

Planfeststellungsverfahren zur Stilllegung des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben

Verfahrensunterlage

Titel: Modellierung der Gasentwicklung im Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM)

Autor: Poppei, J., Suter, D., Niemeyer, M. & Wilhelm, S.

Erscheinungsjahr: 2002

Unterlagen-Nr.: P 151

Revision: 00

Unterlagenteil:



Zusammenfassung

Die Gasentwicklung im Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) wurde mit Hilfe des Rechenprogrammes GASGEN modelliert. Das Modell erlaubt die Prognose der zeitlichen Gasentwicklung durch mikrobielle Prozesse und anaerobe Metallkorrosion. Der mikrobielle Abbau der organischen Abfallbestandteile wird durch die Teilprozesse Denitrifikation, Sulfatreduktion, Fermentation und Methanogenese dargestellt. Es wird dabei zwischen der leicht abbaubaren Zellulose und schwer abbaubaren Materialien, wie z.B. Kunststoffen, unterschieden. Die Gasentwicklung durch anaerobe Metallkorrosion wird vor allem durch das Eisen im Abfall bedingt. Die Inventars im ERAM, welche die gesamte Gasmenge bestimmen, sind mit Unsicherheiten behaftet. Auch die Geschwindigkeitskonstanten der verschiedenen Reaktionen hängen von vielen Faktoren ab und sind darum variabel. Um diese Variabilität abzudecken, erlaubt GASGEN eine probabilistische Modellierung der Gasentwicklung.

Die Gasentwicklung in den verschiedenen Einlagerungsbereichen läuft prinzipiell ähnlich ab. Die anfänglich gebildeten Gasvolumen reflektieren die Bandbreiten der verschiedenen Prozesse und deren Kopplungen. Im Laufe der Zeit nehmen die Inventare der gasbildenden Abfallbestandteile ab und die Gasbildungsraten gehen zurück. Nach etwa 1 Mio. Jahren ist die Gasbildung weitgehend abgeschlossen. Das gesamte Gasvolumen wird durch Wasserstoff dominiert, gefolgt von Methan und Stickstoff. Kohlendioxid bleibt nur wenig in der Gasphase, da es durch Portlandit gebunden und durch die Methanogenese mikrobiell verarbeitet wird.

Die Ergebnisse der probabilistischen Berechnungen gestatten eine statistische Interpretation der Ergebnisse. Auf Basis der Bandbreiten der Gesamtgasbildungsraten lassen sich mit Hilfe von vier voneinander unabhängigen Parametern potentielle Verläufe der Gasproduktion generieren. Als Kennwerte der Gasbildung dienen

- die Bandbreiten der Gasbildungsraten zu repräsentativ frühen Zeiten,
- die Bandbreiten der Gasbildungsraten zu repräsentativ späten Zeiten,
- die Bandbreite der Gesamtgasmenge nach Abschluss der Gasproduktion und
- der Anteil des Inventars an den Gasbildungsprozessen.

Die auf diese Weise parametrisierten Gasproduktionsprozesse beschreiben den gesamten Variablenraum der Gasproduktion, der auf der Basis probabilistischer Ansätze mit feldspezifischen Inventarverteilungen berechnet wurde.

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung.....	2
1 Einleitung.....	4
2 Grundlagen.....	4
2.1 Metallkorrosion.....	4
2.2 Mikrowelle Abbauprozesse.....	5
2.2.1 Hydrolyse.....	5
2.2.2 Denitrifikation.....	5
2.2.3 Sulfatreduktion.....	6
2.2.4 Fermentation.....	6
2.2.5 Methanogenese.....	7
2.3 Ausfällungsreaktionen.....	7
2.3.1 Carbonatfällung (Carbonatisierung).....	7
2.3.2 Schwefelwasserstoff.....	8
3 Modell GASGEN.....	9
3.1 Modellkonzept.....	9
3.2 Mikrowelle Prozesse.....	9
3.3 Korrosion.....	10
3.4 Ausfällungsreaktionen und Methanogenese.....	10
4 Probabilistisches Modell.....	12
5 Stoffinventare und Modellparameter.....	13
5.1 Stoffinventare.....	13
5.2 Modellparameter.....	17
5.2.1 Metallkorrosion.....	18
5.2.2 Mikrowelle Prozesse.....	18
5.3 Verteilungsfunktionen und Korrelationen.....	20
5.4 Regelparameter.....	21
5.4.1 Edukt-Regler.....	22
5.4.2 Inhibitions-Regler.....	22
6 Resultate.....	25
7 Ableitung der Gasbildungsraten für die Sicherheitsanalyse.....	31
7.1 Parametrisierung der Gasbildungsraten.....	31
7.2 Berücksichtigung der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Gasbildungsparameter. . .	35
8 Referenzen.....	40
Anhang A	
Anhang B	

1 Einleitung

Die Abfälle, die in einem Endlager deponiert werden, enthalten Substanzen, welche unter den Bedingungen des Endlagers (Zutritt von Wässern, Mangel an Luftsauerstoff) Gase bilden. Diese Gase können aufgrund der damit verbundenen Druckentwicklung eine wesentliche treibende Kraft zur Freisetzung der Schadstoffe werden. Für die Sicherheitsanalyse wird darum eine Prognose des zeitlichen Verlaufs der Gasentwicklung benötigt. Zu diesem Zweck wurde das Programm GASGEN entwickelt. Mit GASGEN werden die beiden wichtigsten gasbildenden Prozesse modelliert, nämlich der mikrobielle Abbau der organischen Stoffe und die anaerobe Korrosion der unedlen Metalle. Diese Prozesse werden im Modell gekoppelt. Um die bestehenden Unsicherheiten sowohl bei den Stoffinventaren als auch bei den Reaktionsgeschwindigkeiten der gasbildenden Prozesse angemessen zu berücksichtigen, wurde ein probabilistisches Modell gewählt. Das Grundprinzip der Modellierung beruht auf bestehenden Konzepten (der Abbau der organischen Stoffe wird als Prozess erster Ordnung behandelt), doch werden die mikrobiellen Prozesse detaillierter dargestellt, und das Modell ist auf einige besondere Gegebenheiten im ERAM ausgerichtet.

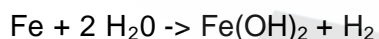
Der vorliegende Bericht dokumentiert die Berechnungen, die auf dem aktuellen Inventar und Verfüllkonzept (Stand: Sommer 2001) beruhen. Seit der früheren Publikation zu dem Thema (Suter et al. 1999) wurde das Programm GASGEN in verschiedenen Punkten weiterentwickelt.

2 Grundlagen

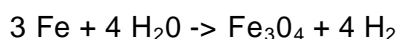
Die Gasentwicklung im Endlager wird durch die anaerobe Metallkorrosion und den mikrobiellen Abbau der organischen Stoffe dominiert. Ein Teil der dabei entstehenden Gase kann durch die mikrobielle Methanogenese umgesetzt oder durch die Wechselwirkung mit calciumhaltigen Stoffen (Zement) ausgefällt werden. Die Radiolyse als dritter gasbildender Prozess trägt im ERAM nur in einem vernachlässigbaren Ausmaß zur Gasentwicklung bei (Suter et al. 1999).

2.1 Metallkorrosion

Bei der anaeroben Metallkorrosion werden unedle Metalle wie Eisen, Aluminium und Zink durch Wasser oxidiert. Als Produkt entstehen die entsprechenden Oxide und Wasserstoff. Bei der Korrosion von Eisen können, je nach den chemisch-physikalischen Bedingungen, verschiedene Oxide gebildet werden. Die Menge des gebