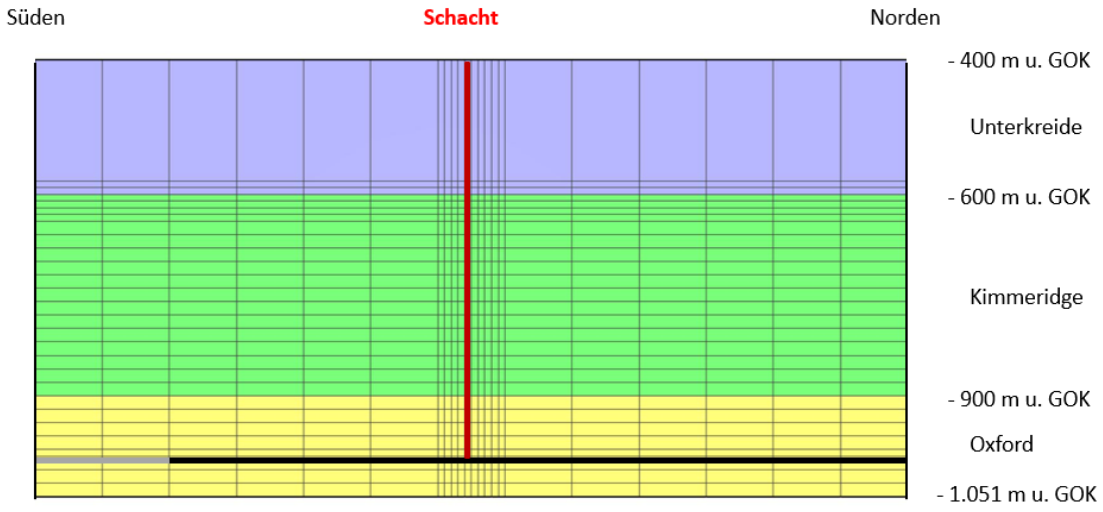

Abb. 2.17 Schnitt durch das 3D-Modell, das zur Untersuchung des Schachts als Wegsamkeit für Gase verwendet wurde

Der Ausschnitt hat eine Süd-Nord Ausdehnung von 1,5 km (entspricht der Länge des Grubengebäudes) und eine vertikale Ausdehnung von 650 m. In schwarz sind die Volumenelemente des Grubengebäudes markiert, wobei die grauen Volumenelemente die gasgenerierenden sind. In rot sind die Volumenelemente des Schachts gekennzeichnet.

2.5 Resümee

Als Grundlage für die Bearbeitung des Aspekts der Bewertung des Radionuklidtransports in der Gasphase wurde die erwartete Entwicklung des Endlagersystems bezüglich der Gasbildung und des Radionuklidtransports in der Gasphase nach aktuellem Stand von W&T beschrieben. Es wurden die im Endlager Konrad in der Nachbetriebsphase gebildeten Gasmengen und Gasbildungsraten abgeschätzt und dargelegt, dass zu erwarten ist, dass in der Nachbetriebsphase Gas aus dem Grubengebäude in die Geosphäre entweicht. Die durchgeführten Rechnungen zur Untersuchung der Gasausbreitung zeigen, dass im Referenzfall und bei allen Parametervariationen die Gasphase nicht in die Modelleinheit Unterkreide eindringen kann. Der hohe Gaseindringdruck der Unterkreide bewirkt, dass die Gasphase und somit auch gasförmige Radionuklide unterhalb dieser verbleiben. Es ist eine radiale Ausbreitung der Gasphase bis zu maximal drei Kilometer zu erwarten. Bei den gewählten Modellbedingungen ist die Bildung von Gasfracs und damit neuen Wegsamkeiten für den Transport der Gasphase in der Unterkreide durch den Gasdruck ausgeschlossen. Radioaktive Gase können nicht bis in die Biosphäre transportiert werden, und eine Strahlenexposition in der Biosphäre ist somit nicht zu betrachten. Prozesse zum Radionuklidtransport in der Gasphase sind somit nicht sicherheitsrelevant und sind nicht zu betrachten. Dies gilt ebenfalls für die von den Reviewern in Phase 1 der ÜsiKo diskutierten methylierten Radionuklide. Die Radionuklide in der Gasphase werden, wie die modellierten nicht-aktiven Gase, vollständig in der flüssigen Phase aufgelöst und mit dem Grundwasser transportiert. Der in der Langzeitsicherheitsanalyse /STO 86/ betrachtete Radionuklidtransport mit dem Grundwasser in der flüssigen Phase ergibt eine Transportdauer für das Grundwasser vom Grubengebäude bis in das oberflächennahe Grundwasser und darin befindlicher nicht-sorbierender Radionuklide von etwa 300.000 Jahren. Dies ist wesentlich schneller als der nach den hier durchgeführten Modellrechnungen mögliche alternative Transport von Radionukliden, die ursprünglich in der Gasphase vorliegen und nachfolgende aufgelöst in der flüssigen Phase weiter transportiert werden. Der in der Langzeitsicherheitsanalyse betrachtete Transport von Radionukliden in der flüssigen Phase ist somit abdeckend im Hinblick auf die Bewertung der Langzeitsicherheit.

Mit den durchgeführten Betrachtungen ist der Aspekt der Bewertung des Radionuklidtransports in der Gasphase und die vier zugeordneten Deltas $\Delta 24$ bis $\Delta 27$ aus der Phase 1 der ÜsiKo vollständig bearbeitet. Ein weiterer Überprüfungs- und Anpassungsbedarf ergibt sich nicht.

2.6 Literatur

/ALF 20/ Alfarra, A.; Bertrams, N.; Bollingerfehr, W.; Eickemeier, R.; Flügge, J.; Frenzel, B.; Maßmann, J.; Mayer, K.-M.; Mönig, J.; Mrugalla, S.; Müller-Hoeppe, N.; Reinhold, K.; Rübel, A.; Schubarth-Engelschall, N.; Simo, E.; Thiedau, J.; Thiemeyer, T.; Weber, J.R.; Wolf, J.: RESUS: Grundlagen zur Bewertung eines Endlagersystems in einer Tongesteinsformation größerer Mächtigkeit. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Köln, GRS-571, 2020.

/ARM 13/ Armanda, G.; Noireta, A.; Zghondia, J.; Seyediba, D, M.: Short- and long-term behaviors of drifts in the Callovo-Oxfordian claystone at the Meuse/Haute-Marne Underground Research Laboratory. Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering, Vol. 5, 221–230, 2013.

/BEC 09/ Becker, D.-A.; Buhmann, D.; Mönig, J.; Noseck, U.; Rübel, A.; Spießl, S.: Endlager Morsleben, Sicherheitsanalyse für das verfüllte und verschlossene Endlager mit dem Programmpaket EMOS. Planfeststellungsverfahren zur Stilllegung des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben. Verfahrensunterlage P 278, Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 2009. VDIS-KZL: 9M/23210051/EG/RB/0056/00

/BFS 14/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Anforderungen an endzulagernde radioaktive Abfälle (Endlagerungsbedingungen, Stand: Dezember 2014) - Endlager Konrad. SE-IB-29/08-REV-2, 124 S., 18. Dezember 2014.
In Verbindung mit:
Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Ergänzungen zu den Endlagerungsbedingungen Konrad, Stand Dezember 2014, SE-IB-29/08-REV-2, Austauschseiten 47, 48, 67 und 69 zu den ELB. Dezember 2014. VDIS-KZL: 9KE/2211/D/ED/0001/03

/BGE 21/ Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) mbH: Auflistung der sicherheitsrelevanten Deltas und der Hinweise aus Phase 1 der ÜsiKo. INFO KONRAD, Salzgitter, Juli 2021.
https://www.bge.de/fileadmin/user_upload/Konrad/Wesentliche_Unterlagen/UEsiKo/Deltas_und_Hinweise_UesiKo_Phase_1.pdf (27.01.2022)

/BOC 10/ Bock, H.; Dehandschutter, B.; Martin, C. D.; Mazurek, M.; de Haller, A.; Skoczylas, F.; Davy, C.: Self-sealing of Fractures in Argillaceous Formations in the Context of Geological Disposal of Radioactive Waste - Review and Synthesis. Nuclear Energy Agency (NEA), OECD Publishing, Paris, 2010.

/CAP 15/ Capouet, M., Noseck, U., Navarro, M., Rübel, A.; Van Luik, A.; Sillen, X.: Relevance of Gases in the Post-Closure Safety Case for Radioactive Waste Management – A Position Paper from the Integration Group for the Safety Case (IGSC). OECD-NEA, NEA/RWM/IGSC(2015)1/REV1, Paris, 2015.

/COL 89/ Pahwa, S. B., Resele, G., Statham, W. G. Schachtanlage Konrad, Salzgitter: Modellrechnungen zur Gasausbreitung im Gebirge, Auftrags-Nr.: 9 K 35212 6. 44, EU 321, Colenco AG, Baden, Schweiz, 1989. VDIS-KZL: 9K/352126.44/EG/ED/0006/00

/DIO 14/ Diomidis, N.: Scientific basis for the production of gas due to corrosion in a deep geological repository. Arbeitsbericht NAB 14-21, Nagra, Wettingen, 2014.

/ENS 11/ Enssle, C. P., Cruchaudet, M., Croisé, J., Brommundt, J. Determination of the permeability of the Callovo Oxfordian clay at the metre to decametre scale, Physics and Chemistry of the Earth 36, 1669-1678, 2011.

/GER 88/ Gerardi, J.: Revision von Tiefbohrungen, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), EU 232, 1988, mit
Gerardi, J.: Revision von Tiefbohrungen – Ergänzungen und Korrekturen, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR), EU 232, 1989. VDIS-KZL: 9K/-/GE/RB/0002/00

/JAV 92/ Javeri, V. Orientierende Analysen zur Gasausbreitung im Gebirge des Endlagers Konrad mit dem Rechenprogramm TOUGH 2. GRS-A-1925, Auftrags-Nr.: 65 300, GRS mbH, Köln, 1992.

/KIM 87/ Kim, J.I., Dienstbach, F. Hämmerle, M.: Eh-/pH-Messungen und Sorptionsuntersuchungen von Np, Pu und Tc an zementhaltigen geologischen Proben im Grubengebäude Konrad. EU 137.1, TU München, RCM 00387, 1987. VDIS-KZL: 9K/352138/MR/RB/0005/00

/KLE 16/ Klee, G.: Hydrofrac und Dilatometer Messungen im Bereich der Versatzaufbereitungsanlage Mess- und Dokumentationsbericht. Deutsche Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe mbH (DBE), Peine, 2016. VDIS-KZL: 9K/26420/GC/BZ/0009/00

/KUG 03/ Kugel, K., Möller, K.: Modellinventar radioaktiver / nicht radioaktiver Abfallinhaltsstoffe in einem zukünftigen Endlager. Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), Salzgitter, 2003. VDIS-KZL: 9X/135400/MC/RE/0004/00

/LEI 91/ Leichtweiß-Institut: Schachtanlage Konrad - Sedimentationsverhalten und Durchlässigkeit von Bohrspülungen. EU 449, Leichtweiß-Institut, Braunschweig, 1991. VDIS-KZL: 9K/35215.42/GH/RB/0018/00

/LEU 16/ Leupin, O.X.; Zeyer, J.; Cloet, V.; Smith, P.; Bernier-Latmani, R.; Marschall, P.; Papafotiou, A.; Schwyn, B.; Stroes-Gascoyne, S.: An assessment of the possible fate of gas generated in a repository for low- and intermediate-level waste. NTB 16-05, Nagra, Wettingen, 2016.

/LEV 21/ Levasseur, S.; Collin, F.; Daniels, K.; Dymitrowska, M.; Harrington, J.; Jacops, E.; Kolditz, O.; Marschall, P.; Norris, S.; Sillen, X.; Talandier, J.; Truche, L. and Wendling, J.: Initial State of the Art on Gas Transport in Clayey Materials. Deliverable D6.1 of the HORIZON 2020 project EURAD, Work Package Gas, 2021.

/LLO 21/ Lloyd, J. R., Cherkouk, A. (Editoren): The Microbiology of Nuclear Waste Disposal. Elsevier, Amsterdam, 2021.

/MAC 89/ MacDonald, C. A. 1989: Gas production from the biodegradation of organic components of low-level radioactive waste. – In: Feizollahi, F., Kohout, R. & Suzuki, A. (Hrsg.). Joint international waste management conference; Kyoto (Japan); 23-28 Oct 1989, 301–310. New York:

/MUE 92/ Müller, W., Morlock, G., Gronemeyer, C.: Produktion und Verbleib von Gasen im Grubengebäude eines salinaren Endlagers, GSF-Bericht 3/92. GSF - Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Braunschweig, 1992.

/NAG 08/ Nagra: Effects of post disposal gas generation in a repository for low- and intermediate-level waste sited in the Opalinus Clay of Northern Switzerland. Nagra, NTB 08-07, Wettingen, 2008.

/PAH 89/ Pahwa, S. B.; Resele, G.; Statham, W. H.: Schachtanlage Konrad, Salzgitter - Modellrechnungen zur Gasausbreitung im Gebirge. BfS, Erläuternde Unterlage EU 321, Colenco AG, Baden, 1989. VDIS-KZL: 9K/352126.44/EG/ED/0006/00

/POP 02/ Poppei, J., Suter, D., Niemeyer, M., Willhelm, S.: Modellierung der Gasentwicklung im Endlager für Radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM). Planfeststellungsverfahren zur Stilllegung des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben P151. Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 2002. VDIS-KZL: 9M/23220021/EG/RB/0030/00

/PRU 96/ Pruess, K., A. Simmons, Y.S. Wu and G. Moridis. TOUGH2 Software Qualification. Lawrence Berkeley National Laboratory Report LBL-38383, Berkeley, 1996.

/PRU 12/ Pruess, K., Oldenburg, C., Moridis, G. TOUGH2 User's Guide, Version 2. LBNL-43134, Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkley, 2012.

/ROD 03/ Rodwell, W.R., Norris, S., Mäntynen, M. and Vieno, T.: A thematic network on gas issues in safety assessment of deep repositories for radioactive waste (GASNET). European Commission Report EUR 20620 EN, 2003.

/ROE 19/ Röhlig, K., Küppers, C., Schäfer, T., Walther, C.: Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo) Review der Phase 1 „Ermittlung des Überprüfungsbedarfs“; VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0011/00, 2019

/RUE 04/ Rübel, A.; Noseck, U; Müller-Lyda, I.; Kröhn, K.-P.; Storck, R.: Konzeptioneller Umgang mit Gasen im Endlager. GRS-205, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Braunschweig, 2004.

/RUE 19/ Rübel, A.; Behler, M.; Feinhals, J., Mönig, J., Poppei, J., Rätz, D., Wolf, J.: Projekt Konrad - Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Überprüfung der sicherheitsrelevanten Anforderungen zur Langzeitsicherheit, Kritikalität in der Nachbetriebsphase und thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins. Abschlussbericht zur Phase 1: Ermittlung des Überprüfungsbedarfs. Braunschweig: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, AF-Consult Switzerland Ltd., DMT GmbH & Co. KG, 2019. VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0009/00

/SHA 13/ Shaw, R. P. (Ed.).: Gas Generation and Migration. International Symposium and Workshop, 5th to 7th February 2013, Luxembourg, Proceedings FORGE Report 269pp, 2013.

/SMA 21/ Small, J. S.; Vikman, M.: Microbial impacts on gas production in LLW/ILW. – In: Lloyd, J. R. & Cherkouk, A. (Hrsg.). The Microbiology of Nuclear Waste Disposal, 193–212, Elsevier, Amsterdam, 2021.

/STO 86/ Storck, R., Butow, E., Heredia, L., Hossain, S., Kühle, T., Lutkemeier-Hosseinipour, S., Nies, A., Pröhl, G., Struck, S.: Langzeitsicherheits-analyse des Endlagers Konrad: Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase. EU 076.1, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) mbH, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/324.34/EG/RB/0004/00

/SWA 15/ Swanton, S. W., Baston, G. M. N, Smart, N.R.: Rates of steel corrosion and carbon-14 release from irradiated steels – state of the art review. CAST (CArbon-14 Source Term), Document No. CAST-2015-D2.1, European Commission, 2015.

/VAN 98/ van Loon, L. R., Glaus, M. A.: Experimental and theoretical studies on alkaline degradation of cellulose and its impact on the sorption of radionuclides. NAGRA Tech. Ber., 97-04, 1998.

/WIT 91a/ Wittke, W.: Ergebnisse des Untersuchungsprogramms im Bereich der Unterkreide (343 m Sohle) (Bericht AI). EU 424, Beratende Ingenieure für Grundbau und Felsbau GmbH, Aachen, 1991. VDIS-KZL: 9K/35215/GH/RB/0015/00

/WIT 91b/ Wittke, W.: Endlager Konrad Schachtverfüllung/Alte Bohrungen Bericht Teil A II Ergebnisse des Untersuchungsprogramms im Bereich der Unterkreide (541 m-Sohle). EU 454, Beratende Ingenieure für Grundbau und Felsbau GmbH, Aachen, 1991. VDIS-KZL: 9K/35215/GH/RB/0021/00

/WU 96/ Wu, Y. S.; Ahlers, C. F., Fraser, P.; Simmons, A.; Pruess, K.: Software Qualification of Selected TOUGH2 Modules. LBNL-39490, Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkley, 1996.

/ZHA 08/ Zhang C.-L.; Czaikowski, O.; Rothfuchs, Z.; Wieczorek, K.: Thermo-Hydro-Mechanical Processes in the Nearfield around a HLW Repository in Argillaceous Formations - Volume I: Laboratory Investigations. GRS-312, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Braunschweig, 2008.

/ZHA 17/ Zhang C.-L.: Sealing Performance of Fractured Claystone and Clay-Based Materials within the Framework of the German Project THM-TON and the EC Project DOPAS – Final Report. GRS-451, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Braunschweig, 2017.

3 Aspekt 2: Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide

3.1 Beschreibung

In der Phase 1 der ÜsiKo wurde die Langzeitsicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad im Hinblick auf sicherheitsrelevante Abweichungen im Stand von W&T zur Zeit des PFB zum Jahr 2019 begutachtet /RUE 19/. In Phase 1 wurde folgender Aspekt zur Bearbeitung in der ÜsiKo Phase 2 identifiziert:

Der mögliche Einfluss von Kolloiden auf den Radionuklidtransport in Lösung ist zu bewerten.

Diesem Aspekt sind zwei identifizierte Deltas zugeordnet. Demnach sind Entwicklungen des Endlagersystems (Szenarien) zu beschreiben, die potenziell einen Einfluss auf den Transport von gelösten Radionukliden haben können (∆28) und die Relevanz der Einfluss der Kolloide auf den Transport gelöster Radionuklide ist zu bewerten (∆29). Die Nummerierung und Bezeichnung der Deltas (Δ) richtet sich nach der veröffentlichten Liste der BGE /BGE 21/.

Das Review-Team der Phase 1 der ÜsiKo merkt zum Aspekt 2 an, dass der kolloidgetragene Radionuklidtransport nur eine sehr untergeordnete Rolle spielen sollte, bestätigt aber, dass er als Gegenstand der Phase 2 der ÜsiKo zu betrachten ist /ROE 19/.

Die in /RUE 19/ festgestellten Deltas zum Aspekt der Bewertung des Einflusses von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide sind weiterhin zutreffend. Ein Fortschritt im Stand von W&T in den Jahren 2019 bis 2022 ist für die Deltas dieses Aspekts nicht festzustellen. Über die direkt im Delta benannten Punkte hinaus wurde bei der Bearbeitung der Deltas in den dabei verwendeten Unterlagen zum PFB Konrad keine sicherheitsrelevante Änderung bezüglich des Stands von W&T festgestellt, der nicht bereits in der ersten Phase der ÜsiKo benannt worden ist.

3.2 Bearbeitung

Im Folgenden wird bewertet, ob Bildung und Transport von Kolloiden am Standort Konrad in den Szenarien der Nachverschlussphase von Relevanz sind und den Radionuklidtransport beeinflussen können.

Kolloide können zur Erhöhung der Konzentration von Radionukliden in der Lösung beitragen und, sofern sie stabil sind und nicht oder nur wenig mit der Gesteinsmatrix wechselwirken, den Transport von Radionukliden forcieren. Prinzipiell können Kolloide im Endlagernahbereich über zwei Quellen präsent sein, zum einen durch Eintrag über das Formationswasser, zum anderen durch Freisetzung aus den bzw. Erosion der eingebrachten Materialien. Dies schließt die Möglichkeit der Bildung von Eigenkolloiden mit ein. Inwieweit die Kolloide mobil und stabil sind, hängt ganz wesentlich von den geochemischen Bedingungen in der Lösung ab.

Für den Transport der Kolloide sind auch die Eigenschaften der Materialien im Nahbereich und die der geologischen Formationen im Fernfeld von Bedeutung. Insbesondere sind die Wechselwirkungen der Kolloide mit der Material- bzw. Gesteinsmatrix zu betrachten, ob Kolloide beispielsweise über Filtration in engen Poren oder auch Sorption an Mineraloberflächen zurückgehalten werden.

Entsprechend wird im Kapitel 3.2.1 zuerst die Kolloidchemie und die Relevanz von Kolloiden unter den geochemischen Bedingungen am Standort Konrad diskutiert. Dies umfasst die

- chemischen Bedingungen, unter welchen Kolloide entstehen können, stabil sind und mobil werden können,
- unter welchen Bedingungen Radionuklide an Kolloiden sorbiert werden können und
- unter welchen Bedingung Kolloide migrieren können.

Diese Aspekte basieren auf Ergebnissen einer Literaturstudie. Nachfolgend folgen in Kapitel 3.2.2 Betrachtungen zum kolloidgetragenen RN-Transport.

3.2.1 Kolloidchemie und Relevanz von Kolloiden unter den geochemischen Bedingungen am Standort Konrad

In diesem Kapitel wird auf die Eigenschaften und das Verhalten von Kolloiden im Nah- und Fernfeld eines Endlagers mit zementhaltigen Abfällen eingegangen. Nach der allgemeinen Definition der IUPAC ist ein Kolloid ein Partikel, der sich in einem Medium befindet und mindestens in einer Richtung eine Größe zwischen 1 nm und 1 µm aufweist /EVE 72/. In vielen Untersuchungen werden Kolloide kleiner als 0,45 µm untersucht, was damit zusammenhängt, dass ein 0,45 µm Filter als Standardfilter bei der Bearbeitung von Proben aus dem Grund- und Porenwasser verwendet wird. Dies ist somit eine operationelle Definition für alle in der Probe gelöst vorliegende Stoffe.

Die Angabe der Größe sagt noch nichts über das Material eines Kolloids aus. Es kann aus Materialien aus dem Endlager (Abfallmaterialien, Eisen, Versatz, Zement), mineralischen Neubildungen oder Materialien aus dem Fernfeld eines Endlagers, die mit dem Grundwasserstrom transportiert werden, bestehen. Die Art der Kolloide hängt somit stark von den vorhandenen Materialien sowie den lokalen chemischen Bedingungen, unter denen sie gebildet werden können, ab.

Bei der Betrachtung des kolloidgetragenen Radionuklidtransports können zwei Arten von Kolloiden unterschieden werden:

1.) Kolloide die primär aus radionuklidhaltigen Phasen bestehen (Eigenkolloide) und
2.) Kolloide, die aus nicht radioaktiven Materialien zusammengesetzt sind, aber eine große Oberfläche zur Sorption von Radionukliden aufweisen (Pseudo- bzw. Fremdkolloide). Dies beinhaltet anorganische Kolloide, organische Kolloide (DOC) und auch mikrobiologische Kolloide (Biokolloide).

Kolloide sind zu betrachten, wenn sie im System vorhanden, und mobil sind sowie signifikante Mengen von Radionukliden sorbieren können. Sie können insbesondere dann den Transport von Radionukliden forcieren, wenn sie langzeitstabil sind, also über Zeiträume, die in der Größenordnung der Fluidtransportzeit liegen. Die geochemischen Bedingungen im Endlager werden in Kap. 3.2.1.1 beschrieben. Auf das Vorhandensein von Kolloiden im Nahfeld, deren Mobilität und Stabilität wird in den Kap. 3.2.1.2 bis 3.2.1.4 eingegangen. Der Mechanismus der Sorption von Radionukliden auf den Kolloiden wird in Kap. 3.2.1.5 behandelt. Die Migration der Kolloide aus dem Nahfeld in das Fernfeld ist Thema in Kap. 3.2.1.6.

3.2.1.1 Geochemische Bedingungen im Endlager

Die potenziellen geochemischen Bedingungen, wie sie sich im Endlager nach Kontakt der Grubenwässer mit den Abfällen (Abfallmatrix und Behältermaterial) und den Versatzmaterialien entwickeln, wurden ausführlich in /RUE 25/ dargestellt.

Für die aus dem umliegenden Gebirge in die Einlagerungskammern zufließende Lösung wird angenommen, dass sie aus dem Bereich des umgebenden Korallenooliths (Oxford) stammt. Als repräsentative Lösung wurde in /RUE 25/ die in Tab. 3.1 aufgelistete Lösung vorgeschlagen, die in ihren Eigenschaften (Konzentrationen der Hauptionen und relevanter Spurenstoffe) mit Messungen der GRS an Proben der Konrad-Sümpfe im unteren, mittleren und oberen Korallenoolith im Jahr 2019 /SCW 20/ gut übereinstimmt. Die Lösung weist eine hohe Ionenstärke von 3.62 mol/l und eine Ca-Konzentration von $2.3 \cdot 10^{-1}$ mol/l auf. Darauf wird später in der Diskussion der Kolloidstabilität eingegangen.

Tab. 3.1 Eigenschaften Referenzwassers aus dem Korallenoolith (Oxford) /KIM 87/

pH = dekadischer Logarithmus der Wasserstoffionen-Aktivität, Eh = Redoxpotential

Parameter		Wert
pH		5,79
E_H	[mV]	230
Dichte	[g/cm³]	1,128

Tab. 3.2 Zusammensetzung des Referenzwassers aus dem Korallenoolith (Oxford) /KIM 87/

Spezies	Konzentration [mg/l]
Li	2,35
NH_4^+	51,2
Na	61.800
K	213
Mg	1.930
Ca	9.110
Sr	486
Ba	0,36
Si	1,6
Mn	0,61

Spezies	Konzentration [mg/l]
Fe	16,3
F	331
Cl	117.300
Br	746
SO_4^{2-}	522

Im Endlagernahbereich wird das geochemische Milieu dann vor allem durch drei Faktoren beeinflusst:

- Zusammensetzung der zufließenden salinaren Lösung
- Reduzierendes Milieu als Ergebnis der langfristigen Korrosion von Behälterstahl, Redoxpufferung durch gleichzeitige Anwesenheit der Fe(III)-haltigen Wirtgesteinsminerale und der Fe(II)-haltigen primären Korrosionsprodukte
- Alkalische pH-Werte durch Reaktion der Lösung mit dem Portlandit aus den zementierten Abfällen

In /RUE 25/ wurden Modellrechnungen zur Nahfeldchemie im Endlager Konrad durchgeführt. Ergebnisse wichtiger Parameter sind in Tab. 3.3 zusammengestellt. Generell zeigt sich, dass der pH-Wert der Lösung, durch die großen Mengen an Portlandzementstein im Bereich von 13,4 gepuffert wird. Dies gilt auch unter den zu erwartenden Ungewissheiten. Die Menge des gelösten anorganischen Kohlenstoffs variiert im Bereich von $3 \cdot 10^{-4}$ bis $4 \cdot 10^{-4}$ mol/kg_{H2O} und wird durch Calcit gepuffert. Ebenso bleibt auch die Ca-Konzentration in den Variationsrechnungen relativ stabil im Bereich von $8{,}3 \cdot 10^{-4}$ bis $1 \cdot 10^{-3}$ mol/kg_{H2O}, gepuffert durch Portlandit und Calcit.

Die pH-Werte und Konzentrationen wichtiger Komponenten wie Ca und dem gelösten anorganischen Kohlenstoff werden in fast allen Systemen durch Portlandit und Calcit gepuffert, so dass sie nur in geringem Umfang variieren und die Konzentrationen von Ca und des gelösten organischen Kohlenstoffs vergleichsweise gering bleiben. Die Ca-Konzentration in Lösung sinkt aber nie unter einen Wert von $8 \cdot 10^{-4}$ mol/l ab. Der E_H-Wert wird zum einen durch die betrachtete Menge an metallischem Eisen, zum anderen durch dreiwertiges Eisen im Korallenoolith beeinflusst.

Tab. 3.3 Relevante Parameter der Lösung im Einlagerungsbereich /RUE 25/

Parameter		Wert
E_H		-0,912
pH		13,46
Gelöster anorganischer Kohlenstoff	[mol/kg_{H2O}]	$3{,}56 \cdot 10^{-04}$
Ca	[mol/kg_{H2O}]	$9{,}42 \cdot 10^{-04}$
Calcit	[mol]	$4{,}83 \cdot 10^{+03}$
Portlandit	[mol]	$2{,}88 \cdot 10^{+04}$

3.2.1.2 Pseudokolloide

Kolloide im Nahfeld eines Endlagers können aus den dort vorhandenen Materialien wie z. B. dem Abfall, den Abfallbehältern, Verfüll- sowie Ausbaumaterialien und deren Alterationsprodukten, die z. B. durch die Korrosion von Metallen, Auflösung in untersättigten Lösungen oder die Degradierung von organischem Material entstehen, gebildet werden. Bei den im Endlager Konrad vorhandenen Materialien, die zur Bildung von Kolloiden führen können, handelt es sich hauptsächlich um Zement und Eisen aus dem Ausbau-, Behälter- und Versatzmaterial sowie organisches Material aus dem Abfall. Beispielsweise kann der im Endlager Konrad verwendete Zement nicht nur als Material, welches aus einer Komponente besteht, angesehen werden. Aktuelle Studien behandeln Zement, als Material, welches kolloidale Eigenschaften hat /JEN 08/.

Denkbar ist, dass Kolloide durch mechanische Einwirkung (Erosion) bei einer hohen Fließgeschwindigkeit im Grundwasser erzeugt werden könnten. Für das Oxford, in dem das Endlager Konrad liegt, wird ein Durchfluss von 710 m^3/a bei einem Querschnitt von 0,3 km^2 angenommen /STO 86/. Mit diesen Annahmen wird am Endlager eine Fließgeschwindigkeit von $2{,}36 \cdot 10^{-3}$ m/a erreicht. /WIE 01/ haben Kolloide für einige Ihrer Experimente aus einer mit Zementmaterial gefüllten Säule bei einer Pumprate von 10 mL/min bei einem Querschnitt von 0,274 m (resultierende Fließgeschwindigkeit $8{,}92 \cdot 10^{+1}$ m/a) erzeugt. Alle anderen bekannten Experimente zur Erzeugung von Kolloiden aus zementhaltigen Materialien bauen auf andere Methoden wie z. B. Batch-Versuchen auf. Bei Untersuchungen zum Masseverlust von Bentonitbarrieren eines Endlagers im granitischen System werden hauptsächlich die geochemischen Bedingungen im Bentonit und der Kontaktlösung untersucht. Als Fließgeschwindigkeiten in den z. B. in /NER 18/ beschriebenen Experimenten werden Werte von 10^{-8} m/s bis 10^{-4} m/s ($3{,}16 \cdot 10^{-1}$ m/a bis

$3{,}16 \cdot 10^3$ m/a) angegeben. /Yan 21/ haben peridynamische Berechnungen zum Masseverlust durchgeführt. Für verschiedene Konzentrationen in der Kontaktlösung haben sie bei einer Fließgeschwindigkeit von 10^{-7} m/s (3,16 m/a) einen sehr geringen Verlust von Probenmaterial berechnet. Niedrigere Fließgeschwindigkeiten wurden nicht untersucht. Unter den um vier Größenordnungen kleinere Fließrate im Endlager Konrad ist daher eine Bildung von Kolloiden durch Erosion der vorhandenen Materialien unwahrscheinlich.

Neben den vorhandenen Materialien und der Erosion haben die geochemischen Bedingungen im Nahfeld einen Einfluss auf die Bildung von Kolloiden. Hierzu zählen u. a. die Salinität des Grundwassers, pH-Wert oder die An- bzw. Abwesenheit von Sauerstoff sowie die Sättigung des Poren- bzw. Grundwassers mit Komponenten der vorhandenen Materialien /WIE 01/, /SWA 09/.

Radionuklide können sich an natürliche wie auch an die im Nahfeldbereich des Endlagers gebildeten Kolloide anlagern. Diese Kolloide werden als Pseudokolloide bezeichnet.

Anhand der chemischen Zusammensetzung der Partikel kann unterschieden werden zwischen /DEG 00/

- anorganischen Kolloiden (Ton, Oxide),
- anorganischen Kolloiden mit Überzügen von organischem Material,
- organischen Kolloiden zusammen mit anorganischen Phasen und
- organischen Kolloiden.

Es sind einige Studien in der Literatur verfügbar, die sich mit der Bildung von Kolloiden in einem zementhaltigen Endlager beschäftigen. Diese Untersuchungen beziehen sich auf Batch-Experimente oder Säulenversuche unter Laborbedingungen. Untersucht werden reine Zement-Systeme (z. B. /WIE 01/, /FUJ 03/, /WIE 04/) aber auch komplexe Systeme aus Abfällen gemischt mit Behälter und Versatzmaterial (z. B. /SWA 03/). /WIE 01/ und /WIE 04/ untersuchen die Bildung von Partikeln aus dem Zementmörtel M1, der zur Verwendung in einem Schweizer Endlager vorgesehen ist, in unterschiedlichen Stadien der Zementdegradation. Es konnten Calcium-Silikat-Hydrat (CSH)-Phasen mit einer Partikelgröße ≤ 1.000 nm nachgewiesen werden.

In Gleichgewichtsauslaugungsversuchen mit Materialien des in Großbritannien vorgesehenen Endlagers für schwachradioaktive Abfälle konnten Kolloide mit einer Partikelkonzentration von 10^{10} Teilchen · dm^{-3} nachgewiesen werden /SWA 03/. Hier wurde in zwei Versuchen aktives Material zusammen mit der Abfallmatrix, dem Behälter- und Verfüllmaterial in Kontakt mit synthetischem Grundwasser gesetzt. Die Hauptzusammensetzung der gefundenen Partikel war Kalziumkarbonat, welches Hauptbestandteil des Verfüllmaterials ist. In einigen Proben wurden auch Ca/Si/Al/Fe nachgewiesen. Das synthetische Grundwasser wies vor dem Kontakt mit den Versuchsmaterialien eine Ca-Konzentration von $2{,}5 \cdot 10^{-2}$ mol/kgH_2O bei einem pH-Wert von 7,1 auf. Nach den Versuchen änderte sich die Konzentration auf $7{,}8 \cdot 10^{-3}$ mol/kgH_2O bei einem pH-Wert von 12,5 bzw. $3{,}1 \cdot 10^{-3}$ mol/kgH_2O bei einem pH-Wert von 12,2.

Aus pulverisierten Zementhydraten unter Endlagerbedingungen konnten /FUJ 03/ Kolloide in den ausgelaugten Lösungen mit einer Partikelkonzentration von 10^{11} bis 10^{12} dm^{-3} nachweisen. Die Mehrzahl der gefundenen Partikel besteht aus Si, Ca und Al. Als Kontaktlösung wurde synthetisches Grundwasser mit einer Ca-Konzentration von $3{,}8 \cdot 10^{-5}$ mol/kgH_2O verwendet.

Ein Tunnel in Maquarin (Jordanien) wurde als natürliches Analogon zu einem Endlager mit zementhaltigen Materialien untersucht /SME 98/. Unter anderem konnte die Partikelkonzentration im Grundwasser mit $1{,}15 \cdot 10^{10}$ bis $4{,}89 \cdot 10^{10}$ Teilchen·dm^{-3} bestimmt werden /SWA 09/. /SWA 09/ merken aber an, dass der Tunnel nahe an der Erdoberfläche in einer Zone mit guter Durchlässigkeit liegt. Das Grundwasser fließt hier durch Klüfte in natürlichem Zement und nicht durch die Zementmatrix. Außerdem herrschen je nach Stand des Grundwassers anoxische bis semi-oxische Bedingungen. In den Grundwasserproben wurde eine Ca-Konzentration von $2{,}17 \cdot 10^{-3}$ - $2{,}77 \cdot 10^{-2}$ mol/kgH_2O und pH-Werten zwischen 7,4 und 12,4 gemessen (Proben M5 – M18 aus /MIL 98/ und M1 aus /WET 98/).

Eine grafische Gegenüberstellung der gefundenen Kolloidkonzentration an einigen Standorten in der Schweiz (Grundwasser), Maquarin und den Laboruntersuchungen aus /WIE 01/ und /WIE 04/ in Abhängigkeit von der Ionenstärke der Kontaktlösung wurde von /WIE 04/ zusammengestellt (siehe Abb. 3.1).

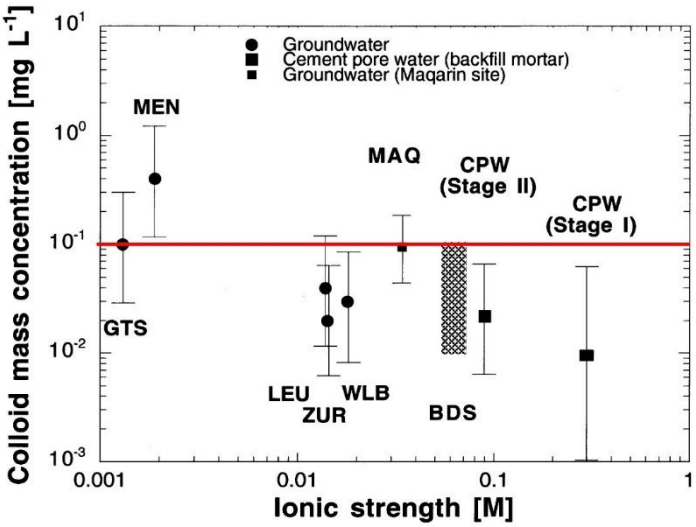

Abb. 3.1 Kolloidkonzentration in Grundwasser und Zementporenwasser (CPW) in Abhängigkeit von der Ionenstärke (bearbeitet nach /WIE 04/)

BDS: Bad Säckingen, MEN: Menzenschwand, LEU: Leuggern, ZUR: Zurzach, GTS: Grimsel Test Site, WLB: Wellenberg, MAQ: Maquarin, CPW I: Zement Degradation Stadium I, CPW II: Zement Degradation Stadium II. Die rote Linie stellt die Obergrenze der Kolloidkonzentration und den salinaren Bedingungen, wie sie auch im Endlager Konrad herrschen, da. Der Wert von 0,1 mg/L wird daher in den Modellrechnungen zum Systemverhalten verwendet.

Die Ergebnisse der hier vorgestellten Untersuchungen zeigen, dass die Bildung von Kolloiden in einem Endlager mit zementhaltigen Materialien nicht ausgeschlossen werden kann. Die im Labor gefundenen Kolloidkonzentrationen entsprechen der gleichen Größenordnung, wie sie auch in den Grundwässern im Tunnel von Maquarin gefunden wurden. Die Ionenstärke der Kontaktlösung spielt für das Auftreten von Kolloiden nach Abb. 3.1 keine Rolle. Es wird gezeigt, dass auch bei höheren Ionenstärken Kolloide gefunden wurden.

Die chemische Zusammensetzung der Kolloide ist abhängig von den in den Experimenten verwendeten Materialien. Hauptbestandteil aller gefundener Kolloide sind CSH- oder Ca-Phasen. Lediglich in den Versuchen von /SWA 03/, in denen auch Behältermaterial vorhanden war, wurde Eisen in den Kolloiden gefunden. Übertragen auf das Nahfeld eines Endlagers werden hier ebenfalls Kolloide aus allen vorhandenen Materialien erwartet. In das Endlager Konrad wird durch den Ausbau und die Endlagerbehälter sehr viel Eisen eingebracht. Die Löslichkeit und Speziation von Eisen in Zementsystemen wurde von /FUR 22/ untersucht. Unter den Konzentrationen des Endlagers Konrad

könnte auch grüner Rost (Fe(II,III)-Hydroxid) stabil sein und als kolloidbildende Phase zur Verfügung stehen.

Untersuchungen zu Eisen-Kolloiden können in der Literatur gefunden werden. Sie können z. B. durch organische Moleküle stabilisiert werden /GHO 11/ oder treten in Wässern aus ehemaligen Minen /CHI 21/ in Flüssen /SCH 07/ oder bei der Aufarbeitung von Erzen /CAR 13/ auf. Explizite Untersuchungen von Eisen-Kolloiden unter Bedingungen eines Endlagers mit zement-haltigen Materialien sind nicht bekannt. Es gibt eine Nennung von Untersuchungen zu Kolloiden aus Silizium mit einem Überzug aus Eisenhydroxid aus Bohrlöchern in Sellafield UK (/GAR 00/ zitiert in /SWA 09/). Ohne die Nennung der geochemischen Bedingungen wird in /GAR 00/ eine Partikelkonzentration von $8 \cdot 10^{10}$ Teilchen$\cdot dm^{-3}$ bei einer Größe von 100 – 200 nm und eine Kolloidkonzentration von 0,5 mg$\cdot dm^{-3}$ angegeben.

Die genannten Untersuchungen zeigen, dass Kolloide in einem zementhaltigen Endlager auch unter höheren Ionenstärken im Kontaktwasser entstehen können. Auf Grund der großen Zementmengen im Endlager Konrad wird hier angenommen, dass im Nahfeld des Endlagers Konrad Zement-Kolloide die wesentliche Rolle spielen und ihre Betrachtung abdeckend für mögliche weitere Kolloide ist. Die beobachteten Konzentrationen, insbesondere unter salinaren Bedingungen, wie sie auch im Endlager Konrad herrschen, liegen im Bereich von maximal 0,1 mg/l. Ein entsprechender Wert wird für die Modellrechnungen zum Systemverhalten vorgeschlagen.

3.2.1.3 Eigenkolloide

Von den Actiniden in der Abfallmatrix ist bekannt, dass sie Kolloide oder Partikel bilden können /ALT 13/, /WAL 13/, /ALT 19/. Eigenkolloide, also Kolloide, die aus dem jeweiligen Actinid (An) bestehen, sind aus thermodynamischen Untersuchungen von vierwertigem Th und Pu bekannt /ALT 04/, /NEC 07/. Die Bildung von Kolloiden mit anderen Oxidationsstufen nimmt in der gleichen Reihenfolge wie der Hang zur Hydrolyse ab An(IV) > An(VI) > An(III) > An (V) /ALT 13/. Die Th- und Pu-Eigenkolloide wurden in Experimenten aus der Unter- und Übersättigung in Anwesenheit von Feststoff (AnO_2(am,hyd), An = Th, Pu) nachgewiesen und stehen im Gleichgewicht mit dem Feststoff und der Kontaktlösung. Die gebildeten $An_mO_{mx}(OH)_{m(4-2x)}(H_2O)_n$-oxyhydroxid Eigenkolloide entstehen durch Polymerisation der aquatischen Spezies $An_m(OH)_n^{4m-n}$. Durch Ihre Anwesenheit erhöht sich die Löslichkeit um bis zu zwei Größenordnungen (Abb. 3.2). Liegen nur die Eigenkolloide in Lösung unterhalb der Löslichkeitsgrenze vor,

können sich diese auch wieder in aquatische Spezies umwandeln und in Lösung gehen. Bei Pu sind Kolloide mit Pu(IV) bekannt (Abb. 3.3). Diese stehen über eine Oxidationsreaktion auch mit Pu(V) im Gleichgewicht.

Die Eigenkolloide sind über einen großen pH-Wertebereich und unterschiedlichen Salzkonzentrationen in der Kontaktlösung unter Anwesenheit eines Bodenkörpers, wie in Abb. 3.3 dargestellt, stabil. /ALT 04/ weisen darauf hin, dass für sie die in Kap. 3.2.1.4 beschriebene Beschreibung der Stabilität nach der DLVO-Theorie nicht gültig ist. Sie sollten nicht mit kristallinen Oxidkolloiden verglichen werden, wie sie bei der Erosion von Materialien im Endlager entstehen können. Sie besitzen zwar ähnliche physikalische Eigenschaften wie die Festphasen, tragen gleichzeitig aber auch zur Gesamtkonzentration in Lösung bei, was eher der Eigenschaft einer großen aquatischen Spezies entspricht.

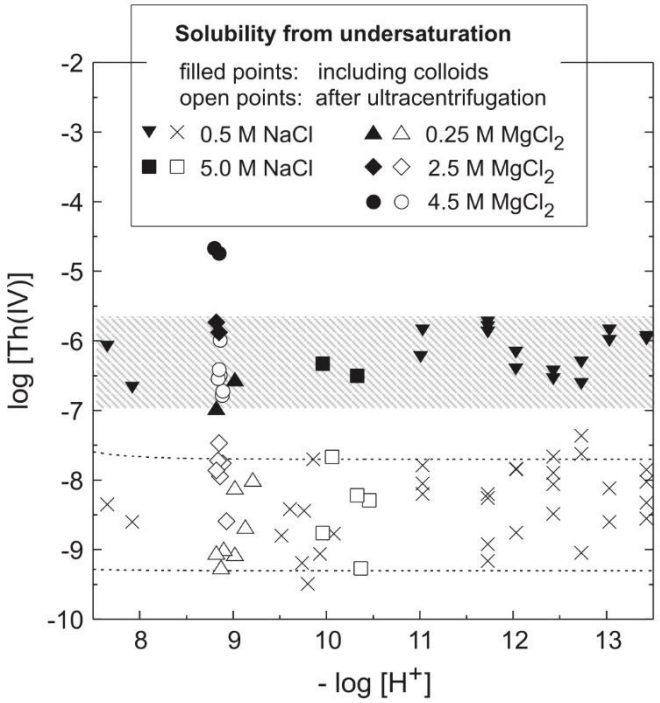

Abb. 3.2 Löslichkeit von $Th(OH)_4$ bestimmt aus der Untersättigung in unterschiedlich Konzentrierter NaCl und $MgCl_2$ Lösungen /ALT 04/

Gefüllte Symbole: Th Konzentration inkl. Kolloide, offene Symbole und Kreuze: Th-Konzentration nach Ultrazentrifugation.

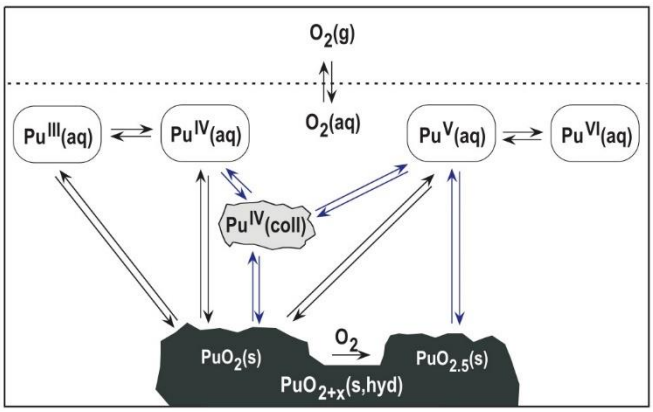

Abb. 3.3 Dynamisches Gleichgewicht zwischen Feststoff und Lösung sowie Redoxgleichgewicht von Plutonium in Anwesenheit von Sauerstoff /NEC 07/

Neben Eigenkolloiden wurde von /ALT 04/ ebenfalls die Sorption von Th(IV) auf Kolloiden von Brucit und Magnesium Hydroxychloride untersucht. Diese bilden sich in $MgCl_2$ Lösungen ab einer Konzentration von 1,8 $kg \cdot kg_{H2O}^{-1}$. Th kann über die folgende Reaktionsgleichung auch berücksichtigt werden:

$$Th(OH)_4\ (aq) + Mg_2(OH)_3Cl \cdot 4H_2\ O(coll) \Leftrightarrow Th(OH)_4 \cdot Mg_2(OH)_3Cl \cdot 4H_2O(coll)$$

Eine Eigenschaft dieser Th-Pseudokolloide ist, dass sie weder durch Filtration mit einem 200 nm Filter noch durch Zentrifugation aus der Lösung entfernt werden können (Abb. 3.4). Eine leichte Tendenz der Sorption und des Einbaus von Th auf Brucit und die Magnesium Hydroxychloride ist nach /ALT 04/ zu beobachten. Eine Untersuchung der kolloidalen Natur dieser Magnesium-Hydroxychloride fand nicht statt.

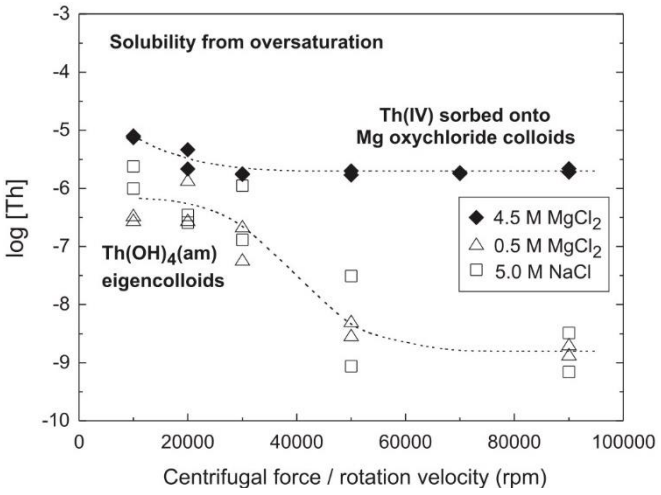

Abb. 3.4 Löslichkeit von Th bestimmt aus der Übersättigung in Abhängigkeit von der Kontaktlösung (NaCl und $MgCl_2$) sowie der Geschwindigkeit der Zentrifugation bei der Abtrennung der Kolloide /ALT 04/

Im Review /ALT 13/ wird weiterer Untersuchungsbedarf aufgezeigt. Hierzu zählt die Hydrolyse der An und wie sie mit der Bildung von Hydrolysespezies und Eigenkolloiden zusammenhängt. Wie oben beschrieben, werden die An(IV) Eigenkolloide als Gleichgewichtsspezies verstanden. Ihre Bildung und Struktur sowie ob sie in Lösung langzeitstabil sind oder koagulieren, ist noch nicht abschließend geklärt.

3.2.1.4 Kolloidstabilität im Nahfeld

Der Begriff der Stabilität von Kolloiden kann auf verschiedene Weise beschrieben werden. Einerseits geht es um die chemische Stabilität, wobei die Anfälligkeit des einzelnen Partikels bezüglich chemischer (oder biologischer) Reaktionen, wie z B. Auflösung oder Oxidation, gemeint ist. Ein Kolloid sollte also aus einem Material bestehen, das in der Lösung, in der es sich befindet, eine niedrige Löslichkeit aufweist. Nur unter diesen Bedingungen bleibt es chemisch stabil und löst sich nicht auf.

Andererseits gilt die physiko-chemische Stabilität, wenn Partikel durch physikalische und chemische Bedingungen stabil in Lösung bleiben. Dieser Zustand wird erreicht, wenn sich Partikel durch elektrostatische Kräfte voneinander abstoßen. Durch die Brownsche Molekularbewegung, die der Gravitation entgegenwirkt, werden die Partikel stabil in der Lösung gehalten. Ist dies nicht der Fall, koagulieren einzelne Partikel zu noch größeren Agglomeraten. Die Brownsche Molekularbewegung kann dadurch der Gravitation nichts

mehr entgegensetzen und die Partikel werden durch Sedimentation aus der Lösung entfernt. Werden Kolloide in einem porösen Medium transportiert, können größere Partikel leichter gefiltert und somit ebenfalls aus der Lösung entfernt werden. Der gleiche Effekt wie zwischen einzelnen Kolloiden kann auch zwischen einem Partikel und Mineraloberflächen auftreten. Hier kommt hinzu, dass unterschiedliche Materialien, unterschiedliche Oberflächenladung haben können.

Die Oberfläche der Kolloide entwickelt im Kontakt mit Wasser eine Oberflächenladung. Dies kann durch die Ausbildung verschiedener Hydroxylgruppen und/oder die Absorption von geladenen Spezies erfolgen. Kolloide aus einem einzigen Material (wie z. B. Oxide) haben auf Ihrer gesamten Oberfläche eine ähnliche Ladung. Auf den Basalflächen von Tonmineralen bildet sich dagegen eine permanente negative Ladung durch strukturelle Substitution in der Oktaeder- oder auch Tetraederschicht aus. An den Kanten der Tonminerale sind gebrochene Silanol- oder Aluminolgruppen vorhanden, die je nach pH-Wert eine unterschiedliche Ladung aufweisen. Dadurch können sich unterschiedliche Ladungen an den Flächen und Kanten der Tonminerale bilden.

Um die Oberflächenladung auszugleichen, bildet sich in der Lösung um die Partikel eine Schicht aus verschiedenen stark an die Oberfläche gebundenen Ionen. Diese Schicht wird elektrische Doppelschicht genannt. Direkt an der Oberfläche können durch Hydratation Moleküle an die Oberfläche gebunden werden. Je weiter die Moleküle von der Oberfläche entfernt sind, desto freier sind sie. Die Dicke der elektrischen Doppelschicht wird durch die Ionenstärke des Lösungsmediums bestimmt. Das elektrische Potential an der Grenze der Doppelschicht (Scherfläche) wird als Zeta-Potential bezeichnet.

Die Zeta-Potentiale für unterschiedliche Minerale können stark variieren. Als Beispiel ist in Abb. 3.5 das Zeta-Potential von Hämatit und Silica in Abhängigkeit der pH-Wertes aufgetragen. Der pH-Wert, an dem das Potential null ist, wird isoelektrischer Punkt (englisch: isoelectric point, IEP) genannt. Hämatit hat einen IEP bei einem pH-Wert von ungefähr 8, was bedeutet, dass die Oberfläche bei niedrigeren pH-Werten positiv und bei höheren pH-Werten negativ ist. Silica hat einen IEP bei einem pH-Wert von ungefähr 3. Es liegt über einen großen pH-Bereich (pH-Wert größer als 3) mit negativ geladener Oberfläche vor. Die unterschiedlichen Ladungen für Silica und Hämatit führen dazu, dass in einer Mischung aus Silica und Hämatit, abhängig vom pH-Wert sich das Silica auf der Oberfläche des Hämatits anlagert und die Oberflächenladung des Hämatits dadurch beeinflusst (siehe Abb. 3.5).

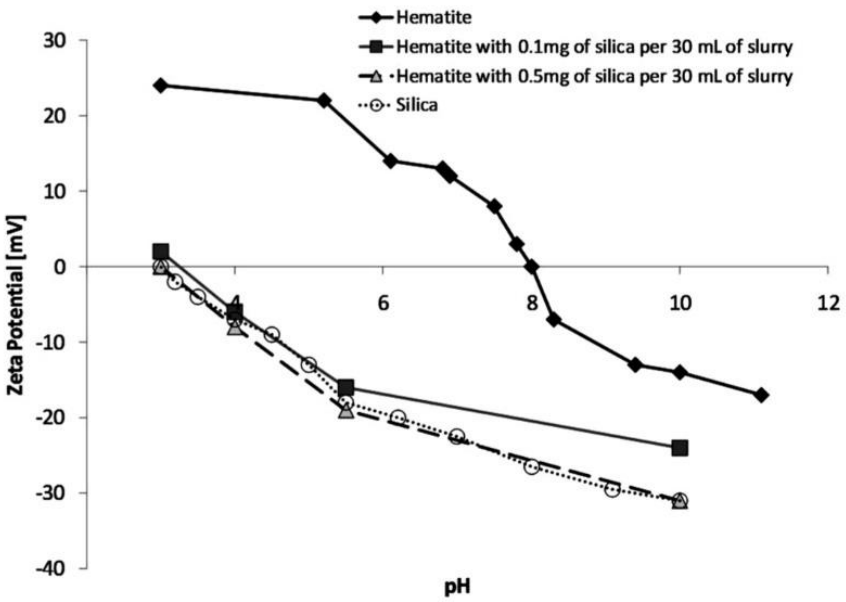

Abb. 3.5 Zeta-Potentiale von Hämatit und Silica in Abhängigkeit des pH-Wertes

(Abbildung aus /CAR 13/ mit Daten von /ESU 88/) in einer 0,01 mol·dm^{-3} $NaNO_3$ Lösung

Die Ladung der Oberflächen unterscheidet sich in natürlichen und synthetischen Systemen. Am Beispiel von Eisenmineralen können /CAR 13/ zeigen, dass neben einer Verunreinigung mit Silica auch die Anwesenheit von Anionen wie Cl^- und SO_4^{2-} den IEP hin zu niedrigeren Werten verschiebt.

Die Theorie von Derjaguin und Landau /DER 41/ sowie Verwey und Overbeek /VER 48/ (oder kurz DLVO-Theorie)[6] kombiniert die Effekte der Anziehung und Abstoßung in der elektrischen Doppelschicht. Klassischerweise berücksichtigt sie

- London-van der Waals Anziehung und
- Rückstoßkraft der elektrischen Doppelschicht.

Ein erweiterter DLVO-Ansatz berücksichtigt zusätzlich noch die

- Hydratationskräfte und
- Born-Abstoßung.

[6] /ALT 04/ weisen darauf hin, dass für Eigenkolloide die DLVO-Theorie nicht gültig ist.

Die Kombination der einzelnen berücksichtigten Kräfte führt zu einer theoretischen Beschreibung des Verlaufs der Wechselwirkungsenergie von der Oberfläche eines Partikels ins Kontinuum der Lösung und bietet die Möglichkeit der theoretischen Beschreibung des Verhaltens von Kolloiden. Die Dicke der elektrischen Doppelschicht, und damit die Reichweite der Wechselwirkungskräfte, ist abhängig von der Ionenstärke und Valenz der Ionen in der Lösung. Bei niedrigen Konzentrationen und kleiner Valenz der Ionen ist die Reichweite größer als bei höheren.

Eine Energiebarriere kann in der Nähe der Oberfläche berechnet werden. Diese verhindert die Annäherung zweier Partikel aneinander. Je weiter die elektrische Doppelschicht in das Kontinuum reicht, desto höher ist die Energiebarriere. D.h. es gibt eine Konzentration der Lösung, bei der die Energiebarriere Null ist und die Annäherung zweiter Partikel rein durch Diffusion gesteuert wird. Diese Konzentration wird kritische Koagulationskonzentration oder in Englisch critical coagulation concentration (CCC) genannt. Unterhalb der CCC verlangsamt bzw. verhindert die Energiebarriere eine Annäherung. Oberhalb ist die Energiebarriere nicht mehr vorhanden und eine Koagulation kann beobachtet werden. Die Werte der CCC werden für monovalente (einwertige) Kationen höher gemessen als für divalente (zweiwertige) Kationen. So konnten z. B. /SEH 20/ für Bentonit-Kolloide eine pH abhängige Na-CCC von 15 bis 350 mmol/L bei einem pH-Wert von 6 bis 10 und eine pH unabhängige Ca-CCC von 1 mmol/L bestimmen.

Es wird davon ausgegangen, dass koagulierte Partikel, die sich im primären Minimum der Wechselenergie befinden, nicht mehr voneinander getrennt werden können. Vor der Energiebarriere in Richtung Kontinuum kann je nach geochemischen Bedingungen sich ein sekundäres Minimum der Wechselwirkungsenergie ausbilden. Für zwei Partikel, die sich bei der Annäherung in diesem Minimum befinden ist die Koagulation reversibel. Durch Änderung der geochemischen Bedingungen hin zu Konzentrationen unterhalb der CC in der Lösung können die Partikel wieder voneinander getrennt werden. Aber auch die Veränderungen hin zu hohen pH-Werten einer zementhaltigen Umgebung kann Kolloide freisetzen. So beobachteten /LI 12/ die Freisetzung von Tonkolloiden aus Sanden der Savannah River Site (USA) im Kontakt mit Zementporenwasser. Durch die Änderung des pH-Wertes ändern sich die Oberflächenladungen der Quarzkörner und der darauf gebundenen Tonminerale (Kaolinit und Goethit), weshalb die Tonkolloide ausgetragen werden können. Die Ca- und Mg-Konzentration im Kontaktwasser betrug 0,93 mg/L bzw. 0,66 mg/L.

Organische Moleküle können sich an die Oberfläche der Partikel anlagern und dadurch die Oberflächeneigenschaften verändern. So beobachteten /SEH 20/ eine Erhöhung der Ca-CCC auf 2 mmol/L durch die häufig in Grundwässern vorkommenden Fulvinsäuren bei Bentonit-Kolloiden. Auch reine organische Kolloide können durch höhere Ionenstärken koagulieren. /WIE 01/ kommen zu dem Schluss, dass die Zugabe von Isosaccharinsäure, die sich im Grubengebäude aus Zellulose bildet, keinen Einfluss auf die Kolloidstabilität in Ihren Versuchen hat.

In der Literatur sind einige Untersuchungen zur Kolloidstabilität unter den Bedingungen eines Endlagers mit zementhaltigen Materialien zu finden. /FUJ 03/ untersuchten die Eigenschaften der Kolloide aus Ihren Experimenten mit Stabilitätsuntersuchungen in Abhängigkeit der Ca-Konzentration. Sie konnten eine Ca-CCC für die ca. 300 nm großen Kolloide von $5 \cdot 10^{-4}$ mol/L bestimmen. Die Zeta-Potentiale der verschiedenen Kolloide wurden in Abhängigkeit des Fest-/Flüssig-Verhältnisses untersucht (siehe Abb. 3.6). Es konnte kein Einfluss auf das Zeta-Potential festgestellt werden. Ein großer Einfluss auf das Zeta-Potential hat das Ca/Si-Verhältnis der CSH-Kolloide. Hier variiert das gemessene Zeta-Potential zwischen +/- 30 mV. Mit Hilfe der DLVO-Theorie wurde das Potential der Wechselwirkungen für einen Partikel mit einem Radius a = 25 nm und einem Zeta-Potential von -25 mV in Abhängigkeit der Ca-Konzentration berechnet (siehe Abb. 3.7). Die theoretischen Überlegungen konnten ein primäres Maximum im Potential der Wechselwirkungen für Ca-Konzentrationen von $1 \cdot 10^{-4}$ mol/L bzw. $5 \cdot 10^{-4}$ mol/L bestimmen. Bei niedrigeren Ca-Konzentrationen ist das Potential der Wechselwirkung ≤ 0 und eine rein diffusive Annäherung zweier Kolloide ist möglich. Somit konnte in den theoretischen Überlegungen die Ca-CCC berechnet werden.

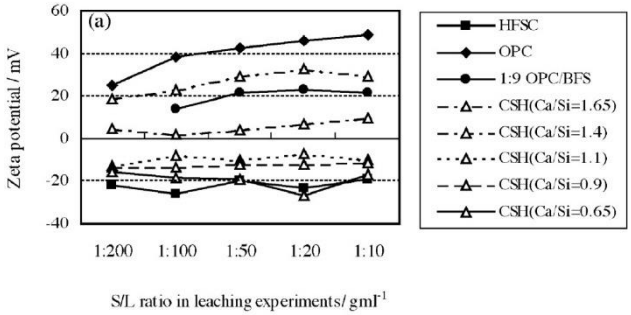

Abb. 3.6 Gemessene Zeta-Potentiale für unterschiedliche Partikel aus CSH-Phasen in Abhängigkeit des Fest-/Flüssig-Verhältnisses /FUJ 03/

Der pH-Werte der in der Abbildung dargestellten Messungen ist in /FUJ 03/ nicht angegeben worden.

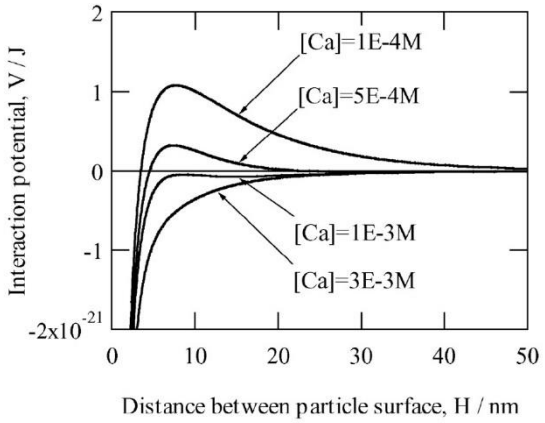

Abb. 3.7 Wechselwirkungsenergie nach der DLVO-Theorie in der Abhängigkeit der Ca-Konzentration /FUJ 03/

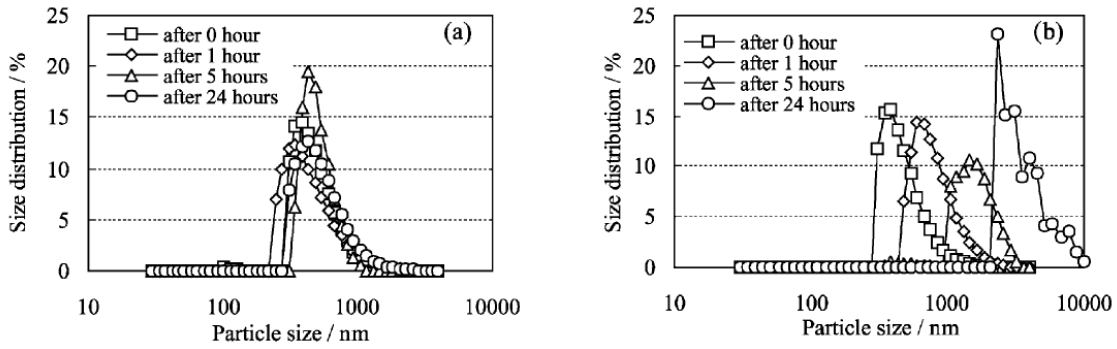

Abb. 3.8 Entwicklung der Kolloidgröße über die Zeit von „high fly ash and Silica fume-content Cement“ aus den Experimenten von /FUJ 03/ mit einer Ca-Konzentration von a) $2 \cdot 10^{-4}$ mol/L und b) $5 \cdot 10^{-4}$ mol/L

Im Paper von /FUJ 03/ wird für b) eine Ca-Konzentration von $5 \cdot 10^{-5}$ mol/L angegeben. Bei einer niedrigeren Ca-Konzentration ist eigentlich keine Koagulation zu erwarten. Im weiteren Text desselben Papers wird auch immer nur von $5 \cdot 10^{-4}$ mol/L gesprochen, weshalb dieser Wert als korrekt angesehen wird.

Die Stabilität der Kolloide aus den Experimenten von /WIE 04/ wurde in einem synthetischen Zementporenwasser mit einer Ca-Konzentration von ca. $1{,}7 \cdot 10^{-3}$ mol/L untersucht (siehe Abb. 3.9). Dazu wurde zu Beginn jedes einzelnen Versuches Quarzpulver oder zerkleinertes Zementmaterial mit dem Zementporenwasser in Kontakt gebracht. Es zeigt sich, dass die Kolloidkonzentration mit der Zeit abnahm und nach ca. 500 Stunden unterhalb der Nachweisgrenze abgesunken ist. Da die Ca-Konzentration über der von /FUJ 03/ bestimmten Ca-CCC von $5 \cdot 10^{-4}$ mol/L liegt, entsprechen die Beobachtungen den Erwartungen, nämlich, dass eine Koagulation und Sedimentation der Kolloide unter diesen Bedingungen stattfindet.

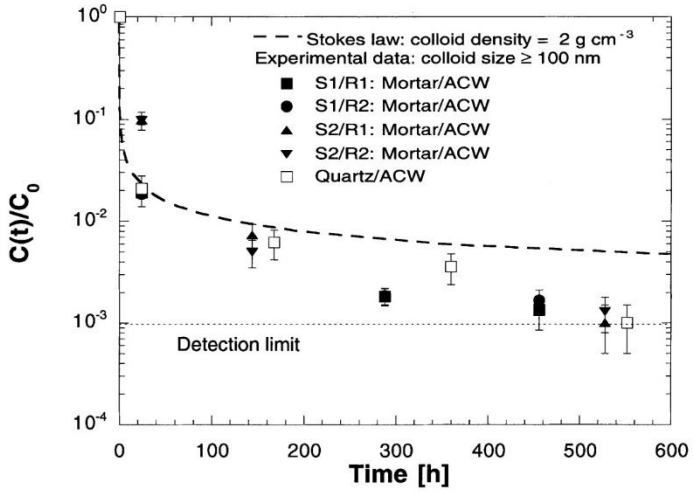

Abb. 3.9 Entwicklung der Kolloidkonzentration aus verschiedenen experimentellen Serien (S1, S2) sowie Quarz-Partikel in synthetischem Zementporenwasser (ACW: artificial cement pore water) über die Zeit /WIE 04/

In Kap. 3.2.1.2 wurde erwähnt, dass Kolloide im Nahfeld eines Endlagers mit zementhaltigen Materialien zu erwarten sind. Die Untersuchungen zur Stabilität sowie die theoretischen Überlegungen mit der DLVO-Theorie zeigen eine deutliche Abhängigkeit von der Ca-Konzentration. Liegt diese oberhalb der von /FUJ 03/ bestimmte Ca-CCC von $5 \cdot 10^{-4}$ mol/L, so wird eine schnelle Koagulation der Kolloide und eine damit einhergehende Sedimentation erwartet. Unter diesen Bedingungen ist ein Rückhalt der Kolloide durch Filtration möglich.

Das Grundwasser im Endlager Konrad hat eine Ca-Konzentration die weit über der von /FUJ 03/ bestimmten Ca-CCC liegt. Daher und auch aufgrund der sehr hohen Konzentration an Na^+-Ionen wird für das Endlager Konrad davon ausgegangen, dass die Kolloide nicht langzeitstabil sind, sondern nach einigen hundert Stunden durch Koagulation und Sedimentation bzw. Filtration aus dem System entfernt werden.

3.2.1.5 Sorption von Radionukliden an Kolloiden

Für zementhaltige Materialen gibt es verschiedene Möglichkeiten für den Rückhalt von Radionukliden. Dazu gehören

- Radionuklid-Sorption auf der Oberfläche,

- struktureller Einbau oder Mitfällung[7] von Radionukliden sowie
- Bildung von Mischkristallen.

Für niedrige Radionuklidkonzentrationen unter bekannten geochemischen Bedingungen kann die Sorption als reversibler Gleichgewichtsprozess mit einem Verteilungskoeffizienten (K_d) beschrieben werden. Beim strukturellen Einbau und der Bildung von Mischkristallen werden die Radionuklide dauerhaft in die Struktur eines Minerals eingebaut. Daher ist dieser Prozess nur reversibel, wenn sich das Mineral wieder auflöst. Hierbei kann ein Verteilungskoeffizient (R_d) der Desorption bestimmt werden. Die Prozesse zur Sorption und Einbau von Radionukliden auf und in Zementphasen ist in der Literatur beschrieben und es gibt einige zusammenfassende Literaturstellen wie z. B. /OCH 15/.

Die Sorption von Radionukliden auf Kolloiden folgt den gleichen Prozessen wie auf den Ausgangsmaterialien, aus denen die Kolloide bestehen (z. B. Zement oder Bentonit). Allerdings haben Kolloide im Vergleich zu einer Feststoffmatrix des gleichen Materials eine deutlich höhere spezifische Oberfläche. Um diesen Umstand bei der Modellierung der Sorption zu berücksichtigen, werden die für das Ausgangsmaterial gemessenen Verteilungskoeffizienten mit einem sogenannten Skalierungsfaktor multipliziert. Der Skalierungsfaktor berücksichtigt dabei nur die Unterschiede in der für die Sorption verfügbaren Oberfläche und nicht andere chemische Effekte. Er entspricht dem Verhältnis der spezifischen Oberflächen von Kolloiden und Feststoff. Als Skalierungsfaktor wird von /WIE 04/ für CSH-Phasen ein Wert von 7 mit einer oberen Grenze von 9 festgelegt. Die ebenfalls untersuchte gehärtete Zementpaste hat einen Skalierungsfaktor von 16 mit einer Obergrenze bei 80.

In einem Endlager wird die Sorption an Materialien der Feststoffmatrix als Prozess für den Rückhalt im Endlager verstanden. Eine Sorption an Kolloiden hat den Effekt, dass die Sorption an der Feststoffmatrix und damit der Rückhalt im Endlager vermieden wird. Die auf den Kolloiden sorbierten Stoffe können zusammen mit den Kolloiden abtransportiert werden.

[7] Radionuklide werden bei der Neubildung von Mineralen zusammen mit nicht radioaktiven Elementen bzw. Elementen, die sich chemisch ähnlich Verhalten, in das Mineral eingebaut und dadurch permanent an das Mineral gebunden

Diese Reduzierung des Rückhalts kann über einen Reduzierungsfaktor F_{red} [-] ausgedrückt werden. Dieser ist in /WIE 01/ und /WIE 04/ beschrieben als Beziehung zwischen dem Verteilungskoeffizienten R_d in Abwesenheit und $R_{d,coll}$ in Anwesenheit von Kolloiden, wobei $F_{red} = R_d / R_{d,coll}$.

In Abb. 3.10 ist die Abhängigkeit des Reduzierungsfaktor vom Verteilungskoeffizienten und der Masse der Kolloide aufgetragen. Zu sehen ist, dass für stärker sorbierende Radionuklide ein größerer Effekt auftritt als für schwächer sorbierende.

So wird von /WIE 04/ die Reduzierung des Rückhalts für Cs und Sr bis zu einer Kolloidkonzentration von 10 mg/L vernachlässigt. Bei stark sorbierenden Radionukliden wie z. B. Th wird keine Reduzierung des Rückhalts bis zu einer Kolloidkonzentration von 0,1 mg/L erwartet. Dieser Wert wird von /WIE 04/ als Obergrenze der Kolloidkonzentration der von ihnen untersuchten geochemischen Bedingungen angegeben (vergleiche Abb. 3.1). Die Schlussfolgerung von /WIE 04/ ist daher, dass unter den geochemischen Bedingungen des geplanten Endlagers in der Schweiz Kolloide keine Rolle bei der Mobilisierung von Radionukliden spielen.

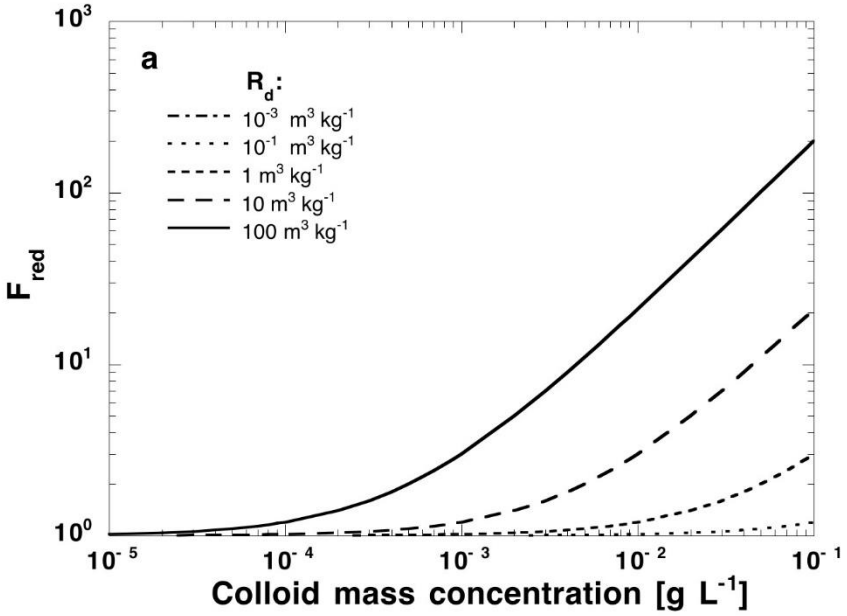

Abb. 3.10 Einfluss der Kolloide auf den Rückhalt von Radionukliden in einem Endlager mit zementhaltigen Materialien /WIE 01/. F_{red} ist der Reduzierungsfaktor, um den die Sorption auf den vorhandenen Materialien durch die Anwesenheit von Kolloiden verringert wird.

Für die Modellrechnungen (Kapitel 3.2.2) werden die von der Nagra abgeleiteten Verteilungskoeffizienten zur Sorption der Radionuklide auf Zementoberflächen inklusive der Skalierungsfaktoren für Kolloide angesetzt /WIE 01/.

3.2.1.6 Migration der Kolloide aus dem Nahfeld in das Fernfeld

In der Literatur ist der Transport von Kolloiden in Grundwässern gut untersucht. Ein Beispiel sind die Versuche zum Kolloidtransport im Felslabor Grimsel /NOS 16/.

Im Nahfeld eines Endlagers gebildete Kolloide können nur in das Fernfeld transportiert werden, wenn sie stabil in Lösung sind. Die unter den Bedingungen eines zementhaltigen Endlagers im Nahfeld erwarteten Kolloidkonzentrationen sind sehr gering (siehe Abb. 3.1).

Zementhaltige Materialien im Endlager haben einen deutlichen Einfluss auf die geochemischen Bedingungen um das Endlager herum. Hier wird sich ein Gradient zwischen den alkalischen Bedingungen im Endlager und den Bedingungen des umgebenden Grundwassers ausbilden (siehe Abb. 3.11). Die jeweiligen geochemischen Bedingungen haben auch einen Einfluss auf die Stabilität der Kolloide (chemisch und physiko-chemisch). Es können Bedingungen auftreten, in denen die vorhandenen Kolloide aufgelöst und/oder neue Kolloide gebildet werden können. Durch das Auflösen und Neubilden von Kolloiden könnten die mit den Kolloiden transportierten Radionuklide aus dem Endlager transportiert und freigesetzt werden.

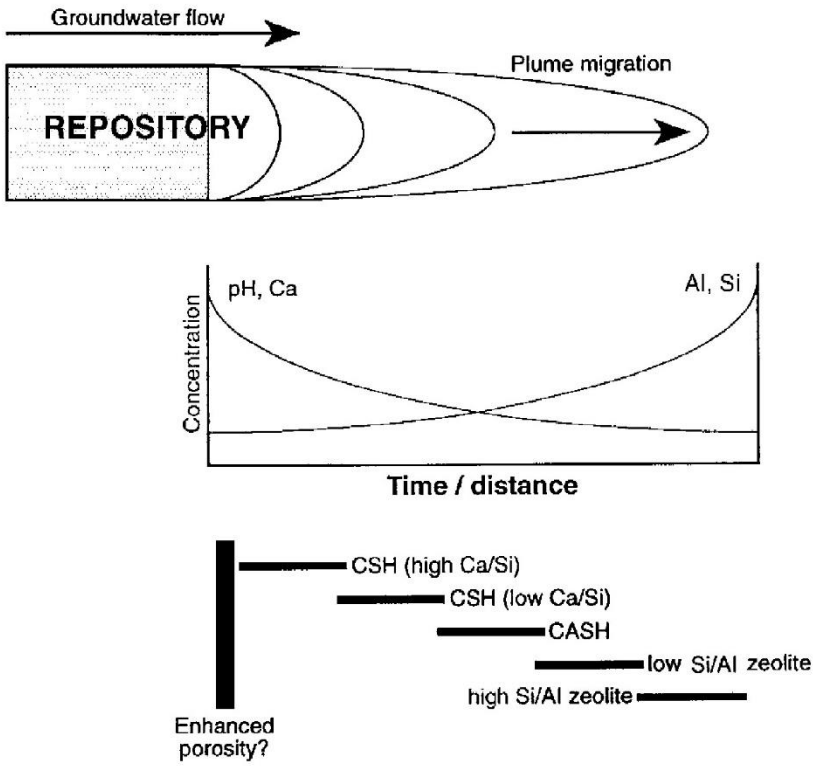

Abb. 3.11 Entwicklung der alkalischen Fahne in Fließrichtung der Lösung aus einem Endlager mit zementhaltigen Materialien /SAV 98/

Die meisten Untersuchungen zu einem Endlager mit zementhaltigen Materialien gehen davon aus, dass das Grundwasser um das Endlager herum eine niedrige Ionenstärke bei einem neutralen pH-Wert hat. Das Grundwasser im Korallenoolith des Endlagers Konrad hat aber eine hohe Ionenstärke. Bei diesen hohen Ca- (und Na-) Konzentrationen werden Kolloide aus der Lösung durch Koagulation, Filtration und Sedimentation entfernt. Es wird davon ausgegangen, dass diese Bedingungen im Nahfeld des Endlagers Konrad dazu führen, dass mit der Lösung keine Kolloide freigesetzt werden (können). Würde sich die Zusammensetzung des Grundwassers zu niedrigen Ionenstärken ändern (wie es z. B. in Skandinavien mit Schmelzwasser auf der Endlagerteufe betrachtet wird), könnten Kolloide freigesetzt werden und ein Transport von Radionukliden stattfinden, da unter diesen Bedingungen die Kolloide wieder stabil in Lösung sind.

Hohe Ca-Konzentrationen in den Konrad-Lösungen werden wahrscheinlich durch Calcit-Minerale im Gestein gepuffert. Es ist nicht anzunehmen, dass die Minerale innerhalb von 1 Mio. Jahren vollständig aufgelöst werden. Zudem kann Ca auch über Subrosion nahegelegener Salzformationen eingebracht werden.

Für Endlager in kristallinem Gestein in Finnland und Schweden wird angenommen, dass Schmelzwässer von Gletschern in bestimmten Zeitabschnitten zu reduzierten Ca- Konzentrationen im Bereich des Endlagers führen könnten. Im Deckgebirge des Endlagers Konrad gibt es aber kein Kristallingestein, sondern Tonschichten, die dem Eindringen gering mineralisierter Wässer zum Endlager eine Barriere entgegenstellen.

3.2.2 Kolloidbeeinflusster Radionuklidtransport

Unterstützend zu den Aussagen in Kap. 3.2.1 sollen hier ausgewählte Modellrechnungen durchgeführt werden, um zu überprüfen, unter welchen Bedingungen Kolloide überhaupt eine Auswirkung auf die Langzeitsicherheit des Endlagers Konrad haben könnten und ob derartige Bedingungen zu erwarten sind.

3.2.2.1 Szenarien zum kolloidgetragenen Radionuklidtransport

Zur Erstellung der Rechenfälle und der Parametrisierung der Modelle ist es wichtig, mögliche Szenarien, die zum kolloidgetragenen Transport führen können, zu identifizieren. Ein wesentlicher Aspekt ist, ob sich Kolloide im Nahbereich aus den Abfällen bilden, oder ob auch Kolloide im Konradwasser / Grundwasser vorhanden sind, an denen Radionuklide im Fernfeld sorbieren können. Abb. 3.12 illustriert diese prinzipiell unterschiedlichen Bedingungen.

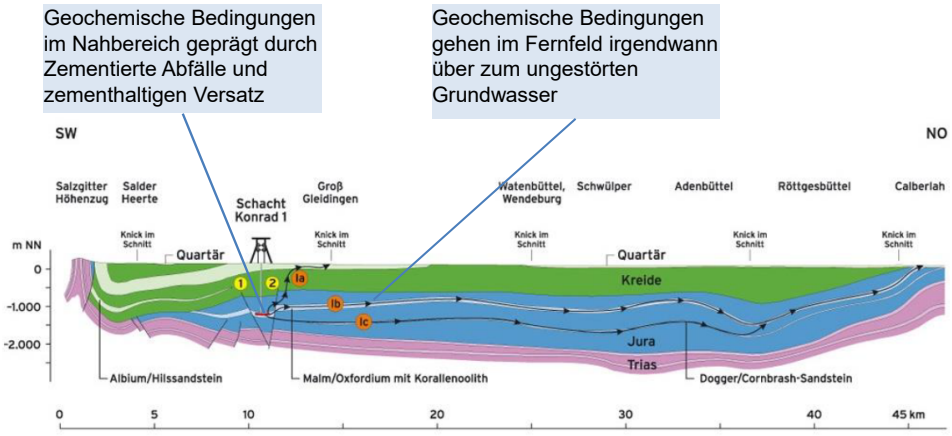

Abb. 3.12 Relevante geochemische Bedingungen im Nah- und Fernfeld des Endlagers für die Betrachtung von Szenarien zum kolloidgetragenen Transport

Aufgrund der großen Mengen an zementierten Abfällen und zementhaltigen Versatzstoffen im Endlager kann die Bildung von Zementkolloiden im Nahbereich nicht ausgeschlossen werden. Wenn sich diese Kolloide aus den Abfällen bilden, ist anzunehmen, dass die Radionuklide, die sich in den zementierten Abfällen befinden, initial auf den Kolloiden sorbiert sind. Abhängig von den Wechselwirkungsprozessen (i) Filtration der Kolloide, (ii) Desorption der Radionuklide von den Kolloiden und (iii) Sorption der Radionuklide an der Gesteinsmatrix können die Kolloide den Transport der Radionuklide und damit deren Ankunftszeiten und Konzentrationen am Ende des Ausbreitungswegs beeinflussen.

Da, wie im Kap. 3.2.1.4 diskutiert wurde, anzunehmen ist, dass die Zementkolloide nicht langzeitstabil sind, sollte zur Überprüfung der Relevanz des kolloidgetragenen Transports auch ein alternatives Szenario unterstellt werden, bei dem sich Radionuklide erst im Fernfeld an im Konradwasser vorhandene Kolloide binden, vgl. Abb. 3.13. Bisher existieren keine Messungen zu Kolloiden in Konradwässern. Aufgrund der hohen Ca Konzentrationen im ungestörten Formationswasser, die um Größenordnungen über der kritischen Koagulationskonzentration liegen, ist anzunehmen, dass dort keine hohen Kolloidkonzentrationen auftreten, vgl. Kap. 3.2.1.4.

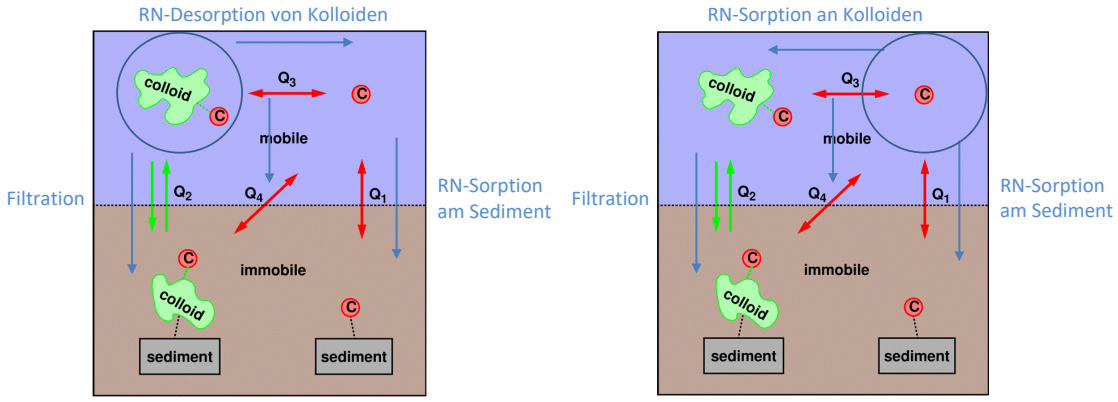

Abb. 3.13 Links: Szenario 1: Bedingungen bei der Bildung von Zementkolloiden im Nahbereich. Radionuklide sind initial auf Kolloiden gebunden. Rechts: Szenario 2: Radionuklide sind initial gelöst und können im Fernfeld an potenzielle Kolloide im Konradwasser gebunden werden.

Sofern sich die Wechselwirkungsreaktionen von Radionukliden mit Kolloiden und Gesteinsmatrix im Gleichgewicht befinden, d. h. schnell gegenüber dem Transport sind,

sind keine prinzipiellen Unterschiede bezüglich des Einflusses von Kolloiden zu erwarten, die aus dem Endlager freigesetzt wurden bzw. jenen die bereits in der Geosphäre vorhanden sind. Unterschiede ergeben sich durch die Stärke der Bindung an die Kolloide, bzw. deren Mobilität. Sofern die Desorption von Radionukliden von den Kolloiden sehr langsam gegenüber dem Transport erfolgt, könnte eine initiale Bindung der Radionuklide an die Kolloide aus dem Endlager zu einem sehr viel schnelleren Transport eines Teils der Radionuklide führen. Somit sind Konsequenzen von Kolloiden aus dem Endlager als höher einzustufen. Da in den Modellrechnungen für die Sorption von Radionukliden an Zementkolloiden auch sehr hohe Verteilungskoeffizienten verwendet werden, werden diese Rechnungen für abdeckend gehalten und im Folgenden nicht bezüglich der Herkunft der Kolloide unterschieden.

Zusätzlich werden einfache Modellrechnungen zur Bedeutung von Eigenkolloiden durchgeführt, die sich in ihrem Verhalten von den oben genannten Kolloiden unterscheiden. Im Folgenden werden zuerst die Modelle und Ableitung der Modellparameter dargestellt und anschließend die Ergebnisse der Rechnungen vorgestellt und diskutiert.

3.2.2.2 Verhältnisse am Standort Konrad und betrachtete Radionuklide

Die für den Radionuklidtransport relevanten Verhältnisse am Standort Konrad zeichnen sich durch sehr lange Transportwege und Transportzeiten aus; für den im Folgenden betrachteten Oxfordpfad[8] liegt die Fluidtransportzeit bei etwa 330.000 Jahren (vgl. auch Anhang A). Zu diesem Zeitpunkt treten in den Rechnungen der LZSA die Maxima der nicht sorbierenden Radionuklide auf, vgl. Abb. 3.14 /STO 86/. Eine weitere Gruppe von Radionukliden tritt mit Maxima nach etwas mehr als 10^7 Jahren auf. Bei dieser Gruppe handelt es sich um Uranisotope und deren Tochternuklide. Ihr Maximum ist bestimmt durch die Rückhaltung von Uran mit relativ niedrigen Sorptionswerten im Bereich von 1 bis $3 \cdot 10^{-3}$ m^3/kg. Zwischen diesen beiden Zeitpunkten treten die Maxima der sehr schwach sorbierenden Radionuklide Se-79 und Tc-99 auf. Die Peaks der sehr stark sorbierenden drei- und vierwertigen Actinide (K_d = 0,5 -1 m^3/kg), für die der kolloidgetragene Transport eine Rolle spielen könnte, sind nicht in der Abb. 3.14 dargestellt, da die Rechnungen in der LZSA in /STO 86/ nicht für die Zeitdauer von $3 \cdot 10^9$ Jahren durchgeführt

[8] Auf Grund der mächtigen Tongesteine ist entlang des Unterkreidepfads mit einer Filtration von Kolloiden zu rechnen, so dass der Oxfordpfad für die folgenden Betrachtungen als abdeckender Fall angesehen wird.

wurden, an dem diese Radionuklide bei gleichbleibenden Modellannahmen erst im oberflächennahen Grundwasser auftreten würden. Dies betrifft vor allem Th-232, da die meisten anderen stark sorbierenden Actiniden zu diesem Zeitpunkt bereits zerfallen sind.

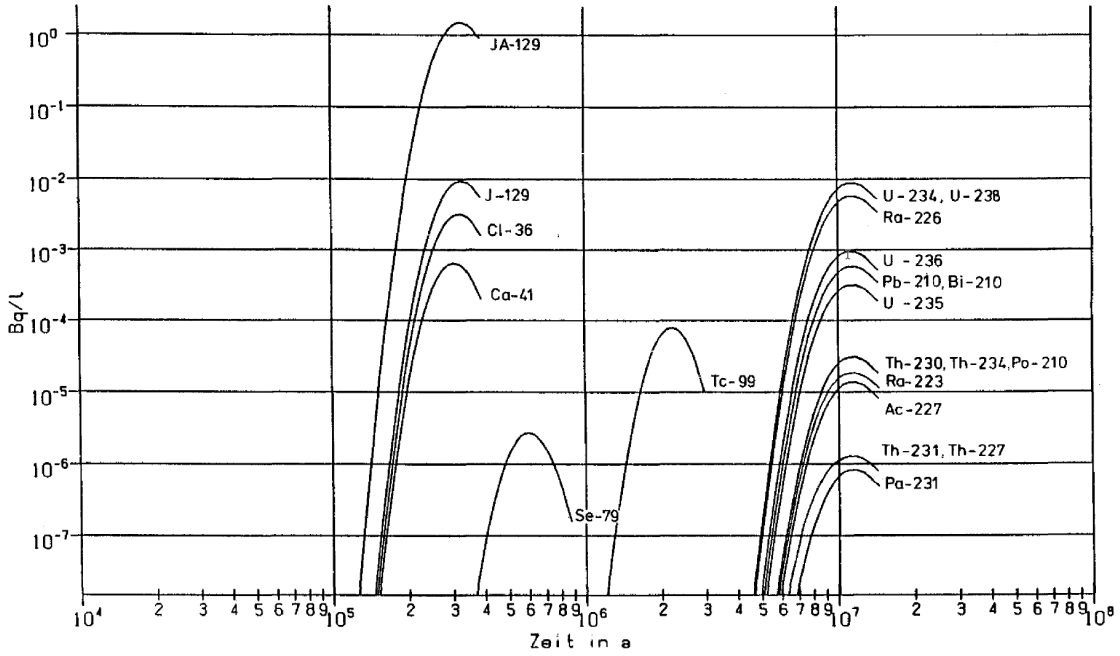

Abb. 3.14 Berechnete Radionuklidkonzentrationen am Ende des Transportpfades im Oxford /STO 86/

Aus diesen Betrachtungen heraus ergeben sich Radionuklide, auf die besonderes Augenmerk gelegt werden sollte. Diese sind in Tab. 3.4 farblich markiert dargestellt. Bei den blau markierten handelt es sich um die – unter der Annahme, dass beide stabil als Anionen vorliegen – eher schwach sorbierenden Spalt- und Aktivierungsprodukte Se-79 und Tc-99. Für nicht sorbierende Radionuklide wie I, Cl und Ca kann ein kolloidgetragener Transport zu keiner Erhöhung des Radionuklidtransports beitragen. Insbesondere interessant ist der Transport für Actiniden, die oberhalb der Uranisotope in den Zerfallsreihen stehen, deren Transport also nicht vom Uran bestimmt wird. Diese Gruppe ist in grün dargestellt. Die Actiniden der Gruppe, deren Halbwertszeit deutlich kleiner als die Fluidtransportzeit ist und die keine langlebige Mutter haben, würden auch bei einem schnellen Transport auf Kolloiden weitgehend zerfallen und keinen Beitrag zur Summendosis liefern. Sie sind in Rot dargestellt und werden nicht berücksichtigt. Die langlebigen Uranisotope und Tochternuklide der Zerfallsreihen sind orange markiert.

Tab. 3.4 Radionuklidliste mit Farbkodierung für die Relevanz des kolloidgetragenen Radionuklidtransports

Farbcodierung siehe Text

Radionuklid	Halbwertszeit [a]	Radionuklid	Halbwertszeit [a]	Radionuklid	Halbwertszeit [a]
H-3	$1{,}232 \cdot 10^{+01}$	Cs-137	$3{,}017 \cdot 10^{+01}$	Ac-225	$2{,}74 \cdot 10^{-02}$
C-14	$5{,}73 \cdot 10^{+03}$	Sm-151	$9{,}30 \cdot 10^{+01}$	Cm-246	$4{,}73 \cdot 10^{+03}$
Cl-36	$3{,}00 \cdot 10^{+05}$	Cm-248	$3{,}40 \cdot 10^{+05}$	Pu-242	$3{,}75 \cdot 10^{+05}$
Ca-41	$1{,}03 \cdot 10^{+05}$	Pu-244	$8{,}00 \cdot 10^{+07}$	U-238	$4{,}468 \cdot 10^{+09}$
Co-60	$5{,}272 \cdot 10^{+00}$	Cm-244	$1{,}81 \cdot 10^{+01}$	Th-234	$6{,}60 \cdot 10^{-02}$
Ni-59	$7{,}50 \cdot 10^{+04}$	Pu-240	$6{,}563 \cdot 10^{+03}$	U-234	$2{,}455 \cdot 10^{+05}$
Ni-63	$1{,}00 \cdot 10^{+02}$	U-236	$2{,}342 \cdot 10^{+07}$	Th-230	$7{,}54 \cdot 10^{+04}$
Se-79	$1{,}10 \cdot 10^{+06}$	Th-232	$1{,}405 \cdot 10^{+10}$	Ra-226	$1{,}60 \cdot 10^{+03}$
Rb-87	$4{,}80 \cdot 10^{+10}$	Th-228	$1{,}913 \cdot 10^{+00}$	Pb-210	$2{,}23 \cdot 10^{+01}$
Sr-90	$2{,}864 \cdot 10^{+01}$	Ra-228	$5{,}75 \cdot 10^{+00}$	Po-210	$3{,}789 \cdot 10^{-01}$
Zr-93	$1{,}50 \cdot 10^{+06}$	Cm-245	$8{,}50 \cdot 10^{+03}$	Cm-247	$1{,}56 \cdot 10^{+07}$
Nb-94	$2{,}00 \cdot 10^{+04}$	Pu-241	$1{,}435 \cdot 10^{+01}$	Am-243	$7{,}370 \cdot 10^{+03}$
Mo-93	$3{,}50 \cdot 10^{+03}$	Am-241	$4{,}322 \cdot 10^{+02}$	Pu-239	$2{,}411 \cdot 10^{+04}$
Tc-99	$2{,}10 \cdot 10^{+05}$	Np-237	$2{,}144 \cdot 10^{+06}$	U-235	$7{,}038 \cdot 10^{+08}$
Pd-107	$6{,}50 \cdot 10^{+06}$	Pa-233	$7{,}39 \cdot 10^{-02}$	Pa-231	$3{,}276 \cdot 10^{+04}$
Sn-126	$2{,}345 \cdot 10^{+05}$	U-233	$1{,}592 \cdot 10^{+05}$	Ac-227	$2{,}1773 \cdot 10^{+01}$
I-129	$1{,}57 \cdot 10^{+07}$	Th-229	$7{,}88 \cdot 10^{+03}$	Th-227	$5{,}13 \cdot 10^{-02}$
Cs-135	$2{,}00 \cdot 10^{+06}$	Ra-225	$4{,}05 \cdot 10^{-02}$	Ra-223	$3{,}13 \cdot 10^{-02}$

Für den betrachteten Ausbreitungspfad wird die Vereinfachung vorgenommen, dass der Transport im Kimmeridge nicht betrachtet wird. Dieser Teil des Transportpfads macht nur 5 % der Weglänge aus. Die wesentlichen Aussagen können anhand des Transports durch die Oxfordformation getroffen werden. Ein zusätzlicher Transport durch den Kimmeridge trägt nicht zu einem Erkenntnisgewinn bei. Die folgenden Rechnungen, mit Ausnahme der abschätzenden Rechnungen zu den Eigenkolloiden werden mit dem Transportprogramm COFRAME durchgeführt.

3.2.2.3 Rechenprogramm COFRAME für den kolloidgetragenen Radionuklidtransport

Zur Transportmodellierung wird das Programmpaket RepoTREND (siehe Anhang B) mit den Modulen FRAME und COFRAME /REI 14/, /REI 16a/ eingesetzt.

Ein dreidimensionaler Gesteinskörper kann mit einer Fläche A [m^2] und der Länge L [m] beschrieben werden (siehe Abb. 3.15). In diesem Gesteinskörper kann das Wasser mit einem Volumenstrom Q [$m^3 \cdot a^{-1}$] durch mehrere Klüfte fließen. Jede Kluft hat jeweils die Breite g_i [m] und eine Öffnungsweite 2b [m]. Unter der Annahme, dass alle wasserführenden Klüfte dieselbe Kluftöffnungsweite haben, beträgt die wasserdurchströmte Gesamtfläche $2b \cdot \sum g_i$.

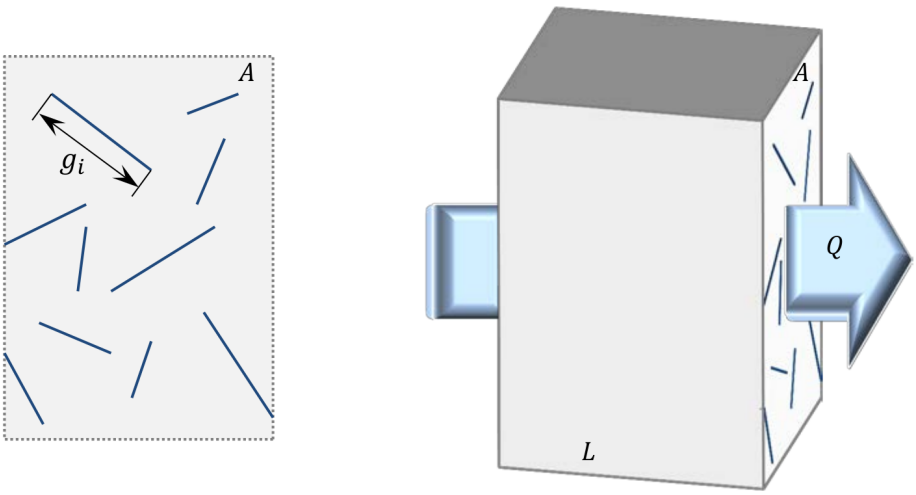

Abb. 3.15 Gesteinskörper mit darin enthaltenen Klüften /REI 14/

Im Strömungsmodell von FRAME / COFRAME werden alle Klüfte des Gesteinskörpers auf eine planare Kluft reduziert (siehe Abb. 3.16). Dazu wird eine Kluft mit einer Länge L [m], Breite $\sum g_i$ und Öffnungsweite von 2b angenommen, wodurch der Volumenstrom Q jenem in allen Klüften entspricht.

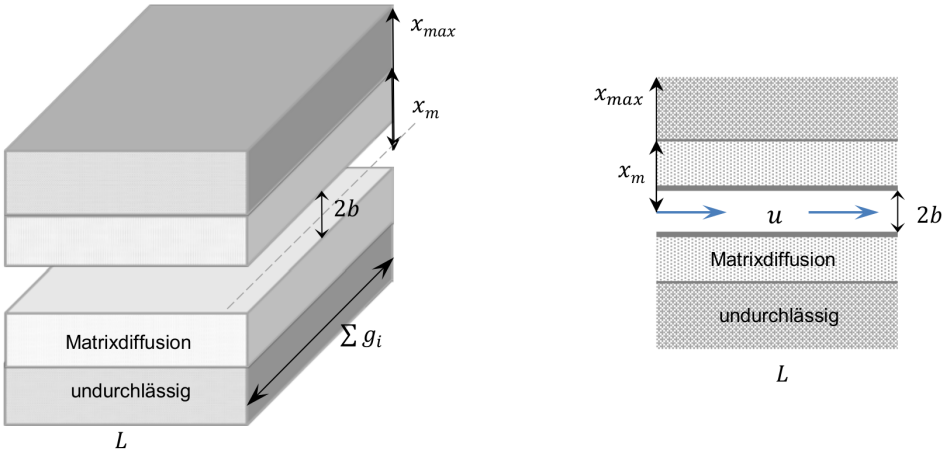

Abb. 3.16 Bestimmung der Modellparameter bei einer planaren Geometrie eines geklüftet-porösen Mediums /REI 14/

Innerhalb der Kluft können die Kolloide und Radionuklide advektiv transportiert werden. Um die Kluft herum befindet sich die Zone der Matrixdiffusion, in der die Transportvorgänge ausschließlich diffusiv möglich sind. Durch eine entsprechende Wahl der Parameter kann der Transport durch ein poröses Medium abgebildet werden. Das wurde in den hier beschriebenen Rechnungen gemacht.

Nach /REI 14/ können im System (siehe Abb. 3.17) Radionuklide in den folgenden Komponenten transportiert werden

- gelöste mobile Radionuklide in der Kluft mit der Konzentration C_{fr} [mol·m^{-3}] (fr für **R**adionuclide in the **F**racture),
- im Porenwasser der Gesteinsmatrix gelöste Radionuklide mit der Konzentration C_{pr} [mol·m^{-3}] (pr für **R**adionuclides in the rock matrix **P**ores),
- an mobilen Kolloiden sorbierte Radionuklide mit der Konzentration C_{cr} [mol·m^{-3}] (cr für **R**adionuclides sorbed on mobile **C**olloids),
- an der Kluftfläche sorbierte Radionuklide mit der Konzentration S_{fr} [mol·m^{-2}],
- an Porenwänden der Gesteinsmatrix sorbierte Radionuklide mit der Konzentration S_{pr} angegeben als Radionuklidmasse pro Masse der trockenen Gesteinsmatrix [mol·kg^{-1}],
- an immobilen Kolloiden sorbierte Radionuklide mit der Konzentration S_{cr} [mol·m^{-2}].

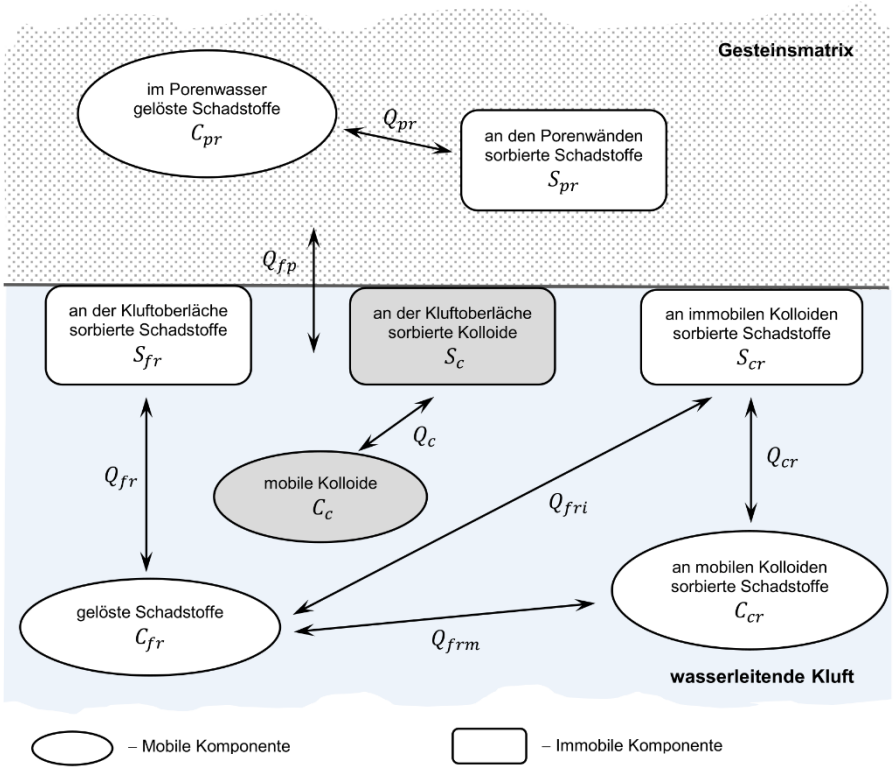

Abb. 3.17 Wechselwirkungen zwischen Radionukliden und Kolloiden in COFRAME /REI 14/, /REI 16a/

Die Kolloide liegen in zwei Komponenten vor:

- mobile Kolloide in der Kluft mit der Konzentration C_c [mol·m^{-3}],
- an der Kluftoberfläche haftende, immobile Kolloide mit der Konzentration S_c [mol·m^{-2}].

Im Modell werden folgende Austauschprozesse berücksichtigt:

- Q_{fr} Sorption von im Wasser der Klüfte gelösten Radionukliden an der Kluftoberfläche,
- Q_c Filtration von Kolloiden an der Kluftoberfläche sowie ihre Remobilisierung,
- Q_{frm} und Q_{fri} Sorption von im Kluftwasser gelösten Radionuklide an den mobilen und immobilen Kolloiden,
- Q_{cr} Filtration und Remobilisierung von den an Kolloiden adsorbierten Radionukliden aufgrund der Wechselwirkungen der Kolloide mit der Kluftoberfläche,
- Q_{pr} Sorption von im Porenwasser der Gesteinsmatrix gelösten Radionukliden an Porenwänden,

- Q_{fp} diffusiver Radionuklidaustausch zwischen der Kluft und der angrenzenden Gesteinsmatrix.

Entsprechend der Benennung der Komponenten und Wechselwirkungen erfolgt auch die Benennung der Verteilungskoeffizienten für die Sorption an den Komponenten.

- K_{fr}* Verteilungskoeffizient in der porösen Gesteinsmatrix [$m^3 \cdot kg^{-1}$],
- K_{fr} Verteilungskoeffizient für die Kluftoberfläche [m],
- K_{frm} Verteilungskoeffizient für an mobilen Kolloiden sorbierte Radionuklide [$m^3 \cdot kg^{-1}$] und
- K_{fri} Verteilungskoeffizient für an filtrierten Kolloiden sorbierte Radionuklide [$m^3 \cdot kg^{-1}$].

Zur Berechnung der kinetischen Radionuklidsorption sind ebenfalls Austauschraten definiert

- k_{fr} Austauschrate der kinetischen Radionuklidsorption an der Kluftoberfläche bzw. an der Gesteinsmatrix [a^{-1}],
- k_{frm} Austauschrate der kinetischen Radionuklidsorption an mobilen Kolloiden [a^{-1}] und
- k_{fri} Austauschrate der kinetischen Radionuklidsorption an filtrierten Kolloiden [a^{-1}].

3.2.2.4 Ableitung der Modellparameter

Für die Modellrechnungen wird der Quellterm der Radionuklide aus der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad zugrunde gelegt (siehe Anhang A.1).

Für den vereinfachten Transportpfad durch den Oxford werden im Folgenden die Eingangsparameter diskutiert und festgelegt. Die Transportparameter sind in Tab. 3.5 aufgelistet, Wechselwirkungsparameter der Kolloide in Tab. 3.6 und Verteilungskoeffizienten zur Wechselwirkung der Radionuklide mit der Gesteinsmatrix und Zementkolloiden in den Tabellen Tab. 3.7 und Tab. 3.8.

Tab. 3.5 Transportparameter für den vereinfachten Ausbreitungsweg Ib (Oxford)

Parameter	Wert
Transportweglänge [m]	31.500
Querschnitt [m^2]	675.000

Parameter	Wert
Kluftapertur [m]	Nicht angewandt für poröses Medium
Kluftporosität	Nicht angewandt für poröses Medium
Klufthäufigkeit [m^{-1}]	Nicht angewandt für poröses Medium
Eindringtiefe [m]	Nicht angewandt für poröses Medium
Diffusionskoeffizient in der Kluft [m^2/s]	(RN) / (Kolloide)
Volumenstrom [m^3/a]	1620
Einstrom aus dem Nahbereich [m3/a]	-
Kolloidkonzentration am Eingang des Transportpfads [kg/m^3]	10^{-4}
Porosität (für Transport) [-]	0,02
Gesteinsdichte [kg/m^3]	2600
Molekularer Diffusionskoeffizient [m^2/a]	10^{-11} (RN) / 10^{-11} (Kolloid)
Dispersionslänge [m]	200

Tab. 3.6 Wechselwirkungsparameter für die Radionuklide mit Kolloiden und der Gesteinsmatrix

Parameter	Wert
Kolloidfiltrationsrate [a^{-1}] bzw. Kolloidfiltrationskoeffizient [m^{-1}]	Variiert: $2.4 \cdot 10^{-6}$ - $2.4 \cdot 10^{-4}$
Remobilisierungsrate [a^{-1}]	Nicht verwendet
Verteilungskoeffizient für Radionuklide an Kolloiden K_{frm}, K_{fri} [m^3/kg]	s. Tab. 3.8
Sorptionsrate für Radionuklide an Kolloiden k_{frm}, k_{fri} [a^{-1}]	Variiert: 10^{-6} - 10^{-3}
Verteilungskoeffizient für Radionuklide am Gestein K_{fr}* [m^3/kg]	s. Tab. 3.7
Sorptionsrate für Radionuklide am Gestein k_{fr} [a^{-1}]	10^6

Tab. 3.7 Vorgeschlagene Verteilungskoeffizienten K_{fr}*(m^3/kg) zur Wechselwirkung der Radionuklide mit der Gesteinsmatrix /STO 86/

Bei Elementen, für die mehrere Werte angegeben sind, wurden diese in der LZSA in Abhängigkeit von der Verdünnung des Grundwassers verwendet (vgl. Tab. 5-12 in /STO 86/).

Element	Verteilungskoeffizient K_{fr}* (m^3/kg)
Tc	$7 \cdot 10^{-4}$
Se	$1 \cdot 10^{-4}$
Zr	0,07, 1
Nb	1

Cs	0,03
I	0
C	$2 \cdot 10^{-4}$
Sr	0
Np	0,03
Pu	0,5, 1, 1
Am/Cm	0,5, 1, 1
U	$1{,}8 \cdot 10^{-3}$, $2 \cdot 10^{-3}$, $3 \cdot 10^{-3}$
Ra	$1{,}6 \cdot 10^{-3}$
Ni	$7 \cdot 10^{-4}$, $2 \cdot 10^{-3}$, $3 \cdot 10^{-3}$
Th	0,07, 0,07, 1
Pa	$1 \cdot 10^{-3}$

Tab. 3.8 Vorgeschlagene Verteilungskoeffizienten K_{frm}, K_{fri} (m^3/kg) für die Sorption an Zementkolloiden unter reduzierenden Bedingungen; 20-fach erhöhter K_d-Wert für Kolloide aufgrund größerer spezifischer Oberfläche /WIE 02/.

Element	Verteilungskoeffizient K_{frm}, K_{fri} (m^3/kg)
Tc	20
Se	0,6
Zr	200
Nb	20
Cs	0,1
I	0,02
Np	2000
Pu	2000
Am/Cm	2000
U	2000
Ra	2
Th	2000
Pa	2000

3.2.2.5 Ergebnisse

Zuerst wird als Referenz eine Transportrechnung ohne Kolloide durchgeführt. Anschließend werden Rechnungen mit Kolloiden durchgeführt. Dabei werden insbesondere die Wechselwirkungsraten zwischen Radionukliden, Kolloiden und der Gesteinsmatrix variiert. Ein relevanter Einfluss von Kolloiden auf den Radionuklidtransport, der zu einer Erhöhung der Konzentrationen am Ende des Transportwegs und damit zu einer Erhöhung der Dosis führen kann, ist nur dann zu erwarten, wenn die Kolloide sehr mobil sind und

zusätzlich ein erheblicher Anteil der Radionuklide auf Kolloiden transportiert wird. Dieser Anteil wird insbesondere durch die Wechselwirkungsparameter bestimmt. Hinsichtlich der Verteilungskoeffizienten wird für die Gesteinsmatrix auf die in der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad verwendeten Werte zurückgegriffen /STO 86/. Für die Sorption an Kolloiden werden die in /WIE 02/ abgeleiteten Werte für Zementkolloide verwendet.

3.2.2.5.1 Referenzfall ohne Kolloide

Die Ergebnisse für den Referenzfall ohne Kolloide sind als Durchbruchskurve für die dosisrelevanten Radionuklide in Abb. 3.18 dargestellt. Die Transportzeiten sind etwas kürzer und die Konzentrationen im Vergleich zur LZSA /STO 86/ geringfügig höher, da wie oben beschrieben, der Anteil des Transportwegs im Kimmeridge nicht berücksichtigt ist. Der erste Peak zum Zeitpunkt von etwa 250.000 Jahren wird durch die nicht sorbierenden Radionuklide I-129 und Cl-36 bestimmt. Der Transport der Uranisotope dauert etwa 10^7 Jahre ($K_d = 2 \cdot 10^{-3}$ m^3/kg). Die Tochterisotope der anderen Actiniden-Elemente werden durch das transportierte Uran gebildet und gelangen deshalb innerhalb von 10^7 Jahren an das Ende des Transportwegs. In Abb. 3.18 ist das beispielhaft für die Tochterisotope Th-230 und Ra-226 dargestellt, die aus den Mütterisotopen von U-238 und U-234 gebildet werden. Bei einem K_d-Wert von 0,05 m^3/kg werden mehrere 10^8 Jahre benötigt. Entsprechend sind die Actiniden, die in den Zerfallsreihen über den Uranisotopen stehen, nicht sichtbar, da die Transportzeit von ca. 10^{10} Jahren zu erwarten ist.

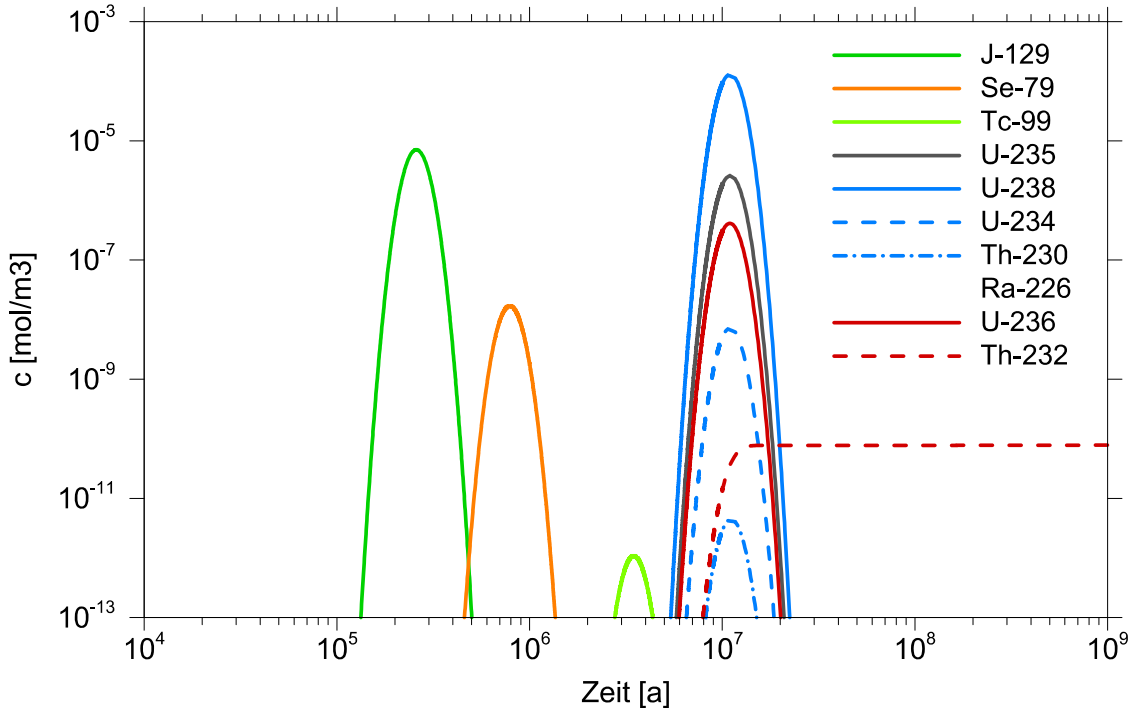

Abb. 3.18 Konzentrationen von Spalt- und Aktivierungsprodukten und Radionukliden der Zerfallsreihen mit Uranisotopen als Mutternukliden für Rechnung ohne Kolloideinfluss

Einige der in Tab. 3.4 farblich markierten Radionuklide liegen außerhalb der dargestellten Skala oder haben ein so geringes Inventar, dass deren Transport in der LZSA nicht berechnet wurde. Diese Radionuklide sind hier nicht dargestellt. Zusätzlich wird J-129 als für die LZSA wichtiges Radionuklid dargestellt, für das kein Einfluss der Kolloide erwartet wird.

3.2.2.5.2 Transport von Kolloiden

Eine entscheidende Bedingung für die Verstärkung des Radionuklidtransports durch Kolloide ist eine hohe Mobilität der Kolloide entlang des Transportwegs. Die Mobilität wird reduziert durch die Rückhaltung bzw. Filtration an der Gesteinsmatrix oder auch durch Sedimentation der Kolloide. Im hier verwendeten Code COFRAME werden diese Prozesse, sofern sie irreversibel sind, unter dem Prozess der Kolloidfiltration zusammengefasst. Aufgrund der relativ hohen Salzgehalte der Konradwässer und der hohen Konzentration an Ca^{2+} in Lösung wird, wie in Kapitel 3.2.1.4 beschrieben und in Experimenten beobachtet, eine Koagulation mit Sedimentation der Kolloide in einigen 100 Stunden erwartet. Dies entspräche einer Filtrationsrate im Bereich deutlich oberhalb von 1 a^{-1}. Für Bentonit-Kolloide wurden selbst in einem sehr gering mineralisierten Grundwasser aus Feldexperimenten im Felslabor Grimsel Filtrationsraten im Bereich

von 50 a^{-1} abgeleitet /NOS 16/. Abb. 3.19 zeigt Modellrechnungen zur Kolloidfiltration für die extrem langen Transportwege am Standort Konrad. Erst bei Filtrationsraten $<10^{-5}$ a^{-1} sind Kolloide mobil und werden in ihrer Konzentration entlang des Transportwegs nur geringfügig reduziert. Eine Filtrationsrate von $2{,}4 \cdot 10^{-5}$ a^{-1} reduziert die Konzentration während des Transports um mehr als zwei Größenordnungen. Als Fazit aus diesen Rechnungen ergibt sich, dass eine Mobilität der Kolloide unter den Bedingungen der sehr langen Transportwege und -zeiten nicht zu erwarten ist, Kolloide also eher zur Rückhaltung und nicht zu einem verstärkten Transport der Radionuklide beitragen.

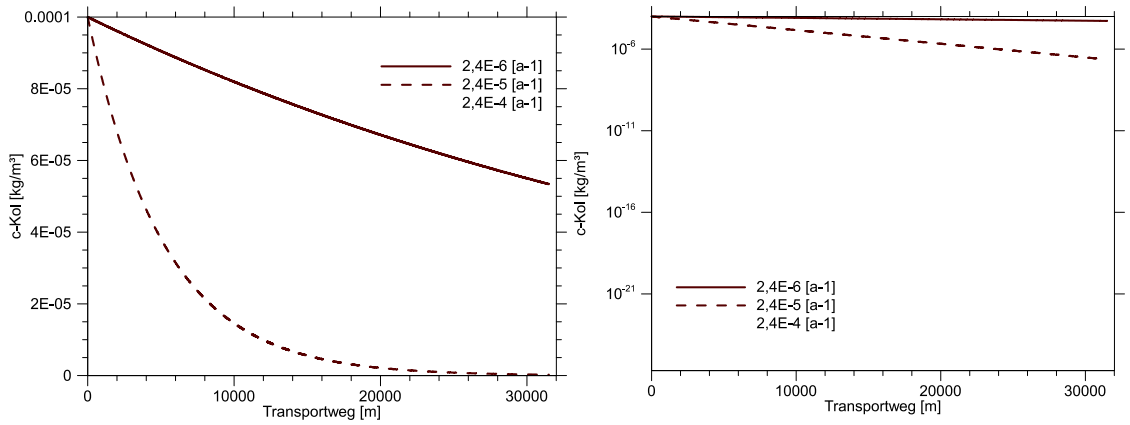

Abb. 3.19 Einfluss der Kolloidfiltration auf den Kolloidtransport. Verteilung der Kolloidkonzentration entlang des Transportwegs der Kolloidfiltrationsrate: lineare (links) und logarithmische Darstellung (rechts)

3.2.2.5.3 Rechenfall mit Kolloiden – Gleichgewichtsbedingung

Die folgenden Rechnungen dienen dem Systemverständnis. Dafür wurde von mobilen Kolloiden ausgegangen, also keine Kolloidfiltration angenommen. Gleichgewichtsbedingungen zwischen den Sorptionsreaktionen an Kolloiden und Gesteinsmatrix können prinzipiell über hohe Ad-/Desorptionsraten (10^6 a^{-1}) realisiert werden. Parametervariationen haben gezeigt, dass bei den langen Transportzeiten von 250.000 Jahren schon geringe Ad-/Desorptionsraten von 10^{-3} a^{-1} ausreichen, um Gleichgewichtsbedingungen zu erreichen.

Das wesentliche Ergebnis der Rechnung ist, dass sich die Durchbruchskurven gegenüber der Rechnung ohne Kolloide nicht unterscheiden, vgl. Abb. 3.20. Einzig die Peaks der Uran-Isotope und Tochternuklide sind geringfügig zu niedrigeren Zeiten gegenüber

Abb. 3.18 ohne Kolloide verschoben, was aber keinen Einfluss auf die Maximalkonzentrationen der Kurven hat. Die Unterschiede in den Kurven für freie und kolloidgebundene Radionuklide zeigt auch die Unterschiede in den Sorptionswerten der Radionuklide an den Kolloiden, vgl. Tab. 3.8. Bei hohen Sorptionswerten wie für die Isotope des Urans und Thoriums sind die Kurvenmaxima ähnlich hoch, während bei den schwach an die Kolloide gebundenen Radionukliden I-129, Se-79, Tc-99 und Ra-226 die Kurvenmaxima der freien Radionuklide um Größenordnungen über denen der kolloidgebundenen Maxima liegen. Kurven der Actiniden, die keine Tochternuklide von Uranisotopen darstellen, sind mit Ausnahme von Th-232 auf dieser Skala wiederum nicht sichtbar, da sie während des Transports zerfallen sind.

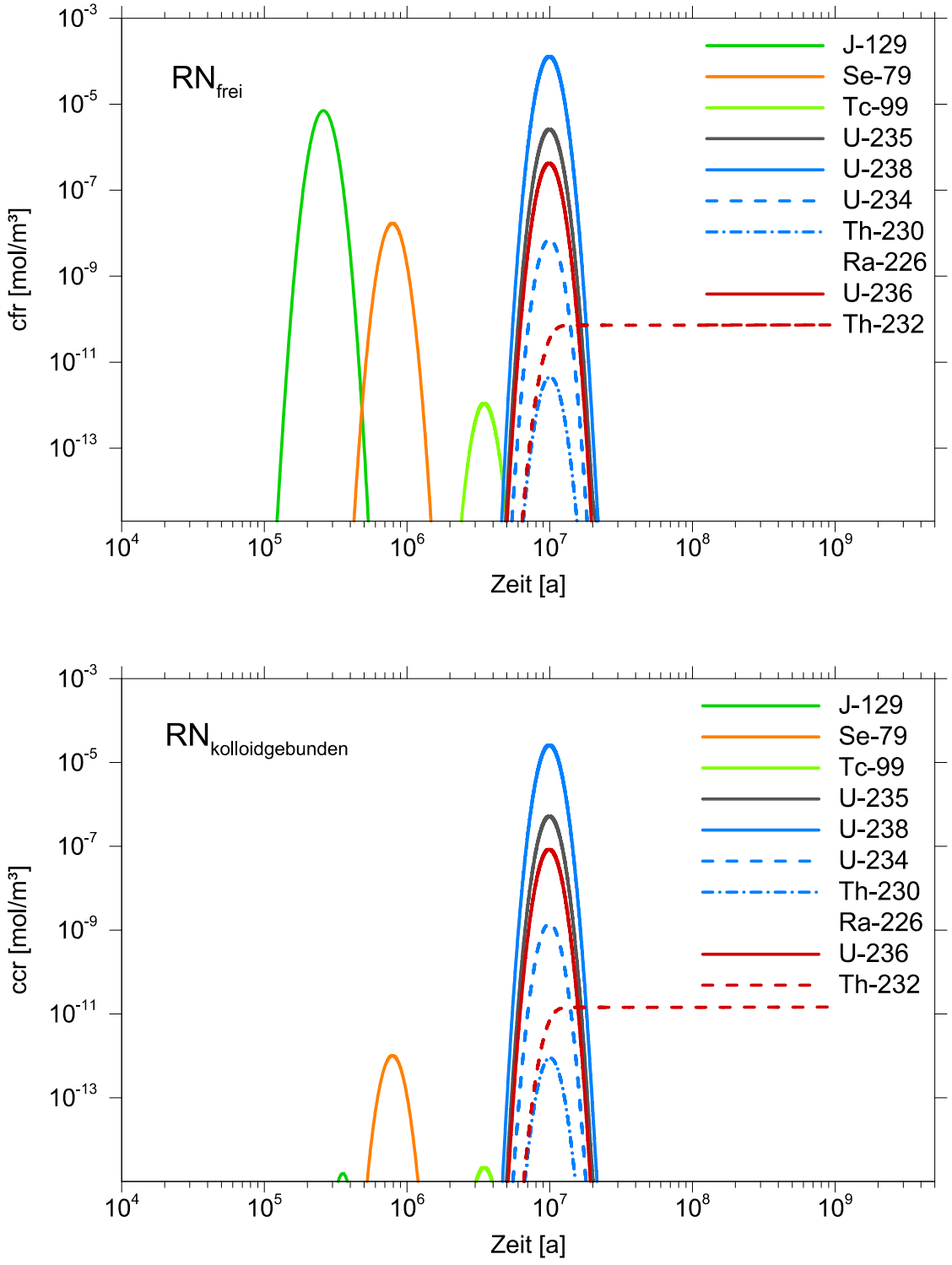

Abb. 3.20 Konzentrationen von Spalt- und Aktivierungsprodukten und Radionukliden der Zerfallsreihen mit Uranisotopen als Mutternukliden für Rechnung unter Gleichgewichtsbedingungen. Freie Radionuklide (oben), kolloidgebundene Radionuklide (unten)

cfr = Konzentration freier Radionuklide; ccr = Konzentration kolloidgebundener Radionuklide

3.2.2.5.4 Rechenfälle mit Reaktionskinetik

Spalt-/ Aktivierungsprodukte und Uran- und Tochter- Isotopen

Die hier durchgeführten Rechnungen dienen dazu, Parameterbereiche zu identifizieren, unter denen ein signifikanter Beitrag von Kolloiden auf den Radionuklidtransport unter den Bedingungen am Standort Konrad zu erwarten wären. Diese Parameterbereiche werden anschließend mit den aus Feld- und Laborexperimenten bzw. anderen Überlegungen erhaltenen wahrscheinlichen Werten verglichen und daraus die Relevanz von Kolloiden im Endlagersystem Konrad abgeleitet.

Für den ersten Satz an Rechnungen wird wieder davon ausgegangen, dass die Kolloide mobil sind und nicht filtriert werden. Variiert wird die Ad-/Desorptionsrate der Radionuklide von / an die Kolloide. Außerdem wird immer angenommen, dass die Radionuklide vollständig initial an die Kolloide gebunden sind. Unter diesen Bedingungen ist zu erwarten, dass bei sehr geringen Ad-/Desorptionsraten die Radionuklide fest an die Kolloide gebunden sind und diese dann sehr viel schneller durch das Modellgebiet transportiert werden als ohne Kolloide. Die Parametervariationen dienen dazu, diesen Wertebereich zu identifizieren.

Abb. 3.21 zeigt die Ergebnisse für Ad-/Desorptionsraten von 10^{-4} a^{-1}. Hier erkennt man im Vergleich zu den Gleichgewichtsbedingungen einen ersten geringen Einfluss, nämlich eine beginnende Verbreiterung der Durchbruchskurven der Uran- und Tochterisotope hin zu geringeren Transportzeiten. Diese Verbreiterung ist verursacht durch einen geringen Einfluss von schneller transportierten kolloidgetragenen Radionukliden. Eine Auswirkung auf die Maxima der Kurven ist nicht zu beobachten.

Die Actiniden, die nicht durch Zerfall von Uranisotopen entstehen, sind auf dieser Skala wiederum nicht sichtbar.

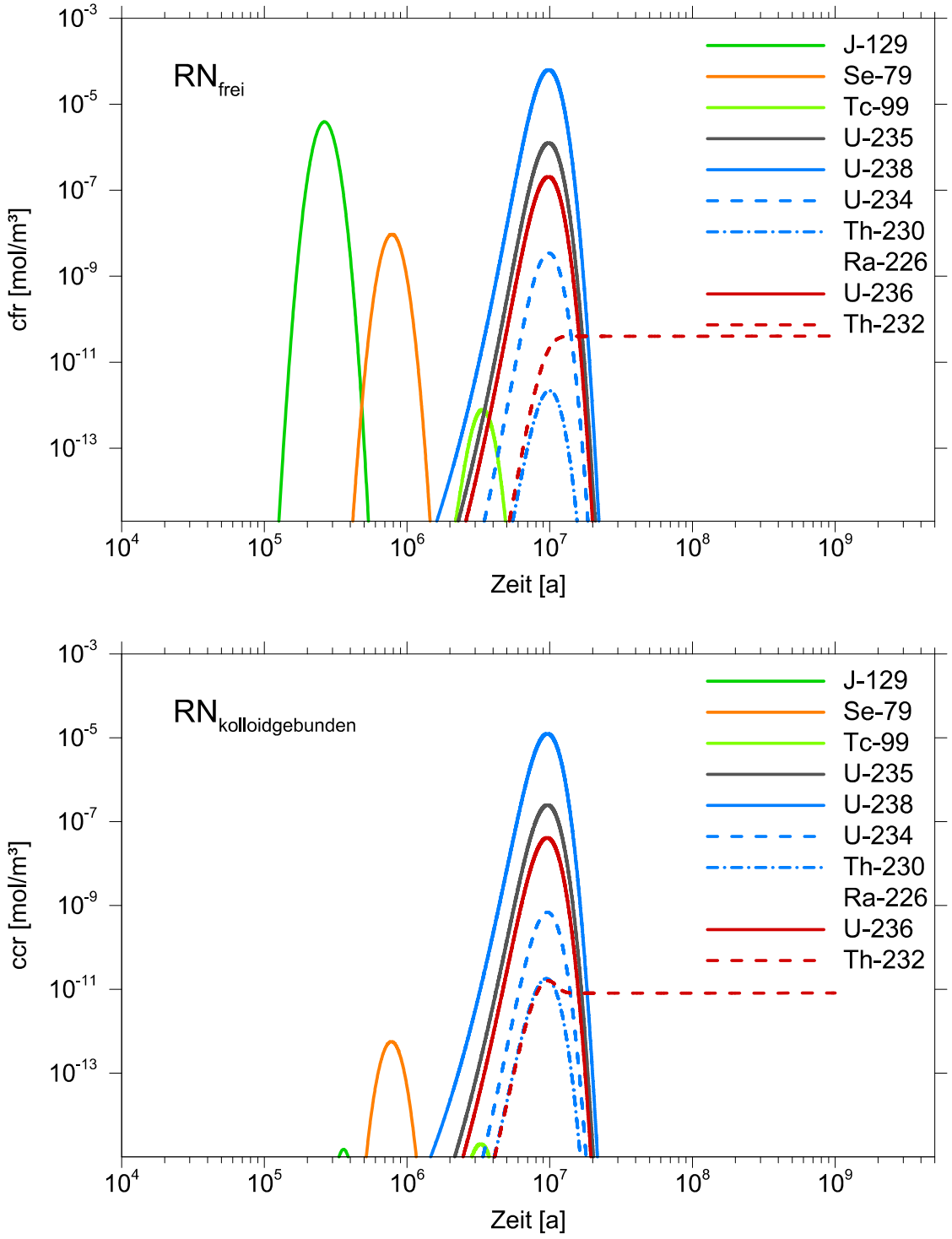

Abb. 3.21 Konzentrationen von Spalt- und Aktivierungsprodukten und Radionukliden der Zerfallsreihen mit Uranisotopen als Mutternukliden für Rechnung mit Reaktionskinetik. Ad-/Desorptionsrate = 10^{-4} a^{-1}. Freie Radionuklide (oben), kolloidgebundene Radionuklide (unten)

cfr = Konzentration freier Radionuklide; ccr = Konzentration kolloidgebundener Radionuklide

Bei einer um eine weitere Größenordnung abgesenkten Ad-/Desorptionsrate von 10^{-5} a^{-1} treten deutliche Veränderungen in den Durchbruchskurven auf, s. Abb. 3.22. Die Durchbruchskurven für die freien Radionuklide (Uran- und Tochterisotope) verbreitern sich deutlich zu kürzeren Transportzeiten. Dieser Effekt ist noch ausgeprägter für die kolloidgetragene RN-Fraktion. Hier bilden sich nach 250.000 Jahren Peaks aus, d.h. ein signifikanter Anteil dieser Isotope wird mit den Kolloiden so schnell wie das Fluid transportiert. Die Erklärung ist, dass aufgrund der geringen Desorptionsrate ein großer Teil der initial kolloidgebundenen Radionuklide bis zum Ende des Transportwegs auf den mobilen Kolloiden gebunden bleibt und nicht desorbiert. Ein Anteil der Radionuklide desorbiert während des Transports und wird an der Gesteinsmatrix sorbiert. Die zu einem frühen Zeitpunkt desorbierten Radionuklide bilden bei ca. 10^7 Jahren einen Peak aus, der dem nichtkolloidgetragenen Transport des Urans entspricht. Zwischen beiden Peaks bildete sich ein Plateau aus, dass durch die anhaltende Desorption und anschließende Sorption der Uranisotope (und ihrer Tochterisotope) während des Transports gespeist wird.

Generell liegen die Maximalkonzentrationen der Uranisotope trotz des früheren Auftretens nicht oberhalb der Maxima im Referenzfall. Für Th-232 steigt die Maximalkonzentrationen allerdings erheblich an. Grund dafür ist, dass nicht nur das durch U-236 gebildete, sondern auch das im Endlager vorhandene Th-232 durch Kolloide schneller transportiert wird und damit zu dem Konzentrationsmaximum zu frühen Zeiten beiträgt.

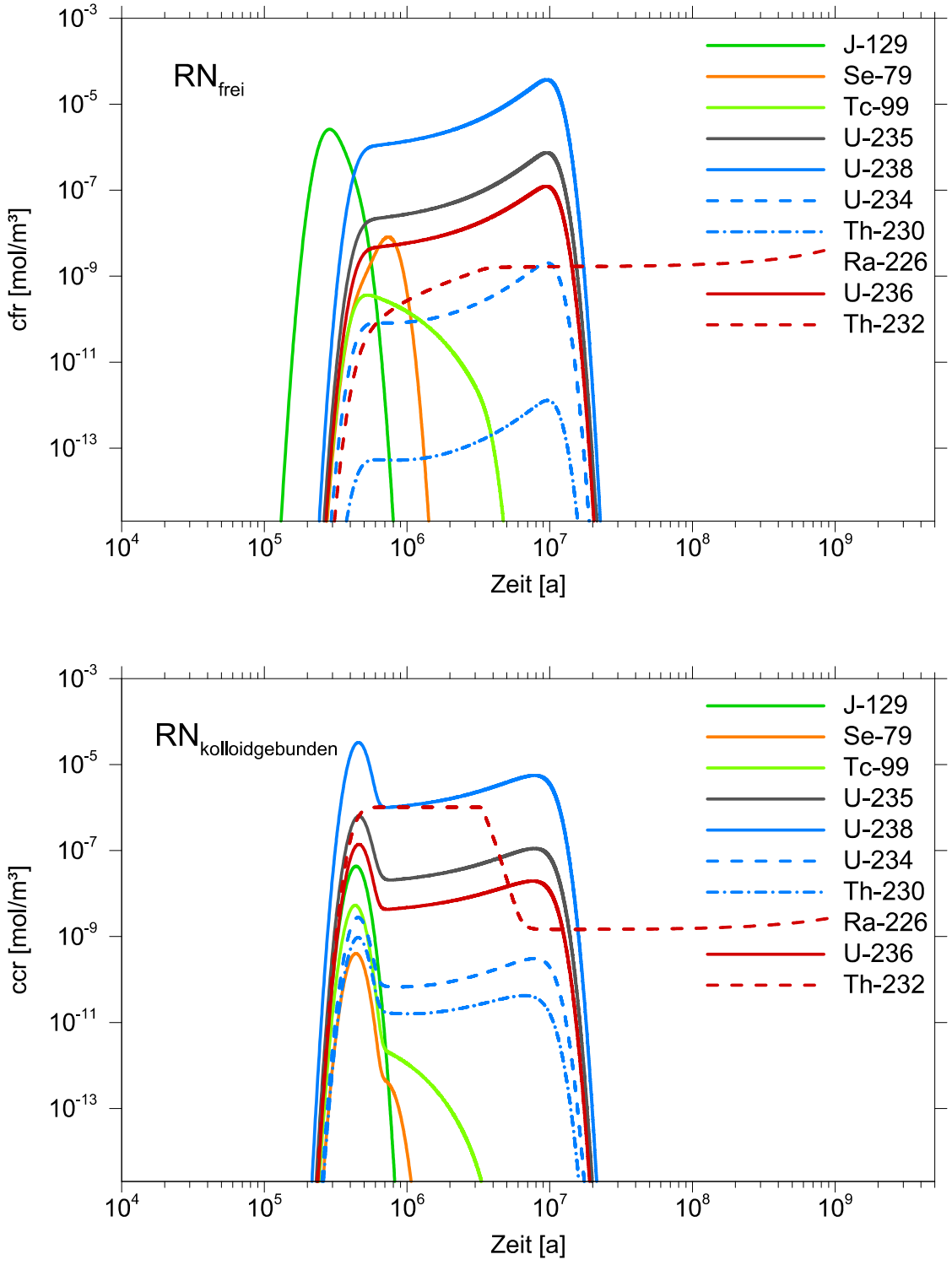

Abb. 3.22 Konzentrationen von Spalt- und Aktivierungsprodukten und Radionukliden der Zerfallsreihen mit Uranisotopen als Mutternukliden für Rechnung mit Reaktionskinetik. Ad-/Desorptionsrate = 10^{-5} a^{-1}. Freie Radionuklide (oben), kolloidgebundene Radionuklide (unten)

cfr = Konzentration freier Radionuklide; ccr = Konzentration kolloidgebundener Radionuklide

Actiniden, die nicht durch den Transport von Uranisotopen beeinflusst werden

Im vorangegangenen Abschnitt wurde das Verhalten der schwach sorbierenden Spalt und Aktivierungsprodukte sowie der relativ schwach sorbierenden Uranisotope und Tochternuklide diskutiert. Im Folgenden wird auf das Verhalten der Actiniden, die oberhalb des Urans in den Zerfallsreihen stehen und dadurch nicht durch den Transport der Uranisotope beeinflusst werden, eingegangen. Diese Isotopen sind auf den im vorangegangenen Kapitel dargestellten Skalen nicht zu sehen, da sie aufgrund ihrer starken Sorption und dadurch bedingten, extrem langen Transportzeiten nahezu vollständig zerfallen, bevor sie das Ende des Transportweges erreichen. In Abb. 3.23 sind nun die Konzentrationsverläufe der kolloidgebundenen Fraktion in Abhängigkeit der variierten Desorptionsrate dargestellt. Zur Illustration wurde eine logarithmische Darstellung der Konzentration über sehr viele Größenordnungen gewählt.

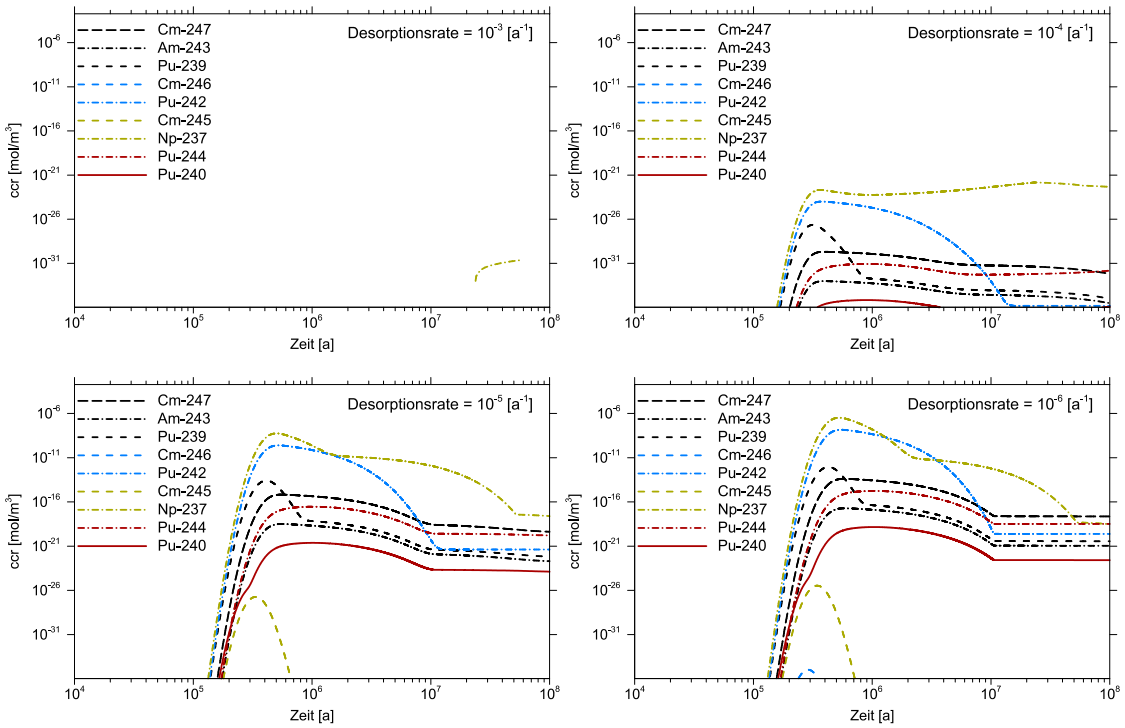

Abb. 3.23 Konzentrationen der kolloidgebundenen Fraktion von Isotopen der Actiniden, die keine Tochterisotope von Uranisotopen darstellen für die Rechnung mit Reaktionskinetik. Die Ad-/Desorptionsrate wurde zwischen 10^{-3} a^{-1} und 10^{-6} a^{-1} variiert

ccr = Konzentration kolloidgebundener Radionuklide

Wie in Kapitel 3.2.2.5.3 beschrieben, entspricht eine Desorptionsrate von 10^{-3} a^{-1} Gleichgewichtsbedingungen und unterscheidet sich nicht von den Rechnungen ohne Kolloide. Unter diesen Bedingungen kann man nur eine Kurve von Np-237 bei vernachlässigbar kleinen Konzentrationen sehen. Np-237 hat einen vergleichsweise niedrigen Verteilungskoeffizienten von 0,03 m^3/kg. Die Cm-, Am- und Pu-Isotope haben viel höhere K_d-Werte von 0,5 bis 1 m^3/kg. Bei einer Desorptionsrate von 10^{-4} a^{-1} sind Durchbruchskurven der Cm-, Am- und Pu-Isotope sichtbar, allerdings nur bei vernachlässigbar niedrigen Konzentrationen. Erst bei einer Erniedrigung der Desorptionsrate um eine weitere Größenordnung auf 10^{-5} a^{-1} steigen die Konzentrationen weiter an und erreichen für Np-237 und Pu-242 Werte oberhalb 10^{-11} mol/m^3. Bei einer Desorptionsrate von 10^{-6} a^{-1} steigen die Konzentrationen weiter an, die Kurvenformen verändern sich allerdings nicht mehr.

Diese Rechnungen sollen zum Systemverständnis beitragen und zeigen, dass ein signifikanter Einfluss von Kolloiden auf die Durchbruchskurven der Radionuklide am Standort Konrad nur bei sehr kleinen Desorptionsraten der Radionuklide von den Kolloiden und dem Vorhandensein von sehr mobilen Kolloiden stattfinden kann. Beides ist am Standort Konrad nicht zu erwarten. Typische Desorptionsraten, die beispielsweise in Labor- und Feldexperimenten am Standort Grimsel für Bentonit-Kolloide ermittelt wurden, liegen im Bereich von 10 –100 a^{-1}. Eine Langzeitstabilität und damit verbundene hohe Mobilität der Kolloide ist aufgrund der hohen Ionenstärken und der hohen Ca^{2+}-Konzentration im Konrad-Formationswasser ebenfalls unwahrscheinlich.

3.2.2.6 Rechnungen zu Eigenkolloiden

Zusätzlich zu betrachten sind Eigenkolloide der Radionuklide, die bei vierwertigen Radionukliden auftreten können, vgl. Kapitel 3.2.1.3. Diese bestehen aus reinen Phasen und können die Konzentration der Radionuklide in Lösung (Löslichkeit) erhöhen. Es ist zu erwarten, dass sich die Eigenkolloide an Mineraloberflächen anlagern, die Wechselwirkung sich aber möglicherweise gegenüber gelösten Spezies unterscheidet. Zur Sorption und Filtration der Eigenkolloide existiert bisher aber kein experimenteller Nachweis. Ebenso wird derzeit angenommen, dass Eigenkolloide nur in Anwesenheit der Festphase des jeweiligen Actinids stabil sind, also nur existieren, wenn die Festphase im System vorhanden ist. Das ist nur im Bereich der Abfälle oder in der Nähe des Grubengebäudes zu erwarten. Dies sind die einzigen Bereiche, wo es zur Ausfällung von Festphasen kommen kann. Bisher fehlen experimentelle Nachweise, ob Eigenkolloide auch dann existieren können, wenn keine Festphase vorhanden ist (s. Kap. 3.2.1.3).

Um die potenziellen Auswirkungen von Eigenkolloiden auf die Ergebnisse der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad zu überprüfen, wurden Modellrechnungen mit dem Modul COFRAME des Programmpakets RepoTREND durchgeführt (siehe Anhang B). Aufgrund der fehlenden Belege hinsichtlich der Stabilität und Rückhaltung der Eigenkolloide an Mineraloberflächen wurden bei diesen Rechnungen sehr konservative Annahmen für das Nahfeld gemacht. Für alle Radionuklide wurde eine um zwei Größenordnungen erhöhte Löslichkeit angenommen, und postuliert, dass sie im Nahbereich nicht sorbieren. Damit wurde in konservativer Weise der Fall abgedeckt, dass Eigenkolloide eine erhöhte Mobilität gegenüber den gelösten Komplexen aufweisen. Für den Transport im Fernfeld wurden die Sorptionswerte der gelösten Spezies beibehalten, da es als unwahrscheinlich angesehen wird, selbst wenn die Eigenkolloide ohne Festkörperphase existieren können, dass sie entlang des Transportwegs von mehr als 30 km über Zeiträume deutlich größer als 100.000 Jahre stabil sind.

Die Ergebnisse sind in Abb. 3.24 für ausgewählte Radionuklide als Freisetzungsraten aus dem Nahfeld dargestellt. Für die drei dargestellten Radionuklide Th-232, U-238 und Pu-239 ergibt sich ein qualitativ ähnliches Bild. Bei den Rechnungen ohne Sorption steigen die Aktivitätsströme je nach Radionuklid um ein bis drei Größenordnungen an, was dazu führt, dass die Freisetzung aus dem Nahfeld sehr viel früher erfolgt.

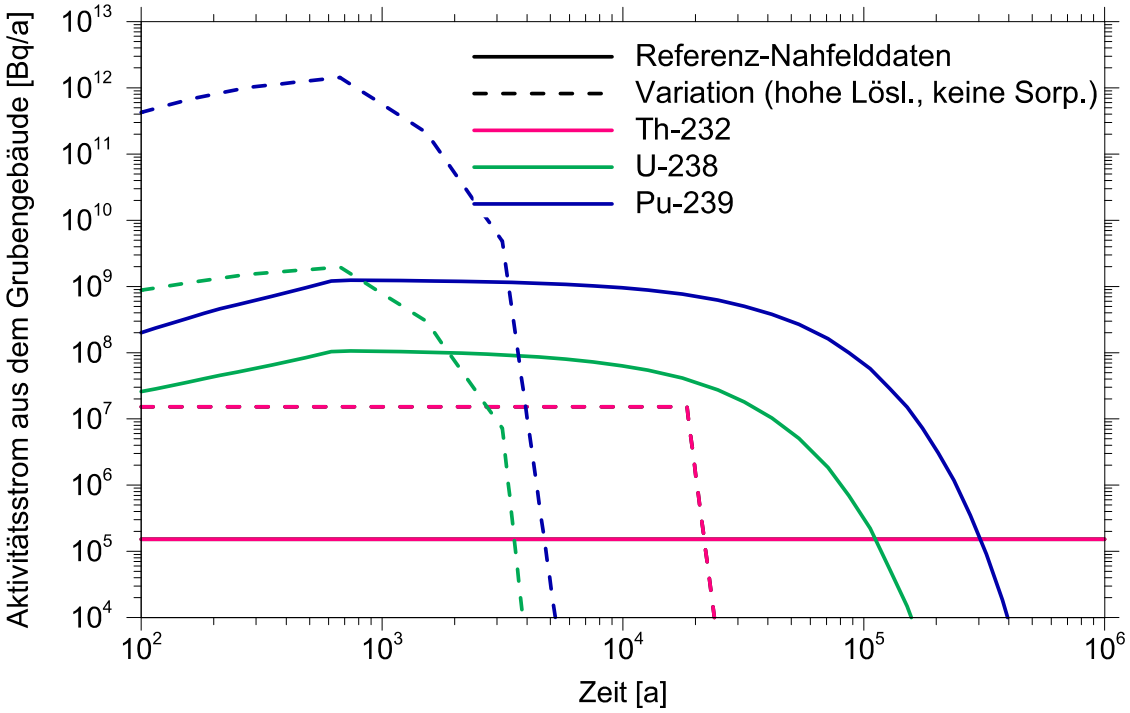

Abb. 3.24 Aktivitätsstrom aus dem Grubengebäude für ausgewählte Radionuklide, die in vierwertiger Form auftreten können. Die Rechnungen wurden mit den Referenz Nahfelddaten und für Varianten mit hoher Löslichkeit und ohne Sorption im Nahfeld durchgeführt.

In Abb. 3.25 sind für den Referenzfall und die Variationsrechnung mit erhöhter Löslichkeit ohne Sorption die Kurven für die Summendosis dargestellt. Hier erkennt man, dass die für das Nahfeld gemachten Annahmen keine Auswirkungen auf die Summendosis haben.

Demnach konnte selbst für die sehr konservativen Annahmen kein Einfluss der Eigenkolloide auf die Langzeitsicherheit gefunden werden. Aufgrund des sehr langen Transportwegs und der sehr langen Transportzeiten, wirkt sich eine frühere Freisetzung mit einer erhöhten Freisetzungsrate nicht auf die Durchbruchskurven am Ende des Freisetzungspfades aus.

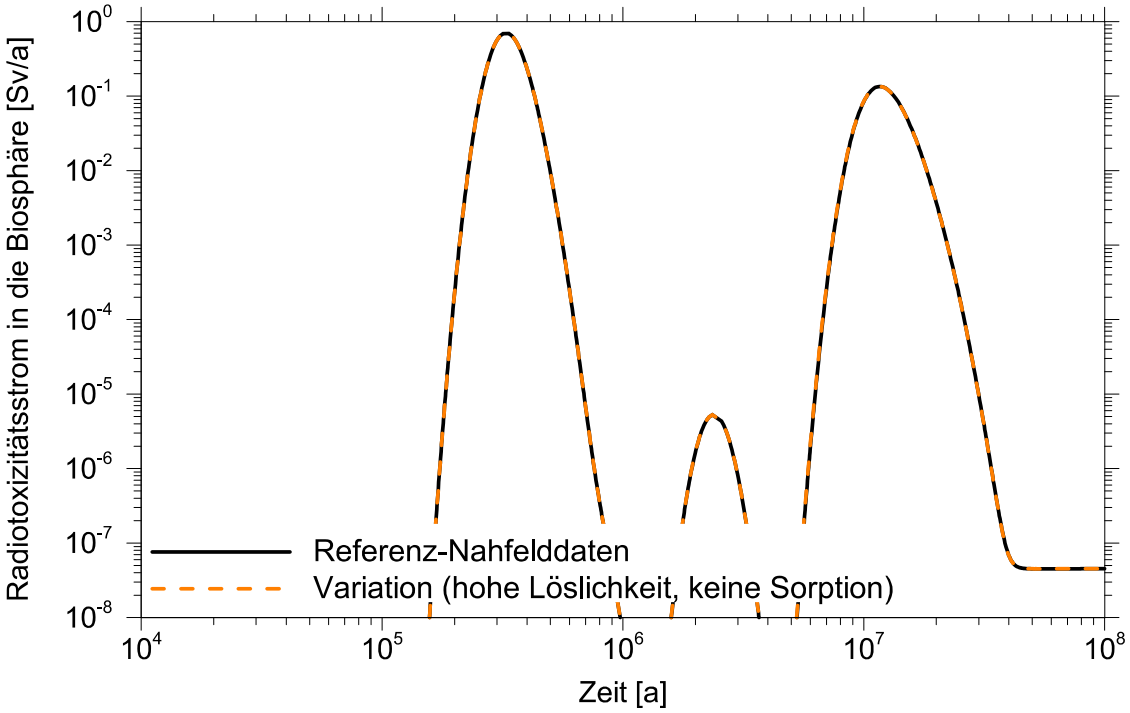

Abb. 3.25 Summendosis für die Rechnungen zum Oxford-Pfad für Rechnungen mit den Referenz Nahfelddaten und der Variation mit hoher Löslichkeit und ohne Sorption im Nahfeld

3.2.2.7 Fazit zu den Modellrechnungen

Es wurden Modellrechnungen mit dem von der GRS entwickelten Programmpaket RepoTREND /REI 16/ zum kolloidgebundenen Radionuklidtransport durchgeführt, in welchen anhand von Parametervariationen speziell zu den kinetischen Parametern für die Kolloidfiltration und Desorption der Radionuklide von den Kolloiden überprüft wurde, unter welchen Bedingungen der kolloidgetragene Transport von Bedeutung ist. Modellrechnungen wurden für den kolloidgebundenen Radionuklidtransport im Oxford entlang des Oxford-Pfads durchgeführt. Es wurde angenommen, dass sich die Kolloide im Nahbereich aus der Zementmatrix der Abfälle, in denen die Radionuklide fixiert sind, bilden. Es ist dann davon auszugehen, dass die Radionuklide initial kolloidgebunden vorliegen.

Die wesentliche Aussage aus den Parametervariationsrechnungen ist in Abb. 3.26 illustriert. Signifikant schnellere Transportzeiten der kolloidgebundenen Radionuklide und damit ggf. auch höhere Konzentrationen am Ende des Transportpfades könnten sich nur dann einstellen, wenn die Desorptionsrate der initial an den Kolloiden sorbierten Radionuklide sehr klein ($< 10^{-4}$ a^{-1}) und gleichzeitig die Filtrationsrate für die Kolloide extrem

klein wäre (< 10^{-4} a^{-1}), vgl. rotes Feld in Abb. 3.26. In diesem Fall würde ein großer Anteil der Radionuklide, an die Kolloide gebunden, sehr schnell durch das Modellgebiet transportiert. Entsprechend der durchgeführten Literaturrecherche zur Stabilität/Filtration der Kolloide wie auch zur Desorption der Radionuklide von den Kolloiden werden für die Bedingungen am Standort Konrad (speziell für die hohen Ionenstärken) minimale Filtrations- und Desorptionsraten im Bereich oberhalb 1 a^{-1} abgeleitet, also vier Größenordnungen höher. Das ist in Abb. 3.26 anhand der blauen Linie bzw. des blauen Ovals dargestellt.

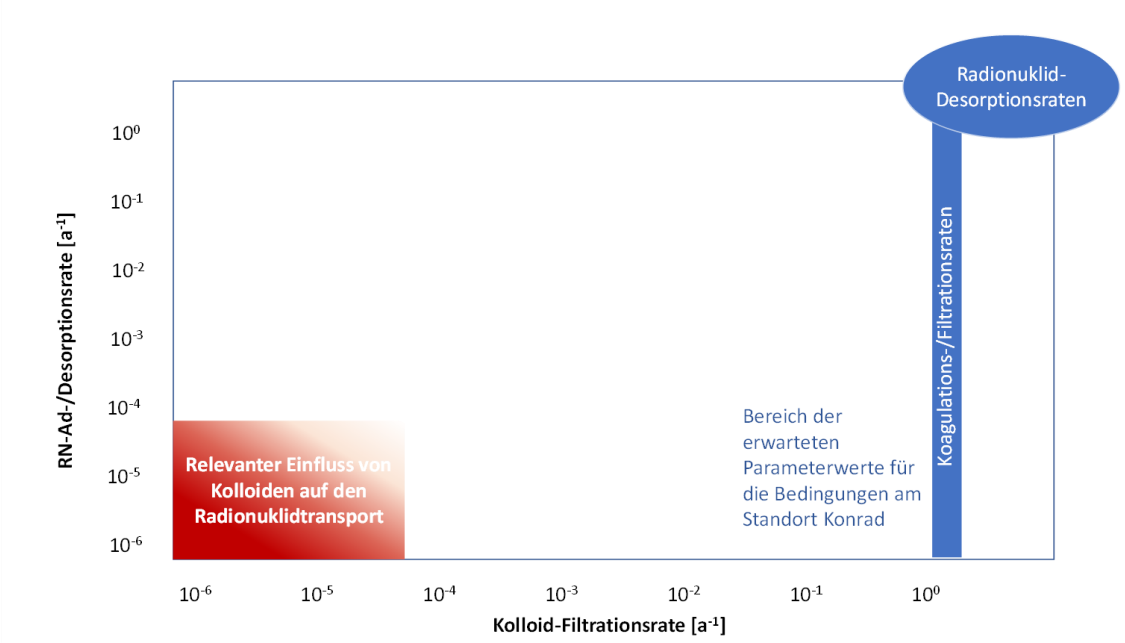

Abb. 3.26 Relevanz von Kolloiden in Abhängigkeit der Kolloidfiltration bzw. der Radionukliddesorptionsrate an den Kolloiden

Rot: Bereich in dem ein relevanter Einfluss auf den Radionuklidtransport erwartet wird
Blau: Bereich der erwarteten Parameterwerte für die Bedingungen am Standort Konrad

Bei Filtrationsraten >10^{-4} a^{-1} werden die Kolloide so stark zurückgehalten, dass ihre initiale Konzentration auf dem Transportweg um viele Größenordnungen reduziert wird und sie keine Auswirkungen auf den Radionuklidtransport bis in den oberflächennahen Aquifer haben.

Zur Bedeutung von Eigenkolloiden wurden Rechnungen mit konservativen Parametern gemacht, da einzelne Fragestellungen zu Eigenkolloiden noch offen sind. Es wird derzeit davon ausgegangen, dass Eigenkolloide nur in Anwesenheit der Festphase des jeweiligen Actinids stabil sind. Hier fehlen allerdings noch experimentelle Nachweise. Ebenso

gibt es bisher keine experimentellen Arbeiten zur Sorption von Eigenkolloiden an Feststoffen. Die Ergebnisse der Rechnungen zeigen, dass für die sehr konservativen Annahmen kein Einfluss der Eigenkolloide auf die Langzeitsicherheit existiert. Aufgrund des sehr langen Transportwegs und der sehr langen Transportzeiten wirkt sich eine frühere Freisetzung mit einer erhöhten Freisetzungsrate nicht auf die Durchbruchskurven am Ende des Freisetzungspfades aus.

3.3 Resümee

Als Grundlage für die Bearbeitung des Aspekts zum möglichen Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide wurde eine Literaturrecherche zum aktuellen Stand von W&T zu Kolloiden in einem Endlager mit zementhaltigen Abfällen durchgeführt. Die Literaturrecherche zeigt, dass Kolloide unter den geochemischen Bedingungen des Endlagers Konrad nicht ausgeschlossen werden können. Allerdings ist unter diesen Bedingungen nicht zu erwarten, dass diese Kolloide stabil in Lösung bleiben, sondern nach Aggregationsprozessen über Gravitation oder Filtration aus der Lösung entfernt werden.

Es wurden Modellrechnungen mit dem von der GRS entwickelten Programmpaket RepoTREND zum potenziellen Einfluss des kolloidgebundenen Radionuklidtransports durchgeführt. In diesen Modellrechnungen wurde anhand von Parametervariationen, speziell zu den kinetischen Parametern für die Kolloidfiltration und Desorption der Radionuklide von den Kolloiden, überprüft, unter welchen Bedingungen der kolloidgetragene Transport von Bedeutung sein könnte. Die wesentliche Aussage aus den Modellrechnungen ist, dass sich ein relevanter Einfluss der Kolloide auf den Radionuklidtransport nur dann einstellen kann, wenn die Desorptionsrate der initial an den Kolloiden sorbierten Radionuklide sehr klein ($< 10^{-4}$ a^{-1}) und gleichzeitig die Filtrationsrate für die Kolloide extrem klein wäre ($< 10^{-4}$ a^{-1}). Entsprechend der durchgeführten Literaturrecherche zur Stabilität/Filtration der Kolloide wie auch zur Desorption der Radionuklide von den Kolloiden lassen sich aber für die Bedingungen am Standort Konrad (speziell für die hohen Ionenstärken) minimale Filtrations- und Desorptionsraten im Bereich oberhalb 1 a^{-1} ableiten, also vier Größenordnungen höher. Ein Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide am Standort Konrad ist somit auszuschließen.

Zusätzlich zu betrachten sind Eigenkolloide der Radionuklide. Diese bestehen aus reinen Phasen und können die Konzentration der Radionuklide in Lösung (Löslichkeit) erhöhen. Es wird nach Stand von W&T derzeit davon ausgegangen, dass Eigenkolloide nur in Anwesenheit der Festphase des jeweiligen Actinids stabil sind. Zu dieser Annahme fehlen allerdings noch experimentelle Nachweise. Ergebnisse von Rechnungen unter sehr konservativen Annahmen zeigen keinen Einfluss der Eigenkolloide auf die Langzeitsicherheit. Aufgrund des sehr langen Transportwegs und der sehr langen Transportzeiten, wirkt sich eine frühere Freisetzung mit einer erhöhten Freisetzungsrate nicht auf die Durchbruchskurven am Ende des Freisetzungspfades aus.

Mit den durchgeführten Betrachtungen ist der Aspekt zum Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide mit den zwei zugeordneten Deltas ∆28 und ∆29 aus der ersten Phase der ÜsiKo vollständig bearbeitet. Ein weiterer Überprüfungs- und Anpassungsbedarf ergibt sich nicht.

3.4 Literatur

/ALT 04/ Altmaier, M., Neck, V., Fanghänel, T.: Solubility and colloid formation of Th(IV) in concentrated NaCl and MgCl2 solution. Radiochimica Acta, Nr. 92, S. 537–543, DOI 10.1524/ract.92.9.537.54983, 2004.

/ALT 13/ Altmaier, M., Gaona, X., Fanghänel, T.: Recent advances in aqueous actinide chemistry and thermodynamics. Chemical reviews, Bd. 113, Nr. 2, S. 901–943, DOI 10.1021/cr300379w, 2013.

/ALT 19/ Altmaier, M., Gaona, X., Fellhauer, D., Clark, D. L., Runde, W. H., Hobart, D. E.: Aqueous Solution and Coordination Chemistry of Plutonium. In: Clark, D. L., Geeson, D. A., Hanrahan, R. J. (Hrsg.): Plutonium handbook. Bd. 3, 2. Aufl., S. 1543–1726, ISBN 978-0-89448-204-5, American Nuclear Society: La Grange Park, Illinois, USA, 2019.

/BGE 21/ Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) mbH: Auflistung der sicherheitsrelevanten Deltas und der Hinweise aus Phase 1 der ÜsiKo. INFO KONRAD, Salzgitter, Juli 2021.
https://www.bge.de/fileadmin/user_upload/Konrad/Wesentliche_Unterlagen/UEsiKo/Deltas_und_Hinweise_UesiKo_Phase_1.pdf (27.01.2022)

/CAR 13/ Carlson, J. J., Kawatra, S. K.: Factors Affecting Zeta Potential of Iron Oxides. Mineral Processing and Extractive Metallurgy Review, Bd. 34, Nr. 5, S. 269–303, DOI 10.1080/08827508.2011.604697, 2013.

/CHI 21/ Chikanda, F., Otake, T., Koide, A., Ito, A., Sato, T.: The formation of Fe colloids and layered double hydroxides as sequestration agents in the natural remediation of mine drainage. Science of The Total Environment, Bd. 774, S. 145183, DOI 10.1016/j.scitotenv.2021.145183, 2021.

/DEG 00/ Degueldre, C., Triay, I., Kim, J.-I., Vilks, P., Laaksoharju, M., Miekeley, N.: Groundwater colloid properties: a global approach. Applied Geochemistry, Bd. 15, Nr. 7, S. 1043–1051, DOI 10.1016/S0883-2927(99)00102-X, 2000.

/DER 41/ Derjaguin, B. V., Landau, L.: Theory of the stability of strongly charged lyophobicsols and the adhesion of strongly charged particles in solutions of electrolytes. Acta Physicochimica URSS, Bd. 14, 1941.

/ESU 88/ Esumi, K., Idogawa, H., Meguro, K.: Mixed Colloidal Dispersions of Silica and Hematite. Bulletin of the Chemical Society of Japan, Bd. 61, Nr. 7, S. 2287–2290, DOI 10.1246/bcsj.61.2287, 1988.

/EVE 72/ Everett, D. H.: Manual of Symbols and Terminology for Physicochemical Quantities and Units, Appendix II: Definitions, Terminology and Symbols in Colloid and Surface Chemistry. Pure and Applied Chemistry, Bd. 31, Nr. 4, S. 577–638, DOI 10.1351/pac197231040577, 1972.

/FUJ 03/ Fujita, T., Sugiyama, D., Swanton, S., Myatt, B.: Observation and characterization of colloids derived from leached cement hydrates. Journal of Contaminant Hydrology, Bd. 61, Nr. 1-4, S. 3–16, DOI 10.1016/S0169-7722(02)00109-2, 2003.

/FUR 22/ Furcas, F. E., Lothenbach, B., Isgor, O. B., Mundra, S., Zhang, Z., Angst, U. M.: Solubility and speciation of iron in cementitious systems. Cement and Concrete Research, Bd. 151, S. 106620, DOI 10.1016/j.cemconres.2021.106620, 2022.

/GAR 00/ Gardiner, M. P., Longworth, G., Brock, C. J., Eccles, J.: The charactersitics of colloids from groundwater extracted from Sellafield boreholes 9A, PRZ2 and RCF3. AEA Technology Report AEAT/R/ENV/0219, 2000.

/GHO 11/ Ghosh, S., Jiang, W., McClements, J. D., Xing, B.: Colloidal stability of magnetic iron oxide nanoparticles: influence of natural organic matter and synthetic polyelectrolytes. Langmuir, Bd. 27, Nr. 13, S. 8036–8043, DOI 10.1021/la200772e, 2011.

/JEN 08/ Jennings, H. M.: Refinements to colloid model of C-S-H in cement, CM-II. Cement and Concrete Research, Nr. 38, S. 275–289, DOI 10.1016/j.cemconres.2007.10.006, 2008.

/KIM 87/ Kim, J.-I., Dienstbach, F., Hämmerle, M.: Eh-/pH-Messungen und Sorptionsuntersuchungen von Np, Pu und Tc an zementhaltigen geologischen Proben im Grubengebäude Konrad. TU München, RCM 00387, EU 137.1, Februar 1987. VDIS-KZL: 9K/352138/MR/RB/0005/00

/LI 12/ Li, D., Kaplan, D. I., Roberts, K. A., Seaman, J. C.: Mobile colloid generation induced by a cementitious plume: mineral surface-charge controls on mobilization. Environmental science & technology, Bd. 46, Nr. 5, S. 2755–2763, DOI 10.1021/es2040834, 2012.

/MIL 00/ Miller, W., Alexander, R., Chapman, N.: Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues. Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues, Waste Management, 329 S., ISBN 9780080553054, Elsevier: Burlington, 2000.

/MIL 98/ Milodowski, A. E., Hyslop, E. K., Smellie, J., Salameh, E., Khoury, H. N.: Site description sampling programme and groundwater analysis. In: Smellie, J. (Hrsg.), SKB TR-98-04, S. 105–134, Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), Dezember 1998: MAQARIN natural analogue study, PHASE III.

/NEC 07/ Neck, V., Altmaier, M., Seibert, A., Yun, J. I., Marquardt, C. M., Fanghänel, T.: Solubility and redox reactions of Pu(IV) hydrous oxide: Evidence for the formation of PuO 2+x (s, hyd). Radiochimica Acta, Bd. 95, Nr. 4, S. 193–207, DOI 10.1524/ract.2007.95.4.193, 2007.

/NER 18/ Neretnieks, I., Moreno, L.: Revisiting bentonite erosion understanding and modelling based on the BELBaR project findings. Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), SKB Technical Report, TR-17-12, Februar 2018.

/NOS 16/ Noseck, U., Flügge, J., Reimus, P., Cvetkovic, V., Lanyon, G. W., Schäfer, T., Blechschmidt, I.: Modelling of tracer, colloid and radionuclide/homologue transport for dipole CFM 06.002 – Pinkel surface packer, Colloid Formation and Migration Project, Grimsel Test Site Investigation Phase VI. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Los Alamos National Laboratory (LANL), Royal Institut of Technology (KTH), Fracture Systems Ltd., Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Nagra Technische Berichte, NTB 16-06, Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Dezember 2016.

/OCH 15/ Ochs, M., Mallants, D., Wang, L.: Radionuclide and metal sorption on cement and concrete. Topics in Safety, Risk, Reliability and Quality, Bd. 29, 2016. Aufl., 300 S., ISBN 9783319236506, Springer International Publishing: Cham, 2015.

/REI 14/ Reiche, T., Noseck, U., Wolf, J. W.: Modellierung des Schadstofftransports in geklüftet-porösen Medien unter Berücksichtigung von Kolloiden mit den Transportprogrammen FRAME und COFRAME. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-333, ISBN 978-3-944161-13-6: Braunschweig, Mai 2014.

/REI 16/ Reiche, T.: RepoTREND, Das Programmpaket zur integrierten Langzeitsicherheitsanalyse von Endlagersystemen, Version 4.5 (Stand März 2016). GRS-Bericht, GRS-413, 46 S., ISBN 978-3-944161-95-2, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Braunschweig, April 2016.

/REI 16a/ Reiche, T.; Noseck, U.; Schäfer, T., Migration of Contaminants in Fractured-Porous Media in the Presence of Colloids: Effects of Kinetic Interactions. Transport in Porous Media, 111, 143-170, 2016.

/ROE 19/ Röhlig, K., Küppers, C., Schäfer, T., Walther, C.: Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo) Review der Phase 1 „Ermittlung des Überprüfungsbedarfs“; VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0011/00, 2019

/RUE 19/ Rübel, A.; Behler, M.; Feinhals, J., Mönig, J., Poppei, J., Rätz, D., Wolf, J.: Projekt Konrad - Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Überprüfung der sicherheitsrelevanten Anforderungen zur Langzeitsicherheit, Kritikalität in der Nachbetriebsphase und thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins. Abschlussbericht zur Phase 1: Ermittlung des Überprüfungsbedarfs. Braunschweig: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, AF-Consult Switzerland Ltd., DMT GmbH & Co. KG, 2019. VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0009/00

/RUE 25/ Rübel, A., Behler, M., Hagemann, S., Kilger, R., Moog, H. C., Noseck, U., Wolf, J.: Projekt Konrad - Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo), Abschlussbericht zur Phase 2: Sicherstellung der Unterkritikalität. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, GRS-A-4049, Braunschweig, 2025.

/SAV 98/ Savage, D.: Zeolite occurence, stability and behaviour. In: Smellie, J. (Hrsg.), SKB TR-98-04, S. 281–316, Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), Dezember 1998: MAQARIN natural analogue study, PHASE III.

/SCH 07/ Schemel, L. E., Kimball, B. A., Runkel, R. L., Cox, M. H.: Formation of mixed Al–Fe colloidal sorbent and dissolved-colloidal partitioning of Cu and Zn in the Cement Creek – Animas River Confluence, Silverton, Colorado. Applied Geochemistry, Bd. 22, Nr. 7, S. 1467–1484, DOI 10.1016/j.apgeochem.2007.02.010, 2007.

/SCW 20/ Schönwiese, D.: Schachtanlage Konrad – Überwachung Grubenwässer (1-430004-2019-001-Rev.0). Jahresbericht 2019, im Auftrag der Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE). Stand: 09.01.2020.

/SEH 20/ Seher, H., Geckeis, H., Fanghänel, T., Schäfer, T.: Bentonite Nanoparticle Stability and the Effect of Fulvic Acids: Experiments and Modelling. Colloids and Interfaces, Bd. 4, Nr. 2, S. 16, DOI 10.3390/colloids4020016, 2020.

/SME 98/ Smellie, J. (Hrsg.): MAQARIN natural analogue study, PHASE III. Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), SKB TR-98-04, Dezember 1998.

/STO 86/ Storck, R., Butow, E., Heredia, L., Hossain, S., Kühle, T., Lutkemeier-Hosseinipour, S., Nies, A., Pröhl, G., Struck, S.: Langzeitsicherheits-analyse des Endlagers Konrad: Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase. EU 076.1, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) mbH, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/324.34/EG/RB/0004/00

/SWA 03/ Swanton, S., Vines, S.: Equilibrium leach tests: colloid generation and the association of radionuclides with colloids under simulated repository conditions. Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects, Bd. 217, Nr. 1-3, S. 71–79, DOI 10.1016/S0927-7757(02)00561-7, 2003.

/SWA 09/ Swanton, S., Alexander, R., Berry, J. A.: Review of the behaviour of colloids in the near field of a cementitious repository, Report to NDA RWMD. Serco, SERCO/TAS/000475/01 Issue 02, September 2009.

/VER 48/ Verwey, E., Overbeek, J.: Theory of the stability of lyophobic colloids. Elsevier: New York, 1948.

/WAL 13/ Walther, C., Denecke, M. A.: Actinide colloids and particles of environmental concern. Chemical reviews, Bd. 113, Nr. 2, S. 995–1015, DOI 10.1021/cr300343c, 2013.

/WET 98/ Wetton, P. D., Pearce, J.M., Alexander, W. Russel, Milodowski, A.E., Reeders, S., Wragg, J., Salameh, E.: The Production of Colloids at the cement/host rock interface. In: Smellie, J. (Hrsg.), SKB TR-98-04, S. 333–366, Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB), Dezember 1998: MAQARIN natural analogue study, PHASE III.

/WIE 01/ Wieland, E.: Experimental studies on the inventory of cement-derived colloids in the pore water of a cementitious backfill material, A contribution to the understanding of their rôle in the retardation of radionuclides in the near-field of a repository. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Technical Report 01-02, August 2001.

/WIE 02/ Wieland, E., van Loon, L.: Cementitious Near-Field Sorption Data Base for Performance Assessment of an ILW Repository in Opalinus Clay. Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle (NAGRA), Technical Report 02-20, December 2002.

/WIE 04/ Wieland, E., Tits, J., Bradbury, M. H.: The potential effect of cementitious colloids on radionuclide mobilisation in a repository for radioactive waste. Applied Geochemistry, Bd. 19, Nr. 1, S. 119–135, DOI 10.1016/S0883-2927(03)00114-8, 2004.

/YAN 21/ Yan, H., Sedighi, M., Jivkov, A.: Modelling the effects of water chemistry and flowrate on clay erosion. Engineering Geology, Bd. 294, S. 106409, DOI 10.1016/j.enggeo.2021.106409, 2021.

4 Aspekt 3: Überprüfung des Unterkreidepfades

4.1 Beschreibung

In der Phase 1 der ÜsiKo wurde die Langzeitsicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad im Hinblick auf sicherheitsrelevante Abweichungen im Stand von W&T zur Zeit des PFB zum Jahr 2019 begutachtet /RUE 19/. In Phase 1 wurde folgender Aspekt zur Bearbeitung in der ÜsiKo Phase 2 identifiziert:

Die Ausbreitung gelöster Radionuklide über den Unterkreidepfad (Ia) ist […] neu zu bewerten.

Diesem Aspekt sind drei identifizierte Deltas zugeordnet, die eine Neubewertung

- der Diffusion (∆31),
- der Sorption von Iod in der Oberkreide (∆32) und
- des berücksichtigten Transportwegs im Unterkreidepfad (∆30) verlangen.

Die Nummerierung und Bezeichnung der Deltas (Δ) richtet sich nach der veröffentlichten Liste der BGE /BGE 21/. Eine detailliertere Beschreibung der Inhalte der Deltas erfolgt in den folgenden Kapiteln.

Das Review-Team der Phase 1 der ÜsiKo regt zum ∆32/ ∆30 an, *unter Würdigung der konservativen Modellannahmen […] und der radiologischen Bewertungsgrundlagen […] als Grundlage für eine Entscheidung heranzuziehen, ob die empfohlene Neuberechnung des Transports von I-129 tatsächlich erforderlich ist. Auch die Bewertung der übrigen Deltas sollte unter Berücksichtigung der Konservativität erfolgen, die dem PFB […] zugrunde liegen.*

Die in /RUE 19/ festgestellten Deltas zum Aspekt der Bewertung der Überprüfung des Unterkreidepfades sind weiterhin zutreffend. Ein Fortschritt im Stand von W&T in den Jahren 2019 bis 2022 ist für die Deltas dieses Aspekts nicht festzustellen. Über die direkt im Delta benannten Punkte hinaus wurde bei der Bearbeitung der Deltas in den dabei verwendeten Unterlagen zum PFB Konrad keine potenziell sicherheitsrelevante Änderung bezüglich des Stands von W&T festgestellt, die nicht bereits in der ersten Phase der ÜsiKo benannt worden ist.

4.2 Bewertung der Diffusion

In diesem Kapitel wird das Δ31 aus Phase 1 der ÜsiKo behandelt.

Der Unterkreidepfad ist einer der beiden in der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad quantitativ, numerisch betrachteten Ausbreitungspfade für Radionuklide. Weitergehende Informationen zur Betrachtung des Radionuklidtransports in der Geosphäre sind in Anhang A dargestellt. Entlang dieses Ausbreitungspfads ändert sich der durchströmte Querschnitt der hydrogeologischen Einheiten und somit auch die Strömungsgeschwindigkeit. Abb. 4.1 zeigt eine schematische Abbildung des Ausbreitungswegs für Radionuklide über den Unterkreidepfad /STO 86/. Der vom Grundwasser durchströmte Querschnitt A ist in den Unterkreidetonen gegenüber dem Oxford und Kimmeridge um einen Faktor 18,5 und jener in den Plänerkalken um etwa einen Faktor 1,2 erhöht. Da der Volumenstrom des Grundwassers Q

$$Q = v \cdot A, \tag{4-1}$$

als konstant betrachtet wird, verringert sich die Grundwasserfließgeschwindigkeit v dementsprechend.

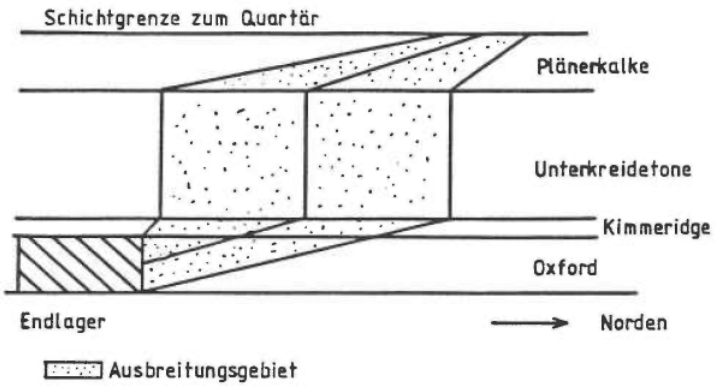

Abb. 4.1 Schematische Abbildung des Ausbreitungswegs Unterkreidepfad /STO 86/

In der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad wurde die Modellierung des Radionuklidtransports in der Geosphäre mit dem Rechenprogramm SWIFT durchgeführt. In der damals eingesetzten Version dieses Codes konnte kein abschnittsweise unterschiedlicher Strömungsquerschnitt, bzw. eine abschnittsweise unterschiedliche Strömungsgeschwindigkeit berücksichtigt werden. Um den Radionuklidtransport dennoch richtig abbilden zu können, wurde in den Unterkreidetonen und den Plänerkalken

bei konstanter Grundwassergeschwindigkeit die Transportgeschwindigkeit der Radionuklide gegenüber der Geschwindigkeit des Grundwassers verzögert. Dies wurde durch eine entsprechende Erhöhung des Retardationsfaktors R durch Anwendung modifizierter K_d-Werte für die Sorption erreicht.

Der Retardationsfaktor R errechnet sich mit

$$R = 1 + \frac{K_d \cdot \rho \cdot (1-n)}{n}, \tag{4-2}$$

Wobei K_d der K_d-Wert für die Sorption und ρ und n die Dichte und Porosität des Gesteins sind. Die Transportgeschwindigkeit der Schadstoffe v^* verändert sich reziprok mit dem Retardationsfaktor gegenüber der Grundwassergeschwindigkeit v, wobei

$$v^* = \frac{v}{R}. \tag{4-3}$$

Das Vorgehen in der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad zur Berücksichtigung unterschiedlicher Transportgeschwindigkeiten über den Retardationsfaktor ist zulässig. Allerdings wird durch Modifikation des Retardationsfaktors indirekt auch die Diffusion beeinflusst, da der Diffusionskoeffizient D ebenfalls reziprok mit dem Retardationsfaktor abnimmt

$$D^* = \frac{D}{R} \tag{4-4}$$

ergibt sich in für die Modellrechnung ein geänderter Diffusionskoeffizient D^*. Bei Erhöhung des Retardationsfaktors wird somit die Diffusion unterschätzt. Dies kann insbesondere in gering durchlässigen Gesteinen mit einer geringen Grundwassergeschwindigkeit und relevanter Diffusion zu einer Unterschätzung des Radionuklidtransports führen. Dieser Sachverhalt wurde als Δ31 in der ersten Phase der ÜsiKo identifiziert.

Zur Überprüfung der Relevanz des Deltas ist das Vorgehen in der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad mit einer Rechnung mittels eines aktuellen Rechencodes zu vergleichen. Dabei sind grundsätzlich zwei Vorgehensweisen denkbar:

- Alternative 1: Durchführung einer Modellrechnung mit angepassten Fließquerschnitten, Grundwassergeschwindigkeiten und Retardationsfaktoren, oder

– Alternative 2: Durchführung einer Modellrechnung mit angepassten Diffusionskoeffizienten.

Im Folgenden wird die zweite Möglichkeit gewählt, weil damit die Anzahl der anzupassenden Parameter möglichst gering gehalten wird. Es werden somit zwei Rechnungen verglichen; dies sind zum einen eine Modellrechnung, in der das Vorgehen identisch ist mit jenem in /STO 86/ und eine zweite Modellrechnung, in der die verwendeten Diffusionskoeffizienten in der Unterkreide um einen Faktor von 18,5 und in den Plänerkalken um einen Faktor von 1,2 erhöht werden, womit die Modifikation bezüglich der Retardationsfaktoren in /STO 86/ kompensiert wird. Alle anderen Modellparameter bleiben gegenüber /STO 86/ unverändert. Die Rechnungen wurden mit dem Programmpaket RepoTREND durchgeführt (vgl. Anhang B), mit dem die Rechnungen der Langzeitsicherheitsanalyse von 1986 reproduziert werden können (vgl. Anhang C).

Der Vergleich der beiden durchgeführten Rechnungen ist beispielhaft für drei unterschiedliche Radionuklide in Abb. 4.2 dargestellt. Die Ergebnisse für die anderen Radionuklide verhalten sich entsprechend. Das Ergebnis des Vergleichs zeigt, dass die Anpassung der Werte des Diffusionskoeffizienten für die Unterkreide und die Plänerkalke keinen relevanten Einfluss auf den Zeitverlauf und die Werte der errechneten Konzentrationen im oberflächennahen Aquifer – und damit auch nicht auf die potenzielle Strahlenexposition – hat. Der Grund dafür ist, dass im Modell der Langzeitsicherheitsanalyse für den Unterkreidepfad der advektive Transport auch in der Unterkreide gegenüber der Diffusion dominiert, weil die angenommene Permeabilität für die Unterkreide entsprechend hoch ist.

Das $\Delta 31$ erweist sich damit als nicht sicherheitsrelevant und es sind keine weiteren Untersuchungen bezüglich dieses Deltas notwendig.

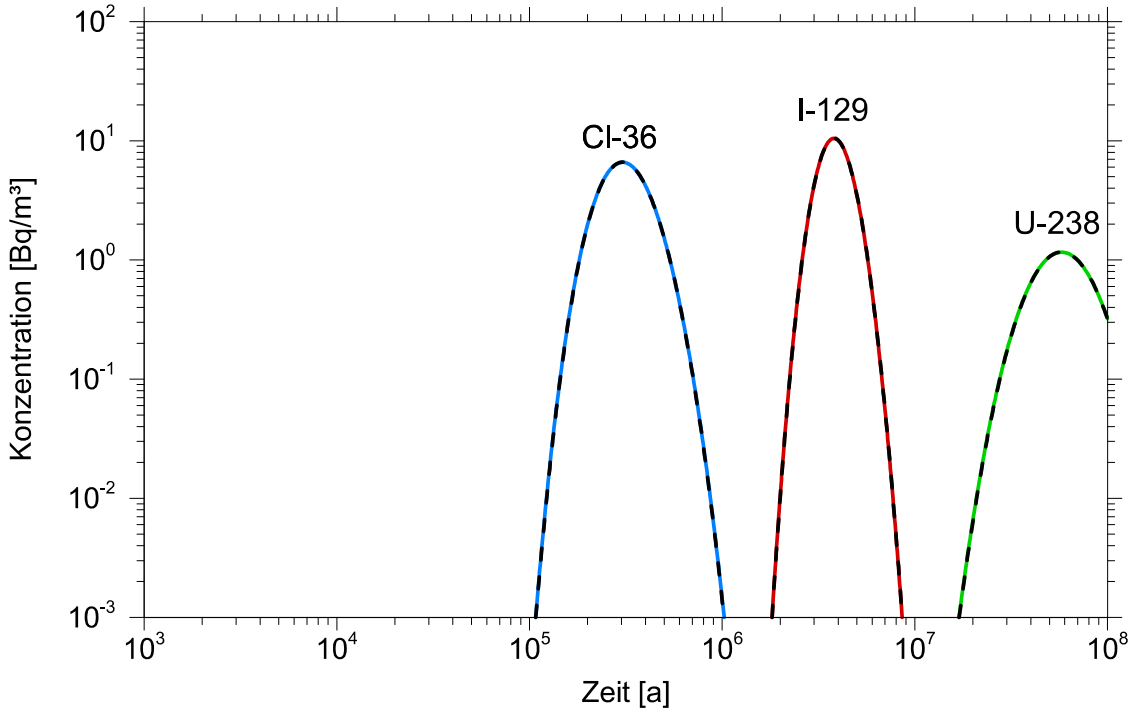

Abb. 4.2 Radionuklidkonzentration im oberflächennahen Aquifer für Modellrechnungen zu ∆31 mit (farbige, gestrichelte Linien) und ohne Anpassung (schwarze Linien) des Diffusionskoeffizienten

4.3 Bewertung der Sorption von Iod in der Oberkreide und des berücksichtigten Transportwegs im Unterkreidepfad

In diesem Kapitel werden die Deltas ∆32 und ∆30 aus Phase 1 der ÜsiKo behandelt.

Der Unterkreidepfad ist einer der beiden in der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad quantitativ, numerisch betrachteten Ausbreitungspfade für Radionuklide. Weitergehende Informationen zur Betrachtung des Radionuklidtransports in der Geosphäre sind in Anhang A dargestellt. Mit Hilfe von hydrogeologischen Modellrechnungen zur Grundwasserströmung im Rahmen des Langzeitsicherheitsnachweises Konrad wurden die schnellsten Grundwasserströmungspfade vom Grubengebäude bis in die quartären Schichten durch Partikelverfolgung (particle tracking) abgeleitet und entlang dieser Strömungspfade Transportrechnungen für den Radionuklidtransport durchgeführt /STO 86/. Bei der Wahl der zu berücksichtigenden Transportstrecke ist zu beachten, dass die Transportdauer durch die Sorption verlängert wird. Für die Transportgeschwindigkeit der Radionuklide ist der Quotient aus der Strömungsgeschwindigkeit und dem Retardationsfaktor maßgeblich (vgl. Gleichung 4-2), wobei sich der Retardationsfaktor

aus dem Sorptionskoeffizienten (K_d-Wert) für das betrachtete Radionuklid am durchströmten Gestein errechnet (vgl. Gleichung 4-3).

Bei großen Unterschieden in den Sorptionskoeffizienten entlang verschiedener Transportpfade kann es vorkommen, dass der schnellste Strömungspfad für das Grundwasser nicht dem schnellsten Transportpfad für Radionuklide entspricht. Dies gilt dann, wenn entlang des schnellsten Strömungspfads für das Grundwasser die Radionuklide stark zurückgehalten werden, während entlang eines alternativen Strömungspfads mit langsameren Grundwassergeschwindigkeiten eine geringere Verzögerung für Radionuklide vorliegt. In der Phase 1 der ÜsiKo wurde identifiziert, dass für den Unterkreidepfad möglicherweise solch ein Fall vorliegt. Der schnellste Strömungspfad für das Grundwasser wurde auf einer Länge von 2.320 m durch die Plänerkalke identifiziert. Die Grundwasserlaufzeit vom Endlager bis in das quartäre Grundwasser entlang dem Unterkreidepfad wird mit etwa 380.000 Jahren angegeben.

Für die Plänerkalke wurde für das dosisrelevante Radionuklid Iod ein gegenüber den sonstigen Gesteinen im Deckgebirge des Endlagers Konrad vergleichsweise hoher Sorptionskoeffizient festgelegt, so dass die Transportzeit für Iod entlang des Unterkreidepfads etwa 3.690.000 Jahre beträgt. In der Phase 1 der ÜsiKo wurde es als möglich erachtet, dass es für Iod einen schnelleren Transportweg durch die Oberkreide geben könnte, der nicht entlang der Plänerkalke führt (∆30). Für andere Radionuklide als Iod ist diese Frage nicht relevant, da die Sorptionskoeffizienten in den Plänerkalken vergleichbar sind mit jenen in den anderen Gesteinen.

Gleichzeitig wurde in der Phase 1 der ÜsiKo auch in Frage gestellt, ob der vergleichsweise hohe Sorptionskoeffizient von Iod an den Plänerkalken realistisch ist (∆32), da nach aktuellem Stand von W&T Iod üblicherweise für alle Gesteine als sehr gering, bzw. Iod als nicht sorbierendes Radionuklid angesehen wird. Auch im Datensatz des Gutachters NLfB wurde bereits keine Sorption von Iod in der Oberkreide angenommen. Es ist daher zu überprüfen, ob für die langzeitsicherheitsanalytischen Rechnungen ein geringerer Sorptionskoeffizient zu Grunde zu legen ist. Die beiden genannten in Phase 1 der ÜsiKo identifizierten Deltas sind damit direkt miteinander verknüpft und es ergeben sich zwei Möglichkeiten der Bearbeitung in Phase 2 der ÜsiKo:

- Möglichkeit 1: Der in der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad angenommene Sorptionskoeffizient für Iod an den Plänerkalken wird als zu hoch angesehen und der Transport von Iod ist dann mit sehr geringem Sorptionskoeffizienten,

bzw. ohne Sorption zu berechnen. Bei Alternative 1 wird somit Δ32 als relevant eingeschätzt. Im Fall mit geringer Sorption für Iod, oder sogar ohne Sorption ist dann der aus dem particle tracking in der hydrogeologischen Grundwasserströmungsmodellierung bestimmte schnellste Strömungspfad auch der schnellste Transportweg für Iod und Δ30 ist als nicht relevant einzustufen und nicht weiter zu betrachten.

- Möglichkeit 2: der in der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad angenommene Sorptionskoeffizient für Iod an den Plänerkalken ist gerechtfertigt. Es wird somit Δ32 als nicht relevant eingeschätzt. Bei Alternative 2 ist gemäß Δ30 zu überprüfen, ob ein schnellerer Transport von Iod durch die Schichten der Oberkreide möglich ist, der nicht entlang der Plänerkalke führt. Falls es einen schnelleren Transportweg für Iod durch die Oberkreide geben kann, dann ist Δ30 relevant, andernfalls nicht.

4.3.1 Datenlage zur Sorption von Iod

Im Folgenden wird zuerst die Datenlage zur Sorption von Iod entsprechend der in der LZSA berücksichtigten anionischen Form (I^-) nach Stand von W&T überprüft. Die nachfolgenden Betrachtungen sind nicht auf andere Elemente, bzw. Iod in anderen chemischen Formen übertragbar.

In der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad wurden für die Plänerkalke Werte von $9 \cdot 10^{-3}$ m³/kg für das Cenoman und $2 \cdot 10^{-3}$ m³/kg für das Turon angenommen. Diese Werte basieren auf experimentellen Ergebnissen, die in /KLO 86/ dokumentiert sind. Nach Gleichung 4-2 entspricht das einem Retardationsfaktor, also einer Verzögerung des Transports von Iod gegenüber der Strömung des Grundwassers um etwa einen Faktor 134 (n = 0,15 /STO 86/ Tabelle 5-9, ρ = 2.600 kg/m³ /STO 86/ Tabelle 7-4). Im Datensatz des Gutachters NLfB im PFV wurde dagegen keine Sorption von Iod an den Plänerkalken angegeben.

Drei Gründe sprechen dafür, dass die vom Antragsteller in der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad angenommenen Sorptionskoeffizienten für das Radionuklid Iod an den Gesteinen der Plänerkalke unrealistisch hoch sind:

1.) Es gibt deutliche Differenzen zwischen den Ergebnissen der in /KLO 86/ angewendeten Methoden von Batch- und Säulendurchlaufexperimenten.

Durchgeführt wurden an den Plänerkalken folgende Arten von Sorptionsexperimenten mit Iod:

- Batchexperiment: In den Batchexperimenten wurde eine Sorption für Iod an den Plänerkalken an Proben gemessen, die einerseits an übertägigen Aufschlüssen der Plänerkalke /KLO 85/ und andererseits aus Bohrkernen der Tiefbohrung K 101 /KLO 86/ gewonnen wurden. Die bestimmten K_d-Werte aus /KLO 86/, Tab. 7 entsprechen den in der Langzeitsicherheitsanalyse verwendeten Werten.
- Säulendurchlaufexperimente: In den Säulenversuchen wurde keine Sorption von Iod an den Plänerkalken gemessen. Vielmehr wurde sogar eine leichte Beschleunigung des Radionuklidtransports von Iod gegenüber der Strömungsgeschwindigkeit des Grundwassers bestimmt. Der Retardationsfaktor beträgt dabei 0,92 bzw. 0,95 (/KLO 86/ Tabelle 16). Allerdings ist die Wiedergewinnungsrate für das Iod aus dem Säulenversuchen mit 86,7 % und 76,1 % eher gering, was für einen Anteil einer nicht reversiblen Sorption spricht.

In /KLO 98/ bewertet der Autor die eingesetzten experimentellen Methoden folgendermaßen: „*Das herkömmliche Batch-Verfahren wird, obwohl Ergebnisse ohne großen Investitions-, Material-, Zeit- und Personalaufwand zu produzieren sind, als naturfern eingeschätzt. Es eignet sich nur zur Untersuchung bei Parametervariationen. […] Das Durchlaufsäulen-Verfahren wird am naturnähesten bewertet […].*“ Weiterhin werden dort auch die Wiedergewinnungsraten für Iod thematisiert: „*^{131}I wird in natürlichen und in autoklavierten Systemen nicht signifikant retardiert ($R_f \approx 1{,}0$), der Wiedererhalt beträgt im natürlichen System nur ca. 65 %, im sterilen System ca. 100 %“*.

Die zuletzt genannte Möglichkeit der Beeinflussung von Sorptionsexperimenten durch mikrobielle Aktivität, die durch die Sterilisation der Proben unterdrückt werden kann, wird z. B. auch in /YOS 98/ thematisiert, wonach in Experimenten an oberflächennahen Böden 86 % der gemessenen Sorption von Iodid auf mikrobielle Aktivität zurückzuführen ist und verschwindet, wenn mit sterilen Systemen gearbeitet wird. Generell können Mikroorganismen die Oxidation, Reduktion, Akkumulation und den Einbau von Iod in organischem Material katalysieren /KAP 14/.

Eine andere Möglichkeit der ungewünschten Beeinflussung der Batch-Sorptionsexperimente für Iod kann daher kommen, dass die Experimente nicht unter Sauerstoffabschluss durchgeführt werden. Ob dies bei den in /KLO 86/ beschriebenen Experimenten der Fall war, ist in dem entsprechenden Bericht nicht dokumentiert. Bei Anwesenheit von Luftsauerstoff kann der als Iodid eingesetzte Tracer mit der Zeit in Iodat umgewandelt werden. Iodat wiederum kann fest in Calcit eingebunden werden /MOO 20/. Calcit ist in den betrachteten Gesteinen in großen Mengen vorhanden.

Für die Vermutung, dass die Sorptionsexperimente durch einen anderen Prozess als Sorption verfälscht wurden, spricht die vergleichsweise lange benötigte Dauer zur Einstellung des Sorptionsgleichgewichts in den Batch-Experimenten mit Iod von über 20 Tagen (Abbildung 4 links oben in /KLO 86/) und die geringe Wiedergewinnungsrate in den Säulendurchlaufexperimenten. Bei einer reversiblen Sorption mit schnellem Gleichgewicht zwischen sorbierten und gelösten Tracer wird eine kurze Dauer zur Einstellung des Sorptionsgleichgewichts bzw. eine hohe Wiedergewinnungsrate erwartet, wie sie in den Experimenten für andere Tracer beobachtet wurde.

Insgesamt scheinen bei den im Rahmen der Standorterkundung zum Endlager Konrad durchgeführten Experimenten zur Sorption von Iod die Ergebnisse aus den Säulendurchlaufexperimenten höher zu bewerten zu sein als jene der Batch-Experimente, weil damit direkte Informationen zur Transportverzögerung von Iod gewonnen wurden. Demnach wäre keine Sorption von Iod in den Plänerkalken, oder sogar eine leichte Beschleunigung des Transports von Iod gegenüber dem Grundwasser anzunehmen.

2.) Für andere Gesteine mit ähnlicher mineralogischer Zusammensetzung, wie sie die Plänerkalke aufweisen, wurde in den Experimenten keine relevante Sorption für Iod gefunden und in der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad auch keine Sorption für Iod angenommen.

Die Plänerkalke sind Kalkmergelgesteine. Laut /ECK 91/ besteht die mineralogische Zusammensetzung des Mittelcenoman aus Calcit, Quarz und Tonmineralen (vgl. Tab. 4.1). Die in Tab. 4.1 angegebenen Zusammensetzungen zweier anderer im Deckgebirge des Endlagers Konrad vorkommender Gesteine (Unterkimmeridge, Unterer Korallenoolith) zeigen einen ähnlichen Mineralbestand, wenn auch in etwas abweichenden Mengenverhältnissen, wobei diese beiden gemeinsam die Bandbreite der Angaben die Mengenverhältnisse des Cenoman weitgehend umfassen. Da die Sorption von Radionukliden an

Gesteinen durch die mineralogischen Gesteinseigenschaften und die dadurch zur Verfügung stehenden Sorptionsplätze wesentlich bestimmt wird, sollten Gesteine mit ähnlicher mineralogischer Zusammensetzung auch ähnliche Sorptionsparameter für dasselbe Radionuklid aufweisen. Es wurde aber in der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad weder für das Kimmeridge noch für das Oxford eine Sorption für Iod angenommen. Experimentelle Untersuchungen in /KLO 86/ gibt es für die Sorption von Iod an Gesteinsproben des Kimmeridge, wobei keine relevante Sorption von Iod festgestellt wurde. Die bestehenden Unterschiede in der Mineralogie der Gesteine können die Unterschiede in den angenommenen K_d-Werten nicht erklären.

Letztendlich gibt es keinen Hinweis, warum die Gesteine der Plänerkalke eine höhere Sorption für Iod aufweisen sollten als andere Gesteine mit ähnlichem Mineralbestand und es wäre aus Konsistenzgründen der Parameterwerte anzunehmen, dass Iod auch in den Plänerkalken keine Sorption erfährt.

Tab. 4.1 Mineralogische Zusammensetzung ausgewählter Gesteine in Prozentanteilen /ECK 91/

	Mittel-cenoman	**Unter-kimmeridge**	**Unterer Korallenoolith**
Calcit	83 – 87	18 – 74	8 – 89
Quarz	3 – 4	4 – 18	1 – 16
Smektit	6 – 9	-	2
Illit	2 – 4	4 – 39	2 – 40
Kaolinit	1	3 – 12	1 – 22
Chlorit	-	5 – 10	-
Summe der Tonminerale Smektit, Illit, Kaolinit und Chlorit	9 – 14	12 – 61	5 – 64

3.) International verfügbare Datenbanken für relevante Gesteine, die mineralogische Ähnlichkeiten mit den Plänerkalken aufweisen, zeigen keine Sorption für Iod an diesen Gesteinen.

Größere Datensammlungen zu Sorptionsuntersuchungen an Gesteinen mit höherem Anteil von Kalkgestein sind vor allem aus den Untersuchungsprogrammen der Nagra für den Standort Wellenberg /BRA 97/ und für Nebengesteine an potenziellen Standorten

im Tongestein /BRA 10/ verfügbar. Bei Letzteren sind weniger die Daten zum Tongestein, sondern die dabei auch dokumentierte „Generic Calcareous Rock Sorption Database“ relevant, wobei diese weitgehend auf den Daten in /BRA 97/ aufbaut, so dass die neueren Daten eher als kritischer Review der älteren Daten nach Stand von W&T angesehen werden können. In diesen Datenbanken werden für die Sorption von Iod an kalkhaltigen Gesteinen Sorptionsparameter von 0 m³/kg empfohlen. Aus diesen Daten lässt sich somit keine Sorption von Iod an den Plänerkalken ableiten.

Es lässt sich aus den durchgeführten Experimenten und dem aktuellen Stand von W&T ableiten, dass in den langzeitsicherheitsanalytischen Rechnungen zum Transport von Iod im Deckgebirge des Endlagers Konrad keine Sorption von Iod an den Plänerkalken anzunehmen ist. Wie oben als Möglichkeit 1 dargelegt muss das Δ32 somit weiter analysiert werden, während das Δ30 bezüglich alternativer Transportwege nicht weiter betrachtet werden muss.

4.3.2 Berechnung des Radionuklidtransports über den Unterkreidepfad ohne Berücksichtigung einer Sorption für Iod in den Plänerkalken

Entsprechend dem vorangegangenen Kapitel ist die Berücksichtigung einer Sorption von Iod an den Plänerkalken im Langzeitsicherheitsnachweis Konrad nach der aktuellen Datenlage nicht gerechtfertigt. Iod ist ein dosisrelevantes Radionuklid in der LZSA für das Endlager Konrad. Die Auswirkungen der reduzierten Sorption von Iod auf die Konzentration von Iod im oberflächennahen Grundwasser und die dadurch verursachte potenzielle Dosis lässt sich nicht ohne numerische Modellrechnungen abschätzen. Daher werden im Folgenden zur Überprüfung der Relevanz des Deltas auf den Radionuklidtransport Rechnungen mit und ohne Sorption von Iod an den Plänerkalken durchgeführt und verglichen. Die Rechnungen wurden mit dem Programmpaket RepoTREND durchgeführt (vgl. Anhang B), mit dem die Rechnungen der Langzeitsicherheitsanalyse von 1986 reproduziert werden können (vgl. Anhang C).

Ein Vergleich der Rechnungen zur Ausbreitung von Iod im Deckgebirge Konrad über den Unterkreidepfad mit und ohne Berücksichtigung einer Sorption von Iod in den Plänerkalken zeigt (Tab. 4.2 und Abb. 4.3), dass die maximale Konzentration von I-129 bei Vernachlässigung der Sorption auf Grund der fehlenden Rückhaltung bereits zu einem

deutlich früheren Zeitpunkt auftritt. Ohne Sorption wird das Maximum im oberflächennahen Aquifer bereits nach etwa 323.000 Jahren erreicht[9]. Auf Grund der geringeren räumlichen Dispersion der Radionuklide bei einer kürzeren Transportzeit und zum kleinen Teil auch wegen eines geringeren radioaktiven Zerfalls[10] von I-129 erhöht sich die maximale Konzentration im oberflächennahen Aquifer um den Faktor 8,25, wenn keine Sorption von Iod in den Plänerkalken berücksichtigt wird. Die maximale Konzentration von I-129 im oberflächennahen Grundwasser und der Zeitpunkt des Auftretens entsprechen in etwa den Werten für den Oxfordpfad. Die erhöhte Konzentration von I-129 im oberflächennahen Aquifer ist bei der Dosisberechnung für den Unterkreidepfad zu berücksichtigen (vgl. Kapitel 5).

Tab. 4.2 Maximale Konzentration von I-129 in Bq/m³ im oberflächennahen Aquifer und Zeitpunkt des Auftretens des Maximums in Jahren bei Ausbreitung über den Unterkreidepfad

Der etwas höhere Wert für die maximale Konzentration in der Nachrechnung im Rahmen der ÜsiKo Phase 2 von 10,5 Bq/m³ (1. Zeile) gegenüber der Rechnung von 1986 mit einem Wert von 8,5 Bq/m³ /PRO 91/ ist durch numerische Unterschiede in den Rechenprogrammen zu erklären (vgl. Anhang C).

	Zeitpunkt der maximalen Konzentration [a]	**Maximale Konzentration [Bq/m³]**
Nachrechnung mit Berücksichtigung der Sorption von Iod analog /STO 86/	3.800.000	10,5
Bewertung ohne Berücksichtigung der Sorption von Iod	323.000	86,6

[9] Dies ist etwas kürzer als die Grundwassertransportdauer. Dies ist darauf zurückzuführen, dass durch „die unterschiedlichen Transportgeschwindigkeiten entlang des Ausbreitungsweges […] die Radionuklidkonzentrationen über dem Ort nicht mehr normalverteilt sind." (/EU 076.1/ S.254/255)

[10] Die Halbwertszeit von I-129 beträgt $1{,}57 \cdot 10^7$ Jahre und ist somit wesentlich größer als die Transportzeit in der LZSA Konrad. Der Effekt des radioaktiven Zerfalls auf die Verringerung der Konzentration von I-129 ist daher gering.

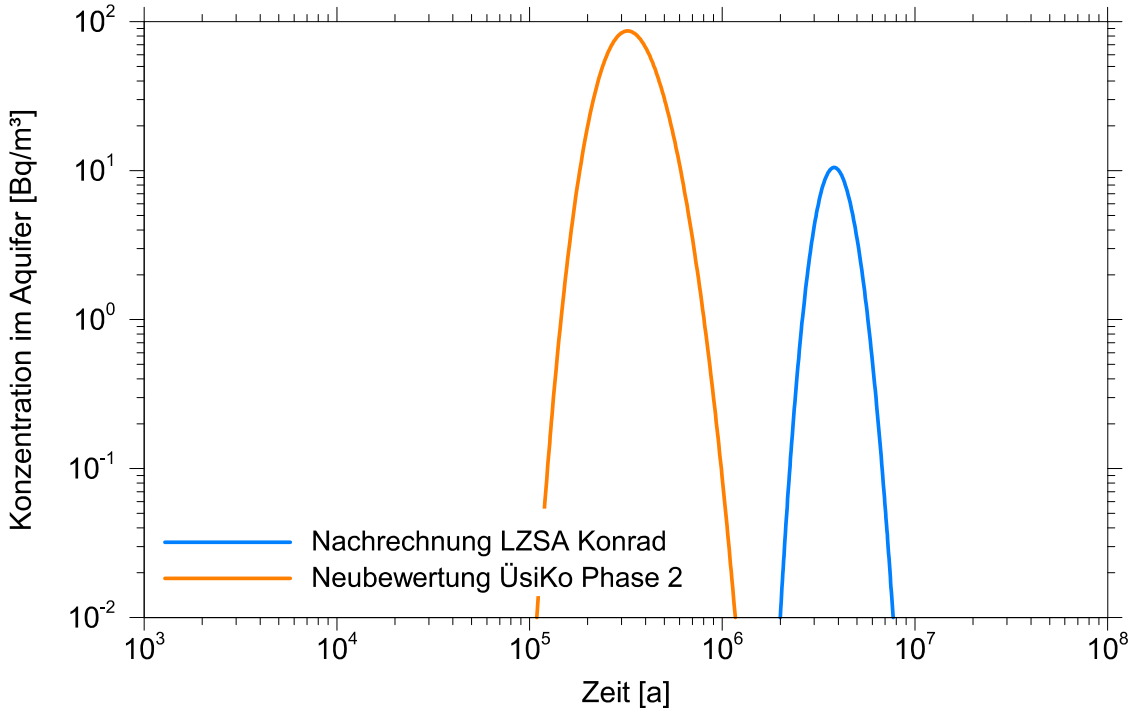

Abb. 4.3 Radionuklidkonzentration im oberflächennahen Aquifer für Modellrechnungen mit (blaue Kurve) und ohne (orangene Kurve) Berücksichtigung einer Sorption für Iod an den Plänerkalken

4.4 Resümee

In der Phase 2 der ÜsiKo wurden drei Deltas bezüglich der Ausbreitung von Radionukliden über den Unterkreidepfad bewertet.

Das Δ31 bezüglich der Berücksichtigung der Diffusion im Unterkreidepfad erweist sich als Ergebnis der durchgeführten numerischen Analyse als nicht relevant. Es sind keine weiteren Untersuchungen notwendig.

Die Bewertung des Unterkreidepfades bezüglich der Sorption von I-129 an den Plänerkalken zeigt, dass die Annahme einer Sorption von Iod an den Plänerkalken in der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad erscheint nach dem aktuellen Stand von W&T als nicht gerechtfertigt. Es wird daher als Ergebnis der durchgeführten Untersuchungen keine Sorption von Iod an den Plänerkalken berücksichtigt (K_d = 0). Das Delta Δ30 muss in diesem Fall nicht weiter betrachtet werden.

Bei Vernachlässigung der Sorption von Iod an den Plänerkalken in der langzeitsicherheitsanalytischen Transportrechnung ergibt sich für den Unterkreidepfad eine um einen Faktor 8,25 höhere Konzentration von I-129 im oberflächennahen Aquifer gegenüber einer Rechnung mit Berücksichtigung der Sorption. Der Zeitpunkt des Auftretens des Maximums reduziert sich auf etwa 323.000 Jahre. Die maximale Konzentration von I-129 im oberflächennahen Grundwasser und der Zeitpunkt des Auftretens entsprechen in etwa den Werten für den Oxfordpfad. Die erhöhte Konzentration von I-129 im oberflächennahen Aquifer ist bei der Dosisberechnung für den Unterkreidepfad zu berücksichtigen. Dies wird in Kapitel 5 durchgeführt.

Mit den durchgeführten Betrachtungen ist der Aspekt der Überprüfung des Unterkreidepfads und die drei zugeordneten Deltas aus der Phase 1 der ÜsiKo vollständig bearbeitet. Ein weiterer Überprüfungs- und Anpassungsbedarf ergibt sich nicht.

4.5 Literatur

/BGE 21/ Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) mbH: Auflistung der sicherheitsrelevanten Deltas und der Hinweise aus Phase 1 der ÜsiKo. INFO KONRAD, Salzgitter, Juli 2021. https://www.bge.de/fileadmin/user_upload/Konrad/Wesentliche_Unterlagen/UEsiKo/Deltas_und_Hinweise_UesiKo_Phase_1.pdf (27.01.2022)

/BRA 97/ Bradbury, M. H.; Baeyens, B.: Far-Field Sorption Data Bases for Performance Assessment of a UILW Repository in a Disturbed / Altered Palfris Marl Host Rock. NTB 96-06, Nagra, Wettingen, 1997.

/BRA 10/ Bradbury, M. H.; Baeyens, B.; Thoenen, T.: Sorption Data Bases for Generic Swiss Argillaceous Rock Systems. NTB 09-03, Nagra, Wettingen, 2010.

/ECK 91/ Eckhardt, F.-J.: Zusammenfassende Bewertung und Interpretation mineralogischer und petrographischer Untersuchungen der Dogger-, Malm- und Kreideschichten der Schachtanlage Konrad. EU370, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover, 1991. VDIS-KZL: 9K/2831/HD/RB/0001/01

/KAP 14/ Kaplan, D. I.; Denham, M. E.; Zhang, S.; Yeager, C.; Xu, C.; Schwehr, K.; Li, H.-P.; Ho, Y.-F.; Wellman, D.; Santschi, P. H.: Radioiodine biogeochemistry and prevalence in groundwater. Critical Reviews in Environmental Science and Technology, 44(20), 2287-2335, 2014.

/KLO 85/ Klotz, D.; Lang, H.; Moser, H.: Experimentelle Untersuchungen zur Radionuklidmigration in der Umgebung des geplanten Endlagers für radioaktive Abfälle in der Schachtanlage Konrad – Untersuchungsprogramm I. EU 125.7, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Institut für Radiohydrometrie, München, 1985. VDIS-KZL: 9K/-/HF/RB/0008/00

/KLO 86/ Klotz, D.; Lang, H.; Moser, H.: Experimentelle Untersuchungen zur Radionuklidmigration in der Umgebung des geplanten Endlagers für radioaktive Abfälle in der Schachtanlage Konrad – Untersuchungsprogramm II. EU 125.8, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung, Institut für Radiohydrometrie, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/-/HF/RB/0009/00

/KLO 98/ Klotz, D.: Migrationsuntersuchungen mit ausgewählten Radionukliden in Sedimenten aus dem Deckgebirge des Endlagers Gorleben – eine Zusammenfassung. In: Grambow, B.; Fanghänel, Th.: Geochemische Modellierung – Radiotoxische und chemischtoxische Stoffe in natürlichen aquatischen Systemen; Workshop im Forschungszentrum Karlsruhe am 23. und 24. April 1997; FZKA 6051, Forschungszentrum Karlsruhe, Karlsruhe, 1998.

/MOO 20/ Moore, R. C.; Pearce, C. I.; Morad, J. W.; Chatterjee, S.; Levitskaia, T. G.; Asmussen, R. M.; Lawter, A. R.; Neeway, J. J.; Qafoku, N. P.; Rigali, M. J.; Saslow, S. A.; Szecsody, J. E.; Thallapally, P. K.; Wang, G.; Freedman, V. L.: Iodine immobilization by materials through sorption and redox-driven processes: A literature review, Science of The Total Environment, Volume 716, 2020.

/PRO 91/ Pröhl, G.: Berechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad nach der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift. EU 353 Rev. 1, Gesellschaft für Strahlen und Umweltforschung mbH, Institut für Strahlenschutz, München, 1991. VDIS-KZL: 9K/352127.32/EG/RB/0012/01

/YOS 98/ Yoshida, S.; Muramatsu Y.; Uchida, S.: Soil-Solution Distribution Coefficients, K_d s, of I^- and IO^-_3 for 68 Japanese Soils. Radiochimica Acta, 82, 293-297, 1998.

/RUE 19/ Rübel, A.; Behler, M.; Feinhals, J., Mönig, J., Poppei, J., Rätz, D., Wolf, J.: Projekt Konrad - Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Überprüfung der sicherheitsrelevanten Anforderungen zur Langzeitsicherheit, Kritikalität in der Nachbetriebsphase und thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins. Abschlussbericht zur Phase 1: Ermittlung des Überprüfungsbedarfs. Braunschweig: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, AF-Consult Switzerland Ltd., DMT GmbH & Co. KG, 2019. VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0009/00

/STO 86/ Storck, R., Butow, E., Heredia, L., Hossain, S., Kühle, T., Lutkemeier-Hosseinipour, S., Nies, A., Pröhl, G., Struck, S.: Langzeitsicherheitsanalyse des Endlagers Konrad: Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase. EU 076.1, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) mbH, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/324.34/EG/RB/0004/00

5 Neuberechnung der Strahlenexposition

5.1 Beschreibung

In der Phase 1 der ÜsiKo wurde die Langzeitsicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad im Hinblick auf sicherheitsrelevante Abweichungen im Stand von W&T zur Zeit des PFB zum Jahr 2019 begutachtet /RUE 19/. In Phase 1 wurde folgender Aspekt zur Bearbeitung in der ÜsiKo Phase 2 identifiziert: „*Seit dem PFB für das Endlager Konrad wurden sowohl die Strahlenschutzverordnung, als auch die AVV zur Berechnung der Strahlenexposition überarbeitet […]. Es wird empfohlen, die Dosisberechnung an die aktuelle Strahlenschutzverordnung […] anzupassen.“*

Dieser Aspekt ist als Delta 33 „*Neuberechnung der Dosiskonversionsfaktoren (nach aktuell gültiger Strahlenschutzverordnung)*“ in der veröffentlichten Liste der in Phase 1 der ÜsiKo ermittelten Deltas der BGE genannt /BGE 21/ und wurde in einem separaten Vorhaben bearbeitet /HOR 25/. Als Ergebnis dieses Vorhabens wurden aktualisierte Dosiskonversionsfaktoren (DKF) ermittelt. Die Grundlagen und das Vorgehen bei der Ermittlung der aktualisierten DKF sind dem genannten Bericht zu entnehmen. Die aktualisierten DKF werden im Folgenden verwendet, um mit langzeitsicherheitsanalytischen Rechenprogrammen Zeitverläufe der zusätzlichen effektiven Jahresdosis zu aktualisieren.

5.2 Bearbeitung

Im Folgenden werden mit langzeitsicherheitsanalytischen Rechenprogrammen Zeitverläufe der zusätzlichen effektiven Jahresdosis in der Biosphäre durch die Freisetzung von Radionukliden aus dem zukünftigen Endlager Konrad berechnet. Die Modellrechnungen werden für die beiden in /STO 86/ numerisch modellierten Ausbreitungspfade Unterkreidepfad und Oxfordpfad durchgeführt (vgl. Anhang A). Für den Oxfordpfad werden die Werte aller Modellparameter zur Beschreibung der Radionuklidmobilisierung aus den Abfällen, des Radionuklidtransports im Endlager und des Radionuklidtransports in der Geosphäre unverändert aus /STO 86/ übernommen. Für den Unterkreidepfad wird gemäß den Ergebnissen bei der Bearbeitung des Deltas 32 (vgl. Kapitel 4.3) abweichend zu /STO 86/ keine Sorption für Iod in den Plänerkalken angenommen. Zur Berechnung der zusätzlichen effektiven Jahresdosis in der Biosphäre in der Nachbetriebsphase des

Endlagers Konrad werden die DKF verwendet, die in der Phase 2 der ÜsiKo in /HOR 25/ abgeleitet wurden.

Die DKF geben an, welche jährlich gemittelte, bzw. über die Lebenszeit gemittelte zusätzliche jährliche Dosis in [Sv/a] eine Person in der Bevölkerung als Folge einer Kontamination des oberflächennahen Grundwassers mit Radionukliden mit einer Konzentration in [Bq/m³] erfährt. Die Rechnungen wurden mit dem Programmpaket RepoTREND durchgeführt (vgl. Anhang B), mit dem die Rechnungen der Langzeitsicherheitsanalyse von 1986 reproduziert werden können (vgl. Anhang C). Die Ergebnisse der Modellrechnungen zeigt Abb. 5.1 für die beiden genannten Ausbreitungspfade und für die folgenden drei Ergebnisgrößen:

1. Die zusätzliche effektive Jahresdosis für Kleinkinder im Alter von 1 bis 2 Jahren. Diese Altersgruppe weist den höchsten DKF für das dosisbestimmende Radionuklid Iod auf und führt somit zum Maximalwert der Dosis in der Biosphäre.

2. Die zusätzliche effektive Jahresdosis für Erwachsene älter als 17 Jahre.

3. Die über die Lebenszeit gemittelte zusätzliche effektive Jahresdosis einer repräsentativen Person von Geburt bis einschließlich des 70. Lebensjahres. Dies ist die nach /BASE 22/ vorgegebene Größe zur Bewertung der Einhaltung von Schutzzielen für die Nachverschlussphase eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle, die hier mangels einschlägiger Vorgaben für die Endlagerung von MAW/LAW Abfällen hilfsweise herangezogen wurde.

Der Zeitverlauf der zusätzlichen effektiven Jahresdosis in Abb. 5.1 zeigt zwei ausgeprägte Maxima. Weitere Beiträge ergeben sich durch Radionuklide mit Werten geringer als 10^{-7} Sv/a unterhalb des in Abb. 5.1 abgeschnittenen Bereichs. Das erste Maximum liegt bei etwa 323.000 Jahren für den Unterkreidepfad und 336.000 Jahren für den Oxfordpfad und wird jeweils durch das Radionuklid I-129 bestimmt. Für den Unterkreidepfad ist in der Flanke des ersten Maximums ein Nebenmaximum durch Tc-99 bei etwa 1,1 Mio. Jahren zu erkennen. Das zweite Maximum ergibt sich jeweils erst zu sehr späten Zeiten größer 10^7 Jahre und wird vor allem durch Radionuklide der Uran-Radium-Reihe bestimmt und dabei vorwiegend durch Pb-210 für den Unterkreidepfad und durch Ra-226 für den Oxford-Pfad.

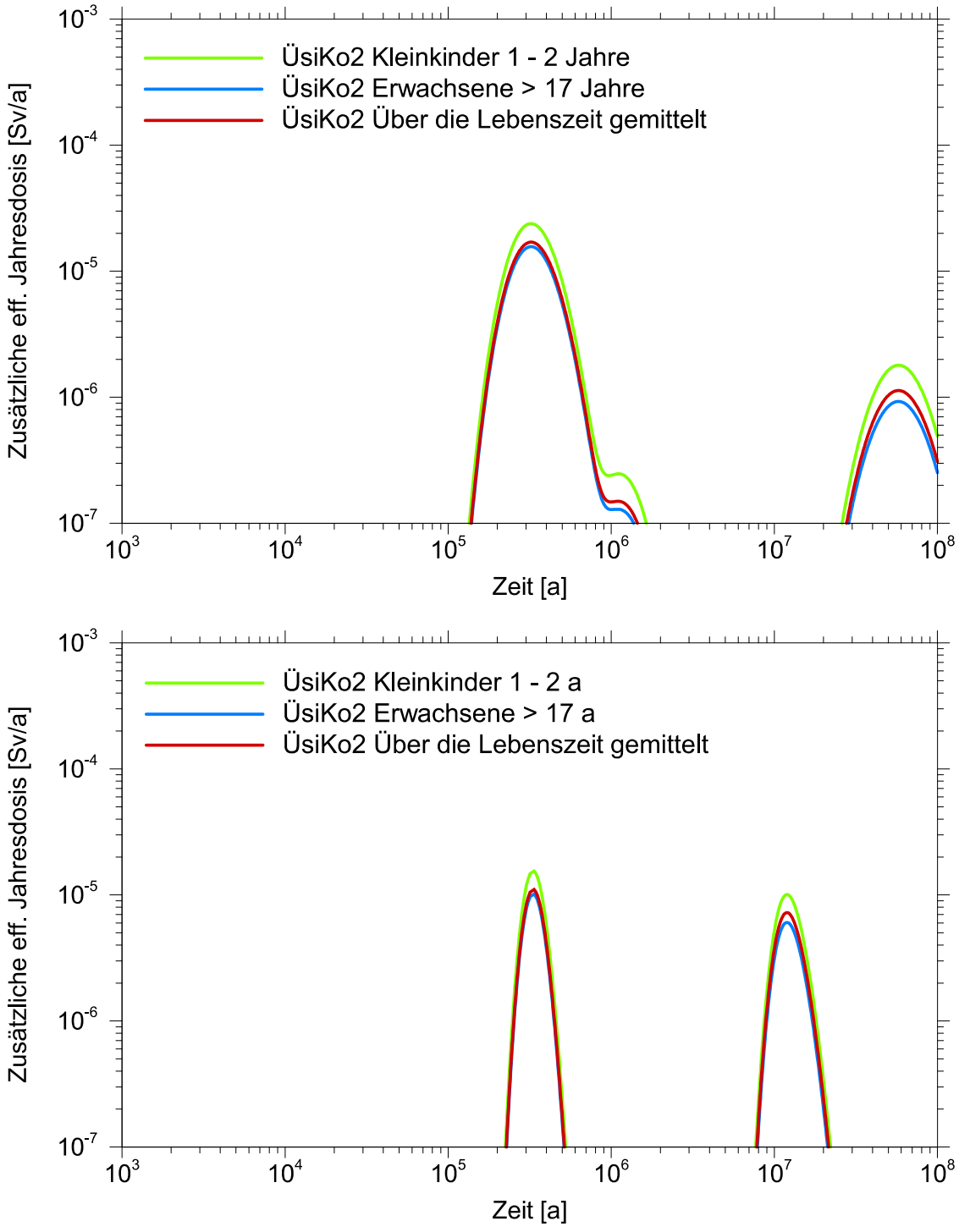

Abb. 5.1 Zeitverlauf der zusätzlichen effektiven Jahresdosis in der Biosphäre für den Unterkreidepfad (oben) und den Oxfordpfad (unten)

Vergleicht man die Ergebnisse der im Rahmen der ÜsiKo Phase 2 aktualisierten Rechnungen mit denen der LZSA Konrad /STO 86/, /PRO 91/ so übertragen sich die Unterschiede in den DKF direkt auf die Ergebnisse der Zeitverläufe der zusätzlichen effektiven Jahresdosis in der Biosphäre. Diese Unterschiede sind in Abb. 5.2 beispielhaft anhand des Quotienten der DKF aus /HOR 25/ und /PRO 91/ für die Altersklasse der Erwachsenen älter als 17 Jahre dargestellt, wobei die drei genannten dosisbestimmenden Radionuklide (I-129, Pb-210 und Ra-226) farblich hervorgehoben sind. In dieser Auftragung fällt die Abweichung umso kleiner aus, je näher der Quotient beider Größen bei eins liegt. Ein Wert kleiner eins bedeutet eine Abnahme und ein Wert größer eins eine Zunahme der DKF. Für die meisten Nuklide ist ein Rückgang der neu berechneten DKF zu verzeichnen /HOR 25/.

Für den Unterkreidepfad spielt zusätzlich zur Aktualisierung der DKF die Vernachlässigung der Sorption in der Oberkreide (vgl. Kapitel 4.3) eine wesentliche Rolle für den Zeitverlauf und den Wert der zusätzlichen effektiven Jahresdosis durch I-129.

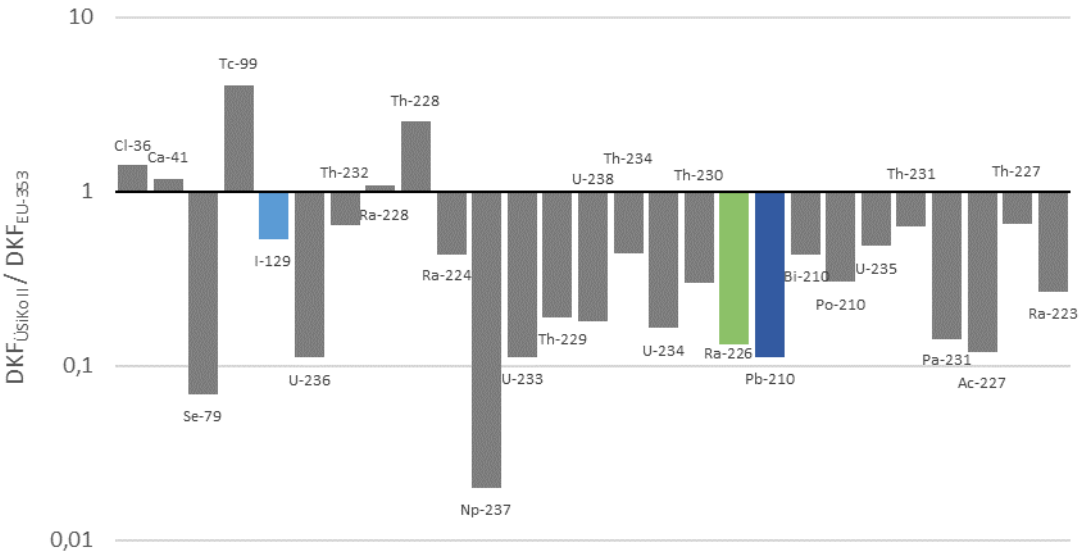

Abb. 5.2 Quotient der Dosiskonversionsfaktoren aller betrachteten Nuklide aus /HOR 25/ und /PRO 91/ für die Altersgruppe Erwachsene älter als 17 Jahre (nach /HOR 25/)

Farblich hervorgehoben sind die drei für die Freisetzung aus dem zukünftigen Endlager Konrad dosisrelevanten Radionuklide

Der nach /BASE 22/ bewertungsrelevante Indikator für die Endlagerung von hochaktiven radioaktiven Abfällen ist die über die Lebenszeit gemittelte zusätzliche effektive Jahresdosis. Der hier durchgeführten Neuberechnung der Strahlenexposition sollen diese Vorgaben zu Grunde gelegt werden, obgleich sie auf das Endlager Konrad keine Anwendung finden. Der Wert dieses Indikators liegt zu jedem Zeitpunkt zwischen den Werten für Kleinkinder von 1 – 2 Jahren und jenem für Erwachsene. Die Indikatorwerte der über die Lebenszeit gemittelten zusätzlichen effektiven Jahresdosis und die Zeitpunkte ihres Auftretens sind in Tab. 5.1 und Tab. 5.2 angegeben. Das absolute Maximum im Zeitraum bis 10^8 Jahre ergibt sich für beide Pfade durch I-129 bei etwas über 300.000 Jahren. Alle berechneten Werte für die Strahlenexposition liegen unterhalb des im PFB angesetzten Bewertungsmaßstab von 0,3 mSv/a.

Tab. 5.1 Eigenschaften des Maximums im Zeitraum bis 10^6 Jahre der über die Lebenszeit gemittelten zusätzlichen effektiven Jahresdosis einer repräsentativen Person

		Unterkreidepfad	Oxfordpfad
Zeitpunkt	[a]	323.000	336.000
Wert im Maximum	[Sv/a]	$1{,}7 \cdot 10^{-5}$	$1{,}1 \cdot 10^{-5}$
Bestimmendes Radionuklid		I-129	I-129

Tab. 5.2 Eigenschaften des Maximums im Zeitraum von 10^6 bis 10^8 Jahre der über die Lebenszeit gemittelten zusätzlichen effektiven Jahresdosis einer repräsentativen Person

		Unterkreidepfad	Oxfordpfad
Zeitpunkt	[a]	$5{,}7 \cdot 10^{7}$	$1{,}2 \cdot 10^{7}$
Wert im Maximum	[Sv/a]	$1{,}1 \cdot 10^{-6}$	$7{,}2 \cdot 10^{-6}$
Bestimmendes Radionuklid		Pb-210	Ra-226

5.3 Resümee

Der Einfluss des in /HOR 25/ bearbeiteten ∆33 auf den Zeitverlauf der potenziellen jährlich gemittelten Strahlenexposition in der Biosphäre durch die Freisetzung von Radionukliden aus dem zukünftigen Endlager Konrad wurde durch langzeitsicherheitsanalytische Rechnungen berechnet. Dabei wurde zusätzlich das Ergebnis von ∆32

berücksichtigt, wonach im Unterkreidepfad keine Sorption für Iod in den Plänerkalken anzunehmen ist.

Die Neuberechnung der Dosiskonversionsfaktoren in der ÜsiKo Phase 2 in /HOR 25/ führt gegenüber den Werten in /PRO 91/ aus dem Planfeststellungsverfahren tendenziell zu geringeren Werten der Dosiskonversionsfaktoren. Am ehesten sind die dargestellten Veränderungen auf die angepassten Ernährungsgewohnheiten in /BASE 22/ sowie auf Aktualisierungen der Dosis- und Transferfaktoren gegenüber 1991 zurückzuführen /HOR 25/. Diese Änderungen übertragen sich direkt auf die Ergebnisse der Zeitverläufe der zusätzlichen effektiven Jahresdosis in der Biosphäre.

Für die nach /BASE 22/ bewertungsrelevante Größe der über die Lebenszeit gemittelten zusätzlichen effektiven Jahresdosis ergibt sich für die beiden Ausbreitungspfade Unterkreidepfad und Oxfordpfad das absolute Maximum durch I-129 bei etwas über 300.000 Jahren mit Werten zwischen 1 bis $2 \cdot 10^{-5}$ Sv/a. Für den Zeitraum von einer bis zehn Million Jahre wird die zusätzliche effektive Jahresdosis durch Radionuklide der Uran-Radium-Reihe bestimmt. Es besteht aus langzeitsicherheitsanalytischer Sicht innerhalb der Ungewissheit der Betrachtungen kein qualitativer Unterschied zwischen den beiden betrachteten Ausbreitungspfaden bezüglich der in Tab. 5.1 und Tab. 5.2 genannten maximalen effektiven Dosis und des Zeitpunkts ihres Auftretens. Alle berechneten Werte für die Strahlenexposition liegen unterhalb des im PFB angesetzten Bewertungsmaßstab von 0,3 mSv/a.

Mit den in /HOR 25/ durchgeführten Betrachtungen wurde der Aspekt der Neuberechnung der Dosiskonversionsfaktoren und des zugeordneten Δ33 aus der Phase 1 der ÜsiKo vollständig bearbeitet. Mit der Neuberechnung der Strahlenexposition werden die Auswirkungen der beiden Deltas Δ32 und Δ33 zusammengeführt. Ein weiterer Überprüfungs- und Anpassungsbedarf ergibt sich nicht.

5.4 Literatur

/BGE 21/ Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) mbH: Auflistung der sicherheitsrelevanten Deltas und der Hinweise aus Phase 1 der ÜsiKo. INFO KONRAD, Salzgitter, Juli 2021.
https://www.bge.de/fileadmin/user_upload/Konrad/Wesentliche_Unterlagen/UEsiKo/Deltas_und_Hinweise_UesiKo_Phase_1.pdf (27.01.2022)

/BASE 22/ Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE): Berechnungsgrundlage für die Dosisabschätzung bei der Endlagerung von hochradioaktiven Abfällen, Dezember 2022, BAnz AT 30.12.2022 B15.

/HOR 25/ Horenburg, P.; Noseck, U.; Rübel, A.; Wolf, J.: Projekt Konrad – Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Abschlussbericht zur Phase 2: Dosiskonversionsfaktoren. GRS-A-4079, Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Braunschweig, 2025.

/PRO 91/ Pröhl, G.: Berechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad nach der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift. EU 353 Rev. 1, Gesellschaft für Strahlen und Umweltforschung mbH, Institut für Strahlenschutz, München, 1991. VDIS-KZL: 9K/352127.32/EG/RB/0012/01

/RUE 19/ Rübel, A.; Behler, M.; Feinhals, J., Mönig, J., Poppei, J., Rätz, D., Wolf, J.: Projekt Konrad - Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Überprüfung der sicherheitsrelevanten Anforderungen zur Langzeitsicherheit, Kritikalität in der Nachbetriebsphase und thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins. Abschlussbericht zur Phase 1: Ermittlung des Überprüfungsbedarfs. Braunschweig: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, AF-Consult Switzerland Ltd., DMT GmbH & Co. KG, 2019. VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0009/00

/STO 86/ Storck, R., Butow, E., Heredia, L., Hossain, S., Kühle, T., Lutkemeier-Hosseinipour, S., Nies, A., Pröhl, G., Struck, S.: Langzeitsicherheitsanalyse des Endlagers Konrad: Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase. EU 076.1, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) mbH, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/324.34/EG/RB/0004/00

6 Zusammenfassung

Die in diesem Bericht beschriebenen Arbeiten sind Teil der Phase 2 („Aktualisierung von Sicherheitsanalysen“) der ÜsiKo. Im Rahmen der durchgeführten Analysen wurden die neun in der ersten Phase der ÜsiKo identifizierten Deltas bewertet, die die Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase im Grubengebäude und in der Geosphäre betreffen. Die identifizierten Deltas der Phase 1 bezüglich der Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase werden drei Aspekten zugeordnet, für die die folgenden Ergebnisse ermittelt wurden:

Aspekt 1: Bewertung des Radionuklidtransports in der Gasphase

Dieser Aspekt umfasst den Radionuklidtransport in der Gasphase im Grubengebäude sowie in der Geosphäre und die potenzielle Bildung von Gasfracs im Wirtsgestein.

Die erwartete Entwicklung des Endlagersystems bezüglich der Gasbildung und des Radionuklidtransports in der Gasphase wurde nach aktuellem Stand von W&T beschrieben, die im Endlager Konrad in der Nachbetriebsphase gebildeten Gasmengen und Gasbildungsraten abgeschätzt und dargelegt, dass zu erwarten ist, dass in der Nachbetriebsphase Gas aus dem Grubengebäude in die Geosphäre entweicht.

Es wurden Rechnungen zur Untersuchung der Gasausbreitung durchgeführt und gezeigt, dass für keine der anzunehmenden Fälle die Gasphase in die Unterkreide eindringen kann. Radioaktive Gase werden nicht bis in die Biosphäre transportiert, und eine Strahlenexposition in der Biosphäre ist somit nicht zu betrachten.

Bei den gewählten Modellbedingungen ist die Bildung von Gasfracs und damit neuen Wegsamkeiten für den Transport der Gasphase in der Unterkreide ausgeschlossen.

Aspekt 2: Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide

Dieser Aspekt betrifft die Bewertung des Einflusses von Kolloiden auf den Radionuklidtransport in der Geosphäre.

Als Grundlage für die Bearbeitung des Aspekts zum möglichen Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide wurde eine Literaturrecherche zum aktuellen

Stand von W&T zu Kolloiden in einem Endlager mit zementhaltigen Abfällen durchgeführt. Diese zeigt, dass die Bildung von Kolloiden unter den geochemischen Bedingungen des Endlagers Konrad zunächst nicht ausgeschlossen werden kann.

Modellrechnungen zeigen allerdings, dass bei der am Standort Konrad nach der Literaturstudie anzunehmenden Desorptions- und Filtrationsrate für die Kolloide ein Einfluss von Kolloiden auf den Transport gelöster Radionuklide am Standort Konrad auszuschließen ist.

Zusätzlich zu betrachten sind Eigenkolloide der Radionuklide. Es wird derzeit davon ausgegangen, dass Eigenkolloide nur in Anwesenheit der Festphase des jeweiligen Actinids stabil sind. Hier fehlen allerdings noch experimentelle Nachweise. Unter dieser Annahme zeigen Modellrechnungen aufgrund des sehr langen Transportwegs und der sehr langen Transportzeiten, dass sich Eigenkolloide nicht auf die Freisetzungsraten der Radionuklide in das oberflächennahe Grundwasser auswirken.

Aspekt 3: Überprüfung des Unterkreidepfades

Dieser Aspekt umfasst eine Bewertung der Ausbreitung gelöster Radionuklide über den Unterkreidepfad bezüglich der Diffusion, der Sorption von Iod in der Oberkreide sowie des berücksichtigten Transportpfades.

Bei der Überprüfung der Berücksichtigung der Diffusion im Unterkreidepfad zeigt sich als Ergebnis einer durchgeführten numerischen Analyse kein Unterschied gegenüber der Langzeitsicherheitsanalyse von 1989.

Die Bewertung des Unterkreidepfades bezüglich der Sorption von I-129 an den Plänerkalken zeigt, dass die Annahme einer Sorption von Iod an den Plänerkalken in der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad nach dem aktuellen Stand von W&T als nicht gerechtfertigt erscheint. Auch der Datensatz des Gutachters NLfB im PFV hat in bereits keine Sorption von Iod in der Oberkreide angenommen. Bei Vernachlässigung der Sorption von Iod an den Plänerkalken in der langzeitsicherheitsanalytischen Transportrechnung ergibt sich für den Unterkreidepfad eine um einen Faktor 8,25 höhere Konzentration von I-129 im oberflächennahen Aquifer gegenüber einer Rechnung mit Berücksichtigung der Sorption. Der Zeitpunkt des Auftretens des Maximums reduziert sich auf etwa 323.000 Jahre. Die erhöhte Konzentration von I-129 im oberflächennahen Aquifer wird bei der Dosisberechnung für den Unterkreidepfad berücksichtigt.

Neuberechnung der Strahlenexposition

Die Neuberechnung der Dosiskonversionsfaktoren in einem anderen Vorhaben der Phase 2 der ÜsiKo (/HOR 25/) hat Auswirkungen auf die Zeitverläufe der zusätzlichen effektiven Jahresdosis in der Biosphäre. Dieser Einfluss wurde im Rahmen der hier durchgeführten Arbeiten bewertet. Dabei wurde zusätzlich das Ergebnis der hier durchgeführten Arbeiten berücksichtigt, wonach im Unterkreidepfad keine Sorption für Iod in den Plänerkalken anzunehmen ist. Alle anderen Annahmen entsprechen der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad /STO 86/.

Für den Zeitraum bis einer Million Jahre ist das dosisbestimmende Radionuklid I-129. Für den Zeitraum von einer bis hundert Million Jahre wird die zusätzliche effektive Jahresdosis durch Radionuklide der Uran-Radium-Reihe bestimmt. Für die nach /BASE 22/ bewertungsrelevante Größe für die Endlagerung von hochaktiven radioaktiven Abfällen der über die Lebenszeit gemittelten zusätzlichen effektiven Jahresdosis ergibt sich für beide Ausbreitungspfade das absolute Maximum durch I-129 bei etwas über 300.000 Jahren mit Werten zwischen 1 bis $2 \cdot 10^{-5}$ Sv/a.

Mit den durchgeführten Betrachtungen sind alle in der ersten Phase der ÜsiKo identifizierten Aspekte und deren Deltas zum Radionuklidtransport vollständig bearbeitet. Ein weiterer Überprüfungsbedarf ergibt sich nicht.

7 Literatur

Anmerkung: In diesem Literaturverzeichnis ist ausschließlich diejenige Literatur aufgeführt, die in der Einleitung und Zusammenfassung dieses Berichts zitiert wird.

Da die Dokumentation zur Bearbeitung der Aspekte und Deltas unabhängig voneinander lesbar und verständlich sein soll, sind die entsprechenden Literaturquellen für jedes Kapitel erster Ebene (jeden Aspekt) und jeden Anhang separat am Ende des entsprechenden Kapitels angegeben (siehe Kapitel 2.6, 3.4, 4.5, 5.4, A.3, B.1 und C.1).

/BASE 22/ Bundesamt für die Sicherheit der nuklearen Entsorgung (BASE): Berechnungsgrundlage für die Dosisabschätzung bei der Endlagerung von hochradioaktiven Abfällen, Dezember 2022, BAnz AT 30.12.2022 B15.

/BFS 16/ Bundesamt für Strahlenschutz (BfS): Vorhabenbeschreibung Endlager Konrad: Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen nach dem Stand von Wissenschaft und Technik, 2016. VDIS-KZL: 9KE/25232/XG/BS/0001/00

/BGE 21/ Bundesgesellschaft für Endlagerung (BGE) mbH: Auflistung der sicherheitsrelevanten Deltas und der Hinweise aus Phase 1 der ÜsiKo. INFO KONRAD, Salzgitter, Juli 2021.
https://www.bge.de/fileadmin/user_upload/Konrad/Wesentliche_Unterlagen/UEsiKo/Deltas_und_Hinweise_UesiKo_Phase_1.pdf (27.01.2022)

/HOR 25/ Horenburg, P.; Noseck, U.; Rübel, A.; Wolf, J.: Projekt Konrad – Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Abschlussbericht zur Phase 2: Dosiskonversionsfaktoren. GRS-A-4079, Gesellschaft für Anlagen und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, Braunschweig, 2025.

/PRO 91/ Pröhl, G.: Berechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad nach der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift. EU 353 Rev. 1, Gesellschaft für Strahlen und Umweltforschung mbH, Institut für Strahlenschutz, München, 1991. VDIS-KZL: 9K/352127.32/EG/RB/0012/01

/ROE 19/ Röhlig, K., Küppers, C., Schäfer, T., Walther, C.: Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo) Review der Phase 1 „Ermittlung des Überprüfungsbedarfs“; VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0011/00, 2019

/RUE 19/ Rübel, A.; Behler, M.; Feinhals, J., Mönig, J., Poppei, J., Rätz, D., Wolf, J.: Projekt Konrad - Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Überprüfung der sicherheitsrelevanten Anforderungen zur Langzeitsicherheit, Kritikalität in der Nachbetriebsphase und thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins. Abschlussbericht zur Phase 1: Ermittlung des Überprüfungsbedarfs. Braunschweig: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, AF-Consult Switzerland Ltd., DMT GmbH & Co. KG, 2019. VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0009/00

/STO 86/ Storck, R., Butow, E., Heredia, L., Hossain, S., Kühle, T., Lutkemeier-Hosseinipour, S., Nies, A., Pröhl, G., Struck, S.: Langzeitsicherheits-analyse des Endlagers Konrad: Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase. EU 076.1, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) mbH, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/324.34/EG/RB/0004/00

A Grundzüge der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad

Auf diesen Anhang wird Bezug genommen bei der Bearbeitung der Aspekte 1, 2 und 3 und bei der Neuberechnung der Strahlenexposition.

Dieser Anhang fasst die für diesen Bericht relevanten Grundlagen zur langzeitsicherheitlichen Betrachtung für das Endlager Konrad in /STO 86/ für das Grubengebäude und die Geosphäre zusammen. Der Text besteht dabei aus Auszügen des Kapitels 2 des Berichts zur Bewertung der Radionuklidausbreitung in der ÜsiKo Phase 1 /RUE 19/.

Die erwartete Entwicklung des Endlagers Konrad stellt sich gemäß Plan zusammengefasst wie folgt dar: In der Nachbetriebsphase wird sich der durch die Wasserhaltung während des Betriebs des Bergwerks gebildete Absenkungstrichter des Grundwassers langsam wieder auffüllen. Danach stellt sich der natürliche Gradient in den entsprechenden Grundwasserregimen wieder ein, was zu einer ungestörten regionalen Grundwasserbewegung sowie zu einer Grundwasserbewegung durch das Grubengebäude führt.

Durch Kontakt des Grundwassers mit dem endgelagerten Abfall werden die Radionuklide in Abhängigkeit von der Standzeit der Abfallgebinde und dem Abfallprodukt mobilisiert und unter Einfluss von Sorption und Löslichkeit im Nahbereich in das Grundwasser freigesetzt. Aus dem Grubenbereich gelangen die gelösten Radionuklide in die Geosphäre und werden advektiv mit dem Grundwasser in Abhängigkeit von Sorption, Diffusion und Dispersion in die Biosphäre transportiert. Mit der Ausbreitung der Radionuklide in der Biosphäre und einem Transfer der Radionuklide aus dem kontaminierten Wasser zum Menschen lässt sich über Nutzungsarten und Nahrungsketten sowie Aufenthalte auf kontaminierten Flächen eine potenzielle Strahlenexposition des Individuums ermitteln.

A.1 Vorgänge im Grubengebäude

Nach dem Verschluss des Endlagers wird Grundwasser aus dem Wirtsgestein in die Grube zutreten. Die Dauer bis zur vollständigen Sättigung der Grubenhohlräume mit Lösung wird aus analytischen Rechnungen und experimentellen Ergebnissen zu 115 Jahren abgeschätzt. In der Langzeitsicherheitsanalyse wird die Zuflussdauer jedoch nicht berücksichtigt, stattdessen wird eine sofortige Flutung des Grubengebäudes durch

Grundwasser unterstellt. Eine Verzögerung der Freisetzung radioaktiver Stoffe aus den Abfallgebinden wird ebenfalls vernachlässigt. Die Mobilisierung von Radionukliden aus den Abfällen beginnt somit modellmäßig mit dem Beginn der Nachbetriebsphase. Aus experimentell ermittelten Daten und Modellierungen wurden nuklidspezifische Auslaugraten für sieben Abfallkategorien ermittelt. Diese wurden zu vier Mobilisierungsgruppen zusammengefasst. Die Mobilisierungsdauern liegen abhängig von Radionuklid und Mobilisierungsgruppe zwischen 0 und 600 Jahren und wurden durch Modellrechnungen abgeleitet, die wiederum auf nationalen und internationalen experimentellen Untersuchungen und Literaturdaten basieren.

Für die Berechnung des Transports von Radionukliden im Grubengebäude wurden der advektive Transport der Radionuklide durch Strömung sowie eine Verzögerung des Transports durch Sorption und durch die Möglichkeit einer Ausfällung von Radionukliden in eine feste Phase bei dem Überschreiten von Löslichkeitsgrenzen berücksichtigt. Die Durchströmung des Grubengebäudes erfolgt entsprechend der Strömung des regionalen Grundwassers. Der im Modell angesetzte Volumenstrom durch das Grubengebäude wurde aus den im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalyse durchgeführten Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung am Standort abgeleitet (siehe folgendes Unterkapitel).

Es wurden Löslichkeiten für die Actiniden mit formationsspezifischen Wässern experimentell bestimmt und teilweise auch Literaturdaten herangezogen. Für die Rückhaltung der Radionuklide durch Sorption wurde in der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad eine Gleichgewichtssorption nach der linearen Henry-Isotherme betrachtet. Der Proportionalitätsfaktor dieser Isotherme, der K_d-Wert, wurde für viele Elemente aus Experimenten an standortspezifischen Materialien und Wässern abgeleitet. Dabei wurde die Abhängigkeit vom Volumen/Masse-Verhältnis und der EDTA-Konzentration als Komplexbildner berücksichtigt.

Ergebnisse der Betrachtungen für das Grubengebäude sind die zeitlichen Freisetzungsverläufe von Radionukliden aus dem Grubenbereich in die Geosphäre (siehe Abb. A.1). Danach erfolgt die Aktivitätsfreisetzung für die Spalt- und Aktivierungsprodukte innerhalb einiger tausend bis zehntausend Jahre, während sie sich für die Actiniden über Hunderttausende bis Millionen von Jahren erstreckt.

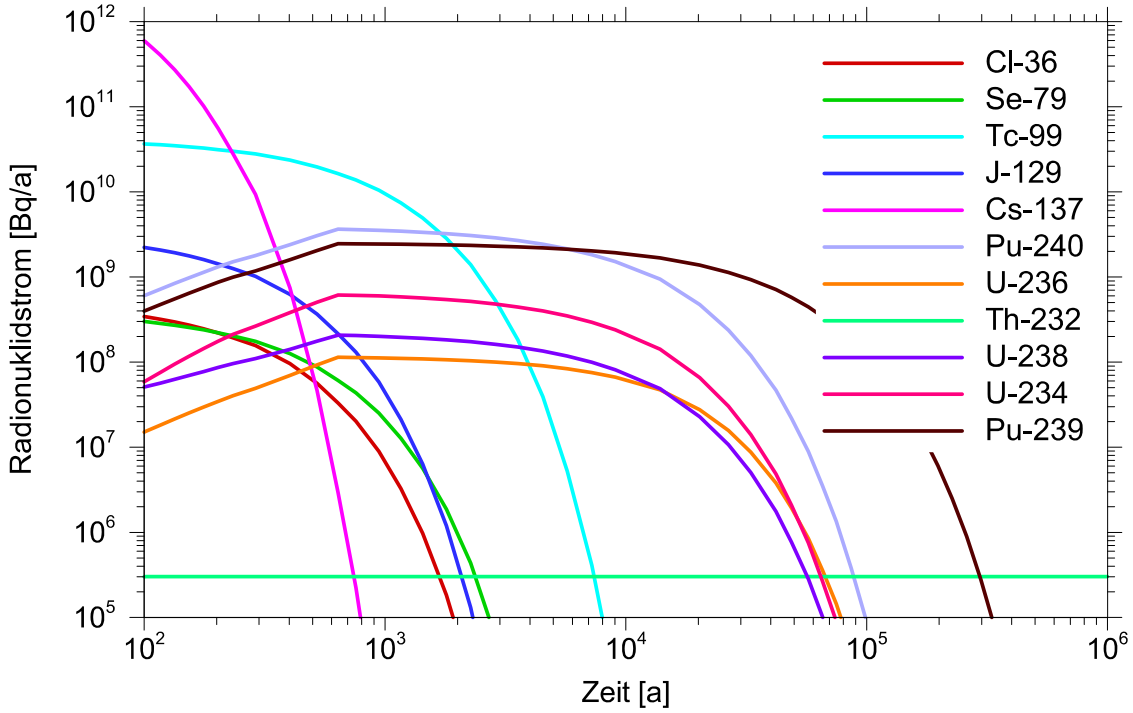

Abb. A.1 Radionuklidstrom aus dem Grubengebäude für ausgewählte Radionuklide

A.2 Vorgänge in der Geosphäre

Die Modellierung der großräumigen Grundwasserbewegung an einem Endlagerstandort ist Bestandteil der Analyse zur Langzeitsicherheit eines Endlagers. Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung ermöglichen das Auffinden potenzieller Ausbreitungswege von Radionukliden vom Endlager bis in die Biosphäre. Die notwendigen Kenntnisse über die Geologie für die Bewertung der Grundwasserbewegung wurden durch geowissenschaftliche Untersuchungen und durchgeführte Erkundungsarbeiten gewonnen. Das Deckgebirge besteht aus einer mächtigen Abfolge verhältnismäßig homogener Gesteinseinheiten. Die vorkommenden Gesteinsformationen bilden eine einfache geologische Struktur. Die Beschreibung der Geologie im Kapitel 3.1.9.1 des Plans Konrad umfasst folgende Schichten (von jung nach alt):

- Quartär,
- Tertiär,
- Kreide: Oberkreide, Alb, Wealden bis Apt,
- Jura: Portland, Kimmeridge, Oxford, Bathonium bis Callovium, Obertoarcium bis Bajocium, Lias (Hettangium bis Untertoarcium),

- Trias: Keuper, Oberer Buntsandstein bis Muschelkalk, Unterer bis Mittlerer Buntsandstein,
- Perm: Zechstein.

Die in der Schachtanlage Konrad in 800 m bis 1.300 m Tiefe abgebaute Eisenerzformation (Korallenoolith) ist Teil der geologischen Stufe Oxford. Geografisch erstreckt sich das Oxford zungenförmig von Norden nach Süden und ist im Osten, Süden und Südwesten räumlich begrenzt, so dass dort die Sedimente der Unterkreide direkt auf den älteren geologischen Einheiten des Dogger abgelagert sind. Die lückenlose Verbreitung der Barriereschichten im Hangenden und Liegenden der Endlagerformation konnte über die Grenzen des Modellgebiets der Langzeitsicherheitsanalyse hinaus nachgewiesen werden. Die Ton- und Tonmergelgesteine der Unterkreide haben eine großflächige Verbreitung und besitzen große Mächtigkeiten von bis zu 700 m (tiefere Unterkreide: 170 – 400 m; höhere Unterkreide: 210 – 300 m). Bohrungen belegen, dass die Unterkreide überall in der Region lithologisch gleichartig ausgebildet ist. Mit dem Cornbrash-Sandstein (im Dogger) und Hilssandstein (in der Unterkreide) treten aber auch Gesteine mit erhöhten Durchlässigkeiten auf. Die in der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad betrachtete Schichtenfolge ist in Tab. A.1 dargestellt.

Tab. A.1 In der Langzeitsicherheitsanalyse für das Endlager Konrad betrachtete Schichtenfolge mit den angenommenen Durchlässigkeitsbeiwerten k_f im Modell (aus /RUE 19/ nach /STO 86/)

System	Serie	Stufe	Mächtigkeit [m]	Gesteinsart oder Schichtbezeichnung	k_f [m/s]
Quartär			0 – 100	Sande, Kiese, Geschiebemergel	10^{-5}
Tertiär			0 – 150	tonige Sande	
Kreide	Ober-kreide	Santon	0 – 500	Emscher Mergel, mergelige Tone und Mergel	10^{-8}
		Coniac			
		Turon	0 – 300	Plänerkalke, Mergelkalke	10^{-7}
		Cenoman			
	Unter-kreide	Alb	25 – 35	Flammenmergel	10^{-10} / 10^{-12}
			150 – 300	Ton- und Mergelsteine	
			0 – 100	Hilssandstein	10^{-5}
		Apt	175 – 400	Ton- und Mergelsteine	10^{-10} / 10^{-12}
		Barreme			
		Hauterive			
		Valendis			
		Wealden		Tonsteine, z.T. sandig	10^{-8}
Jura	Malm	Portland	200 – 900	Ton- und Mergelsteine	
		Kimmeridge		Ton- und Mergelsteine mit Anhydrit	
		Oxford	0 – 150	Kalkstein, Kalkoolith, Tonmergelsteine, Eisenoolith, Kieselige Kalke	10^{-7}
	Dogger	Callovium	60 – 400	Ton- und Mergelsteine	10^{-10}
		Bathonium	30	Cornbrash Sandstein	10^{-6}
		Bajocium	200 – 900	Tonmergelsteine	10^{-10}
		Aalenium		Sandsteinhorizont, Ton- und Mergelsteine	
	Lias			Ton- und Mergelsteine, an der Basis Feinsandsteine	
Trias	Keuper	Oberer Keuper (Rhät)	60	Sandsteine	10^{-6}
		Mittlerer Keuper	60 – 600	Ton- und Mergelsteine mit 20 – 25 m Feinsandstein	10^{-10}
		Unterer Keuper		Mergel	
	Muschel-kalk	Oberer Muschelkalk	60	Kalksteine	10^{-6}

Legende:

Grundwasser-
- Leiter
- Geringleiter
- Nichtleiter

Klüftig:

Im Standortgebiet besteht ein mehrgliedriger hydrogeologischer Stockwerksbau. Der oberflächennahe Grundwasserleiter ist durch die unterlagernden Tonsteine der Unterkreide von den tieferen Grundwasserleitern getrennt. Der Einlagerungshorizont ist im Hangenden von den Tonsteinen der Unterkreide und im Liegenden von den Ton- und Mergelsteinen des Dogger und Lias eingeschlossen. Im Süden beißen die Grundwasserleiter am durch Salzaufstieg entstandenen Salzgitterhöhenzug aus, wodurch eine Infiltration von Grundwasser in die Schichten des Hilssandstein, Keuper und Muschelkalk erfolgt. Die Schicht des Oxford, in dem sich das Endlager befindet, streicht im Norden in der Gegend von Calberlah aus. Die Potenzialdifferenz zwischen Süden und Norden beträgt im Modellgebiet etwa 100 bis 150 m. Die Ton- und Mergelsteine der Unterkreide, des Mittleren und Unteren Jura und des Keuper zeigen generell sehr geringe Durchlässigkeiten, die zwischen $k_f = 10^{-10}$ m/s und 10^{-13} m/s liegen. Die Trennung der oberen und unteren Grundwasserleiter durch die mächtigen Tonschichten der Unterkreide bewirkt einen charakteristischen Verlauf des Salzgehalts mit der Tiefe.

Der Nachweis der Langzeitsicherheit des Endlagers Konrad wird mit Hilfe geohydraulischer Modellrechnungen und auf deren Ergebnissen aufbauenden Transportmodellen geführt. Das hydrogeologische Modell wird in ein numerisches Modell umgesetzt, das in seiner Schichtenfolge das hydrogeologische Modell widerspiegelt. Dabei werden Vereinfachungen bezüglich der Anzahl der betrachteten Schichten vorgenommen.

Die hydraulischen Kenndaten der Sedimentgesteine gleicher stratigraphischer Einheiten sind grundsätzlich nicht räumlich konstant. Je nach regionalen oder lokalen Unterschieden der Ablagerungsbedingungen der Gesteine bestehen regionale bzw. lokale Variationen. Diagenetische Einflüsse verstärken diese Heterogenität zusätzlich. Einen Extremfall stellen dabei klüftige oder verkarstete Wasserleiter dar. Hier existieren Zonen hoher Wasserwegsamkeit neben geringdurchlässigen Bereichen. Allen Formationen werden Parameter-Bandbreiten so zugewiesen, dass entsprechend geologischer Erfahrung die großräumig wirksamen mittleren Durchlässigkeiten und Porositäten abgedeckt werden. Die Entscheidung darüber, welche Durchlässigkeiten und Porositäten zur Berechnung der Strömungspfade und Grundwasserlaufzeiten aus dem Bereich realistischer Werte in das hydrogeologische Modell eingehen, wurde wie folgt getroffen: Zeigt sich bei Sensitivitätsanalysen eine empfindliche Abhängigkeit der berechneten Radionuklid-Transportzeit vom betrachteten Parameter, geht als konservativer Ansatz derjenige Wert als endgültiger Modellwert in die Simulationsrechnung ein, der zu kleinen Laufzeiten vom

Einlagerungsort bis zur Biosphäre führt. Bei weniger sensibler Abhängigkeit werden die Werte angenommen, die nach geologischer Erfahrung wahrscheinlich sind.

An zahlreichen Stellen im Modellgebiet werden die Schichten von Störungen verworfen. Im hydrogeologischen Modell wurden zunächst nur solche Verwerfungen als hydraulisch wirksam berücksichtigt, durch die verschiedene Grundwasserleiter miteinander in Berührung kommen, z. B. der Obere Muschelkalk und der Rhätsandstein. Im numerischen Modell werden zwei unterschiedliche Vorgehensweisen gewählt:

- Schichtenmodell: Bei einem Versatz eines Wasserleiters gegen undurchlässige Ton- und Mergelsteine wurde keine Störung im Modell berücksichtigt. Die nach hydrogeologischer Erfahrung realistischen Parameter für ganze Schichteinheiten werden in konservativer Weise so gewählt, dass sie eventuell lokal vorhandene Faziesunterschiede und tektonische Strukturen berücksichtigen.
- Störzonenmodell: Zonen erhöhter Durchlässigkeit an wichtigen tektonischen Störungen, an Salzstockrändern sowie in einzelnen Horizonten werden explizit im Modell berücksichtigt. Es werden im Störzonenmodell realitätsnähere Werte für die großräumige Gebirgsdurchlässigkeit als im Schichtmodell angesetzt, die dann lokal im Bereich von Störungszonen verändert werden.

Insgesamt wurden von dem Antragsteller und dem Gutachter fünf unterschiedliche Rechenprogramme für numerische Modellrechnungen eingesetzt. In der Langzeitsicherheitsanalyse (EU 76.1) wurde das Programm SWIFT verwendet. In den Rechnungen mit SWIFT wurden sieben Varianten betrachtet, von denen letztendlich zwei Varianten, die sich bezüglich der Parametrisierung der Durchlässigkeit der Unterkreidetone unterscheiden, für die weiteren Betrachtungen zum Radionuklidtransport ausgewählt wurden. Die zwei Varianten sind:

- Unterkreidepfad: Die Unterkreide hat eine Durchlässigkeit von 10^{-10} m/s. Bei dieser Variante verlaufen die Fließwege zunächst unterschiedlich lange nahezu horizontal im Oxford (Durchlässigkeit 10^{-7} m/s) und Kimmeridge (Durchlässigkeit 10^{-8} m/s) nach Norden. Danach findet ein vertikaler Aufstieg durch die Unterkreidetonsteine statt. In den Plänerkalken bewegen sich die betrachteten Wasserpartikel noch etwas weiter nach Norden. Die Stromlinien enden in der obersten Schicht des Modells.
- Oxfordpfad: Die Unterkreide hat eine Durchlässigkeit von 10^{-12} m/s. Bei dieser Variante bewegt sich das Wasser aus dem Lagerbereich vorwiegend im Oxford (Durch-

lässigkeit 10^{-7} m/s). Eine Wasserbewegung aus dem Lagerbereich in die Unterkreidetonsteine findet kaum statt. Es ergeben sich ähnliche Laufzeiten wie in Variante 1, aber die dabei zurückgelegten Wege sind länger.

Basis des Transportmodells der Langzeitsicherheitsanalyse sind die Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung, aus denen per Partikelverfolgung (Particle Tracking) Stromlinien ermittelt werden. Für die unterschiedlichen Varianten der Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung ergeben sich auch unterschiedliche Ausbreitungspfade für Radionuklide. Dementsprechend werden aus den zwei Varianten der Modellrechnungen der Grundwasserbewegung drei verschiedene Fließpfade identifiziert und als drei Ausbreitungsszenarien untersucht, die von Ia bis Ic nummeriert werden (siehe auch eingezeichnete Pfade in Abb. A.2):

Ia: Unterkreidepfad (aus Variante 1 der Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung mit hoher Durchlässigkeit der Unterkreide),
Ib: Oxfordpfad (aus Variante 2 der Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung mit geringer Durchlässigkeit der Unterkreide) und
Ic: Cornbrashpfad (aus Variante 2 der Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung mit geringer Durchlässigkeit der Unterkreide).

Für jedes der drei Szenarien werden jeweils die drei schnellsten per Particle Tracking ermittelten Fließpfade herangezogen und daraus das Mittel der Länge der Fließpfade für jede geologische Einheit gebildet. Entlang des Modellfließpfades wird dadurch ein 1D-Modell definiert, das in den Weglängen und der Geologie den durchströmten Schichten entspricht. Die Querschnittsfläche des Modells wird aus dem Volumenstrom des Wassers und der mittleren Strömungsgeschwindigkeit entsprechend der Modellrechnungen zur Grundwasserbewegung ermittelt. Für die Berechnung des Transports von Radionukliden in der Geosphäre wurden folgende Prozesse berücksichtigt:

- der Einstrom der Radionuklide aus dem Nahfeld, d. h. dem Grubengebäude,
- der advektive Transport der Radionuklide durch die Strömung des Grundwassers,
- der Transport der Radionuklide durch Diffusion und Dispersion,
- die Verzögerung des Transports durch Sorption der Radionuklide am Gestein und
- der Zustrom von Grundwässern in den Fließpfad und somit eine Verdünnung der Radionuklidkonzentrationen.

Ergebnisse der Berechnungen sind die Konzentrations-Zeitverläufe der Radionuklide im Grundwasser des quartären Grundwasserleiters, die die Basis für die Berechnung der potenziellen Strahlenexposition in der Biosphäre darstellen.

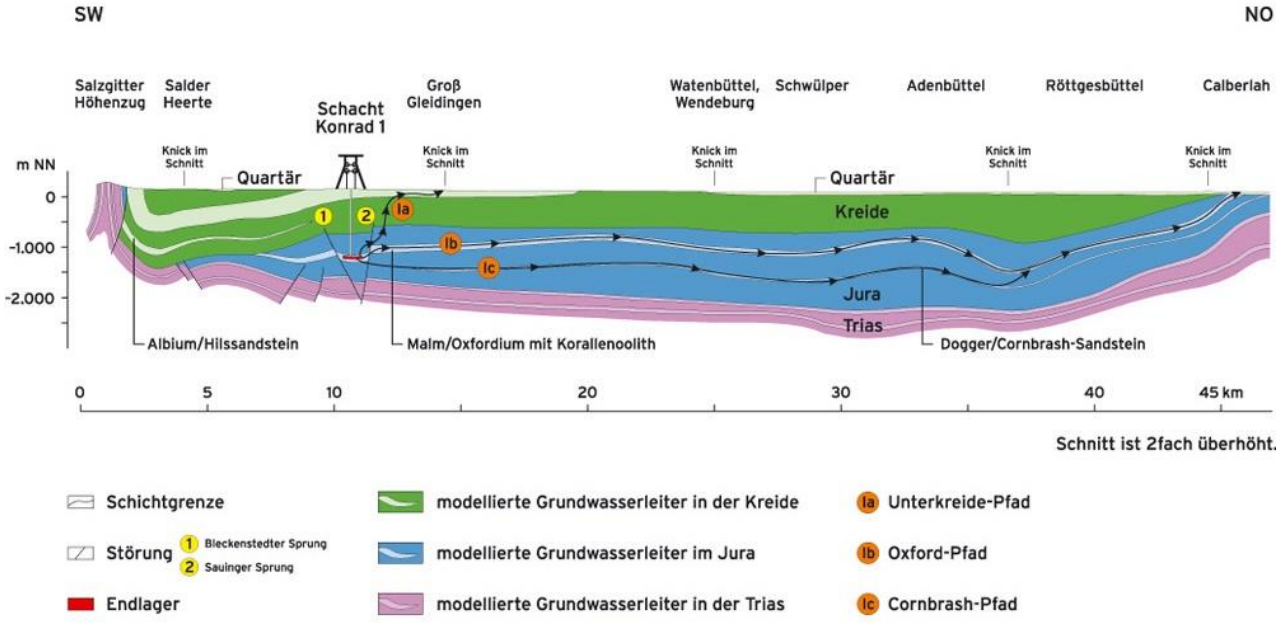

Abb. A.2 Schnitt (E-E´) durch das Modellgebiet mit Darstellung der modellierten Ausbreitungspfade (BfS, abgerufen 2017)

A.3 Literatur

/RUE 19/ Rübel, A.; Behler, M.; Feinhals, J., Mönig, J., Poppei, J., Rätz, D., Wolf, J.: Projekt Konrad - Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Überprüfung der sicherheitsrelevanten Anforderungen zur Langzeitsicherheit, Kritikalität in der Nachbetriebsphase und thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins. Abschlussbericht zur Phase 1: Ermittlung des Überprüfungsbedarfs. Braunschweig: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, AF-Consult Switzerland Ltd., DMT GmbH & Co. KG, 2019. VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0009/00

/STO 86/ Storck, R., Butow, E., Heredia, L., Hossain, S., Kühle, T., Lutkemeier-Hosseinipour, S., Nies, A., Pröhl, G., Struck, S.: Langzeitsicherheits-analyse des Endlagers Konrad: Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase. EU 076.1, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) mbH, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/324.34/EG/RB/0004/00

B Langzeitsicherheitsanalytische Rechenprogramme

Auf diesen Anhang wird Bezug genommen bei der Bearbeitung der Aspekte 2 und 3 und bei der Neuberechnung der Strahlenexposition.

Integrierte Langzeitsicherheitsnachweiscodes zur Berechnung des Radionuklidtransports beschreiben in der Regel nicht das gesamte Endlagersystem, sondern sie enthalten eigenständige Module für Teilsysteme eines Endlagersystems. In vielen Fällen werden die folgenden Teilsysteme unterschieden:

- Endlager (Nahfeld),
- Geosphäre (Fernfeld),
- Biosphäre.

Für eine langfristige Bewertung der Sicherheit von Endlagern für radioaktive Abfälle wird von der GRS das Programmpaket RepoTREND (Transport and REtention of Non-decaying and Decaying contaminants in a final REPOsitory) entwickelt und angewendet /REI 16/. In diesem Programmpaket sind alle relevanten Prozesse implementiert, die zur Mobilisierung und Freisetzung von Schadstoffen aus dem Endlager, zum Transport durch das Wirtsgestein und angrenzende Gesteinsschichten sowie zur Exposition in der Biosphäre beitragen. RepoTREND hat einen modularen Aufbau, der den oben genannten Teilsystemen entspricht. Für die langzeitsicherheitsanalytischen Rechnungen im vorliegenden Bericht zur Phase 2 des Vorhabens ÜsiKo wurden die folgenden Module des Programmpakets RepoTREND verwendet:

- XENIA: grafische Benutzeroberfläche für die Dateneingabe und Framework für die Modulsteuerung und -ausführung /REI 16/
- Nahfeldmodule:
  - REPOS: Radionuklidmobilisierung und Einphasentransport im Endlagerbergwerk /STO 97/
- Fernfeldmodule der GeoTREND-Familie zur Simulation des Schadstofftransports in vollgesättigten Medien:
  - POSA: poröse Medien /REI 11/
  - COFRAME: porös-geklüftete Medien in Anwesenheit von Kolloiden /REI 14/

Die Benutzeroberfläche XENIA (vgl. Abb. B.1) ist ein wesentlicher Bestandteil des Programmpakets RepoTREND und dient dazu Eingabedaten für Rechenläufe zusammenzustellen, Rechenläufe zu starten und zu verwalten. Es übernimmt auch die Steuerung von Berechnungsläufen, indem es automatisch eine Skriptdatei erzeugt und an einen Rechner zur Bearbeitung weiterleitet.

Die Eingabedaten und Informationen zu den Berechnungsläufen werden in einer Datenbank gespeichert, wobei jeder Berechnungslauf eindeutig einem Projekt oder Teilprojekt zugeordnet ist. Die Verwendung von (Teil-)Projekten wurde als oberste Ebene der Datenbank für die systematische Speicherung der Berechnungsläufe eingeführt. Zur Speicherung aller Daten wird eine relationale Datenbank (Oracle®) auf einem zentralen Server verwendet. XENIA hat Lese- und Schreibzugriff auf die Datenbank. Die Speicherung in der Datenbank dient der Qualitätssicherung, d. h. der Nachvollziehbarkeit von Berechnungsläufen und den dazugehörigen Daten, wie z. B. der Angabe des Benutzers, des Status des Berechnungslaufs, etc. Die Berechnungsmodule von RepoTREND greifen bei einer Modellberechnung nicht direkt auf die Datenbank zu, sondern verwenden eine Datei im JSON-Format, in der alle von den Modulen benötigten Informationen gespeichert sind. Diese Datei wird von XENIA beim Start eines Berechnungslaufs erzeugt.

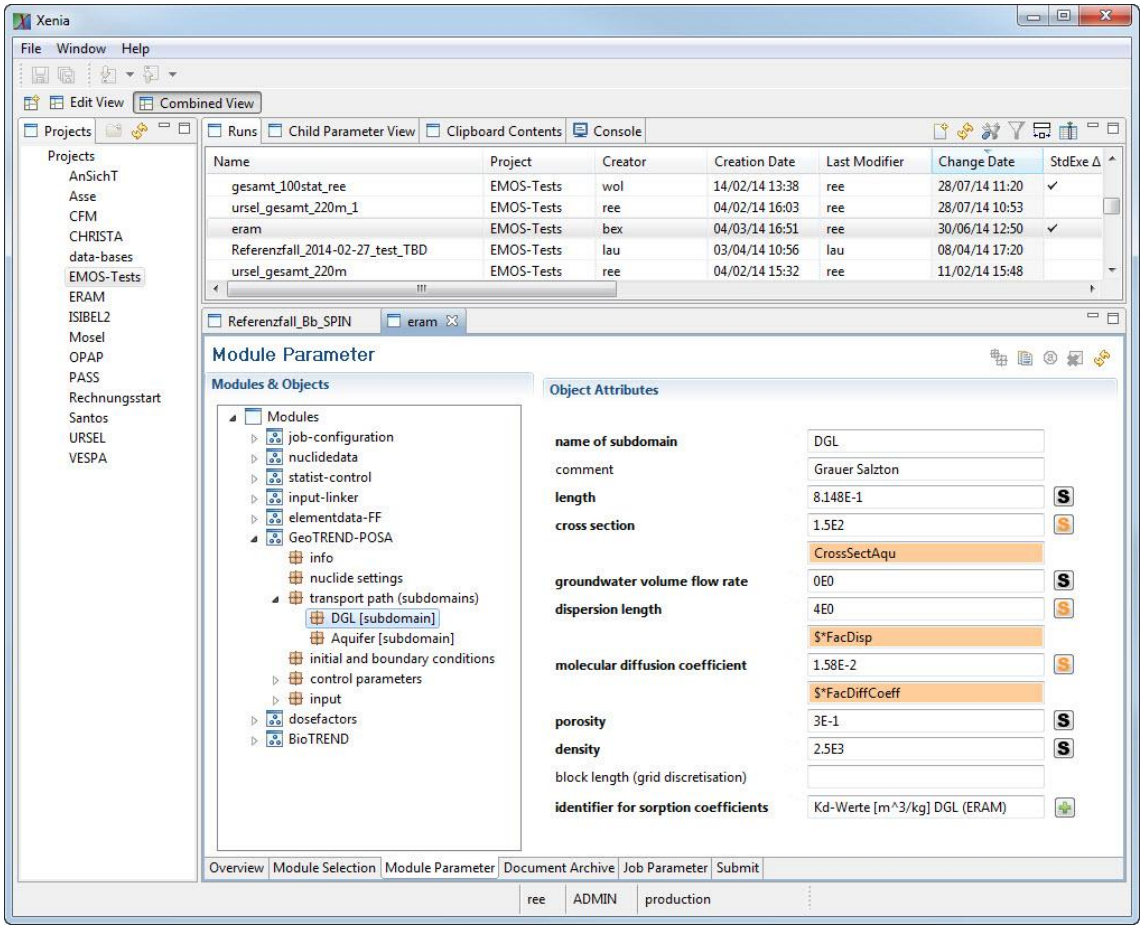

Abb. B.1 XENIA Benutzeroberfläche

Das Modul REPOS enthält eine Vielzahl von Segmentmodellen, die unterschiedliche Arten von Kammern und Strecken im Grubengebäude und die darin ablaufenden Prozesse repräsentieren. Unter anderem enthält es auch die Segmentmodelle MOBZ für die Mobilisierung und VQUELLE für den Transport im Grubengebäude, die den Modulen des Programmpakets EMOS2 entsprechen, die beim Langzeitsicherheitsnachweis Konrad verwendet wurden /STO 86/. Mit dem Modul REPOS kann damit die Modellierung für die Radionuklidmobilisierung und den Transport im Langzeitsicherheitsnachweis Konrad direkt reproduziert werden. Bei dem dabei verwendeten Modell wird nur ein Modellelement (Box) für das gesamte Grubengebäude verwendet. Es wird somit keine Diskretisierung des Transports im Grubengebäude betrachtet. Innerhalb dieser Box wird in jedem Zeitschritt der Rechnung eine instantane Durchmischung der Schadstoffe in der gesamten Lösung betrachtet. Dieses Vorgehen entspricht einem Exponentialmodell; der berechnete Schadstoffausstrom aus der Box hat zu Beginn ein Maximum und nimmt danach exponentiell ab.

Das Programmpaket RepoTREND enthält eine Reihe von Berechnungsmodulen, die verschiedene Transportmodelle zur Simulation der eindimensionalen Schadstoffausbreitung durch die Geosphäre darstellen. Diese Berechnungsmodule sind unter dem Namen GeoTREND-Familie (GEOsphere-Modul von RepoTREND) aufgeführt.

Das Modul GeoTREND-POSA (Transport in POrous SAturated media) berechnet den advektiven, diffusiven und dispersiven Schadstofftransport in einem gesättigten porösen Medium unter Berücksichtigung der Schadstoffsorption mit einem linearen Ansatz auf der Grundlage des K_d-Konzepts. Radioaktiver Zerfall und Verdünnung werden ebenfalls berücksichtigt. Dieses Modell wird zur Modellierung des Transports in der Geosphäre eingesetzt und ersetzt für die 1D- Modellierungen das Modul SWIFT im Langzeitsicherheitsnachweis Konrad /STO 86/ bzw. das Modul CHETLIN in der Nachrechnung von 2001 /BEC 00/ (vgl. Anhang C).

GeoTREND-COFRAME (COlloid facilitated Transport in FRActured-porous MEdia): Mit diesem Modul kann der Transport von Schadstoffen durch ein gesättigtes klüftig-poröses Medium simuliert werden. Auch hier werden alle grundlegenden Transportmechanismen wie Advektion, Diffusion und Dispersion sowie die Diffusion von Schadstoffen in die Gesteinsmatrix modelliert und Sorption und radioaktiver Zerfall berücksichtigt. Zusätzlich kann der Einfluss von Kolloiden auf den Schadstofftransport berücksichtigt werden. Der Schadstofftransport kann durch die Bindung an Kolloide beschleunigt oder verlangsamt werden, je nach der Mobilität der beteiligten Kolloide. Dieses Modul wird für die Rechnungen zum Kolloidtransport eingesetzt.

B.1 Literatur

/BEC 00/ Becker, D.-A.: Nachrechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad mit modifizierter Halbwertszeit für Se-79. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-2770, Braunschweig, 2000.

/REI 11/ Reiche, T., Becker, D., Buhmann, D., Lauke, T.: Adaptation of the EMOS program package to modern software requirements, ADEMOS - Phase 1, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-3623, BMWi-FKZ 02E10367, Braunschweig, 2011.

/REI 14/ Reiche, T., Noseck, U., Wolf, J. W.: Modelling of contaminant transport in fractured-porous media considering colloids with the transport programs FRAME and COFRAME, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-333, BMWi-FKZ 02E10367, Braunschweig, 2014.

/REI 16/ Reiche, T.: RepoTREND, Das Programmpaket zur integrierten Langzeitsicherheitsanalyse von Endlagersystemen, Version 4.5 (Stand März 2016). GRS-413, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH: Braunschweig, April 2016.

/STO 86/ Storck, R., Butow, E., Heredia, L., Hossain, S., Kühle, T., Lutkemeier-Hosseinipour, S., Nies, A., Pröhl, G., Struck, S.: Langzeitsicherheitsanalyse des Endlagers Konrad: Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase. EU 076.1, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) mbH, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/324.34/EG/RB/0004/00,

/STO 97/ Storck, R.; Buhmann, D.; Hirsekorn, R.-P.; Kühle, T.; Lührmann, L.: Das Programmpaket EMOS zur Analyse der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle. Version 5. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-122, Braunschweig 1996.

C Nachrechnung der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad

Auf diesen Anhang wird Bezug genommen bei der Bearbeitung der Aspekte 1, 2 und 3 und bei der Neuberechnung der Strahlenexposition.

Zur Validierung der für diesen Bericht durchgeführten Modellrechnungen im Rahmen der Phase 2 der ÜsiKo wurden die langzeitsicherheitsanalytischen Rechnungen zum Radionuklidtransport aus dem Endlager Konrad über den Oxfordpfad und Unterkreidepfad in /STO 86/ (vgl. Anhang A) mit den aktuellen Rechenprogrammen nachgebildet und die Ergebnisse zum einen mit der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad aus /STO 86/, aktualisiert in /PRO 91/ und /ARE 91/, als auch mit einer späteren Nachrechnung in /BEC 00/ verglichen. Diese validierten Rechenfälle wurden dann als Basis für die durchgeführten Erweiterungen, Überprüfungen und Variationen verwendet.

Für die Nachrechnungen wurden die Module LOPOS und GeoTREND-POSA verwendet (vgl. Anhang B). Die Eingabedaten wurden identisch zu jenen in /STO 86/ gewählt, abgesehen von den Anpassungen der Inventare gemäß den Beschränkungen in Tabelle B III.5/l des PFB /PFB 02/. Die Ergebnisse der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad für die angepassten Inventare sind in /ARE 91/ als Konzentrationen im oberflächennahen Aquifer dokumentiert.

Im Jahr 2000 wurde eine Nachrechnung der Ergebnisse aus der Langzeitsicherheitsanalyse Konrad im damals aktuellen Rechenprogrammen durchgeführt /BEC 00/. Diese Nachrechnung wurde notwendig, da sich die Literaturwerte für die Halbwertszeit von Se-79 wesentlich geändert hatte. Die Ergebnisse wichen für beide Ausbreitungspfade leicht von den Ergebnissen in /STO 86/ ab, und die Unterschiede wurden in /BEC 00/ folgendermaßen erklärt:

Bei allen Nukliden ist gegenüber den alten Rechnungen ein verzögerter Freisetzungsbeginn sowie eine Verschmälerung des Kurvenverlaufs zu erkennen. Die Maxima erscheinen geringfügig erhöht, außer bei solchen Nukliden, bei denen die Verzögerung im Verhältnis zur Halbwertszeit so groß ist, daß schon eine zerfallsbedingte Abnahme sichtbar wird. Zu erklären sind die Unterschiede durch die beim Programm CHETLIN gegenüber SWIFT deutlich verringerte numerische Dispersion. Insofern sind die neuen Rechnungen als Verbesserung anzusehen.

Abb. C.1 zeigt beispielhaft für den Unterkreidepfad den Vergleich der Ergebnisse für die zeitliche Entwicklung der Radionuklidkonzentration im oberflächennahen Aquifer für die Rechnungen aus den Jahren 1991 /ARE 91/ und 2000 /BEC 00/ gemeinsam mit den aktuellen Rechnungen im Rahmen der Phase 2 der ÜsiKo im Jahr 2022, die zur Erstellung dieses Berichts durchgeführt wurden. Die Ergebnisse aus /BEC 00/ und den aktuellen Rechnungen im Rahmen der Phase 2 der ÜsiKo zeigen nahezu identische Zeitverläufe und auch Maximalwerte. Somit sind auch die Unterschiede der aktuellen Rechnungen zu den alten Sicherheitsanalysen identisch zu jenen von /BEC 00/ zu /STO 86/.

Die aktuellen Rechenprogramme können somit die älteren Ergebnisse gut reproduzieren und zur Überprüfung der Deltas im Rahmen der Phase 2 der ÜsiKo herangezogen werden. Die geringfügig höheren errechneten Konzentrationen im oberflächennahen Aquifer werden, wie bereits in /BEC 00/, durch bessere numerische Algorithmen und eine dadurch verursachte geringere numerische Dispersion erklärt.

Im Rahmen der Nachrechnungen der LZSA in der ÜsiKo Phase 2 wurde zusätzlich die qualitative Aussage aus der Phase 1 der ÜsiKo /RUE 19/ bezüglich der Sicherheitsrelevanz der Änderung des Lösungsvolumens im Grubengebäude als Folge der Reduktion der Abfallmenge im PFB durch quantitative Rechnungen überprüft. Dieses Lösungsvolumen wird in Tabelle 2-4 der LZSA /STO 86/ aus dem Resthohlraumvolumen in den Einlagerungsfeldern, sowie den Infrastrukturbereichen hergeleitet und bezieht sich auf ein Abfallvolumen von 650.000 m³. Da durch den PFB das Abfallvolumen auf 303.000 m³ begrenzt wird, ist für das Resthohlraumvolumen in den Einlagerungsfeldern (368.000 m³ in Tabelle 2-4 der LZSA) ein in entsprechender Weise reduziertes Volumen von 172.000 m³ anzunehmen, während das Volumen der Infrastrukturbereiche (237.000 und 134.000 m³) als unverändert angenommen werden kann. Das Resthohlraumvolumen reduziert sich entsprechend der Annahmen in der LZSA somit in Summe auf 543.000 m³ gegenüber 739.000 m³. Nachrechnungen mit einem von 739.000 m³ auf 543.000 m³ verringerten Lösungsvolumen im Grubengebäude zeigen keine Änderung der im oberflächennahen Grundwasser errechneten Radionuklidkonzentrationen. Durch diese Nachrechnung wurde somit die Einschätzung bezüglich der Sicherheitsrelevanz aus der Phase 1 der ÜsiKo bestätigt.

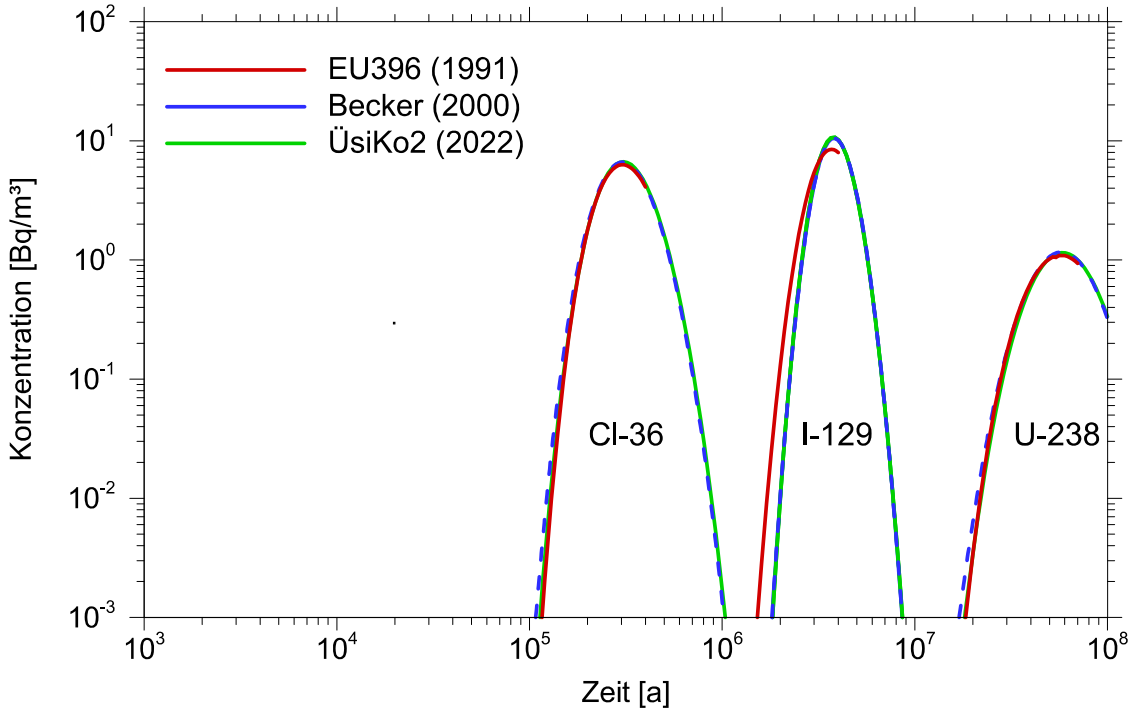

Abb. C.1 Vergleich der Konzentration im oberflächennahen Aquifer [Bq/m³] bei Ausbreitung über den Unterkreidepfad aus den Rechnungen von 1991, 2000 und 2022

C.1 Literatur

/ARE 91/ Arens, G.; Fischer, S.: Radionuklidausbreitung im Deckgebirge für das Schichtenmodell – Konrad, EU 396, Bundesamt für Strahlenschutz (BfS), Salzgitter, 1991. VDIS-KZL: 9K/-/EGC/RB/0005/01

/BEC 00/ Becker, D.-A.: Nachrechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad mit modifizierter Halbwertszeit für Se-79. Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, GRS-A-2770, Braunschweig, 2000.

/PFB 02/ Niedersächsisches Umweltministerium; Planfeststellungsbeschluss für die Errichtung und den Betrieb des Bergwerkes Konrad in Salzgitter als Anlage zur Endlagerung fester oder verfestigter radioaktiver Abfälle mit vernachlässigbarer Wärmeentwicklung; 1125 S., 22. Mai 2002. VDIS-KZL: 9K/1321/DA/ES/0001/00

/PRO 91/ Pröhl, G.: Berechnung der Strahlenexposition in der Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad nach der Allgemeinen Verwaltungsvorschrift. EU 353 Rev. 1, Gesellschaft für Strahlen und Umweltforschung mbH, Institut für Strahlenschutz, München, 1991. VDIS-KZL: 9K/352127.32/EG/RB/0012/01

/RUE 19/ Rübel, A.; Behler, M.; Feinhals, J., Mönig, J., Poppei, J., Rätz, D., Wolf, J.: Projekt Konrad - Überprüfung der sicherheitstechnischen Anforderungen des Endlagers Konrad nach dem Stand von Wissenschaft und Technik (ÜsiKo). Überprüfung der sicherheitsrelevanten Anforderungen zur Langzeitsicherheit, Kritikalität in der Nachbetriebsphase und thermischen Beeinflussung des Wirtsgesteins. Abschlussbericht zur Phase 1: Ermittlung des Überprüfungsbedarfs. Braunschweig: Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH, AF-Consult Switzerland Ltd., DMT GmbH & Co. KG, 2019. VDIS-KZL: 9KE/25232/B/RB/0009/00

/STO 86/ Storck, R., Butow, E., Heredia, L., Hossain, S., Kühle, T., Lutkemeier-Hosseinipour, S., Nies, A., Pröhl, G., Struck, S.: Langzeitsicherheits-analyse des Endlagers Konrad: Radionuklidausbreitung in der Nachbetriebsphase. EU 076.1, Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung (GSF) mbH, München, 1986. VDIS-KZL: 9K/324.34/EG/RB/0004/00

D Überarbeitungen des Berichts auf Grund der fachöffentlichen Ergebnispräsentation

Im Rahmen der Vorstellung der Ergebnisse zur fachöffentlichen Ergebnispräsentation der ÜsiKo Phase 2 am 23.10.2024 in Braunschweig wurden Anmerkungen zu den durchgeführten Arbeiten durch die unabhängige Wissenschaftliche Begleitung und die Teilnehmenden gemacht, die zu den in diesem Anhang beschriebenen Überarbeitungen dieses Berichts geführt haben. Inhaltliche Anmerkungen betrafen dabei überwiegend den Aspekt zur Bewertung des Radionuklidtransports in der Gasphase, die zu folgenden Überarbeitungen des Kapitels 2 geführt haben:

- Diskussion der Gasproduktion (Kapitel 2.3)
  - Bei der Beschreibung der Korrosion von Eisen (Kapitel 2.3.2) wurden alternative Umwandlungsprozesse benannt.
  - Hinweise auf die Konservativität der getroffenen Annahmen der Umwandlungsprozesse im Hinblick auf die gebildete Gasmenge wurden ergänzt, falls diese noch nicht ausreichend beschrieben wurde.
- Beschreibung des Rechenmodells (Kapitel 2.4.1)
  - Der Bezug des Vorgehens in ÜsiKo Phase 2 zu der in ÜsiKo Phase 1 beschriebenen Empfehlung wurde durch einen zusätzlichen Absatz verdeutlicht.
  - Die Verwendung des Code TOUGH2 wurde motiviert und auf die alternative Möglichkeit einer gekoppelten hydraulisch-mechanischen Modellierung hingewiesen.
  - Bezüglich der verwendeten Modellparameter wurde bei Tab. 2.9 ein Verweis auf die zu Grunde liegenden Formeln eingefügt.
  - Zur Rechtfertigung des verwendeten Werts für den Gaseindringdruck wurde sowohl Text als auch eine zusätzliche Abbildung (Abb. 2.6) eingefügt. Das Formelzeichen für den Gaseindringdruck wurde von α nach P_0 geändert.
  - Es wurde Text eingefügt, der die Modellsegmente mit Gasproduktion beschreibt.

- Ergebnisse des Referenzfalls (Kapitel 2.4.2)
  - Es wurden Text und Referenzen zur Beschreibung der Anisotropie des Gebirgsspannungszustands eingefügt und zu erwartende Vergleichswerte für die minimale Hauptspannung an den Beobachtungspunkten abgeleitet. Diese Werte werden im Text als Vergleichswerte zur Bewertung des hydrostatischen Drucks verwendet.
  - Es wurden zur besseren Darstellung der relevanten Drücke die zwei Tabellen Tab. 2.10 und Tab. 2.11 eingefügt.
  - Die Darstellung in Abb. 2.12 und Abb. 2.16 wurde zur besseren Verständlichkeit vereinfacht.

Bei dem Aspekt zur Überprüfung des Unterkreidepfads wurde folgende Änderung vorgenommen:

- Kapitel 4.3.1: Präzisierung der Aussage zur Mineralogie der verschiedenen Gesteine.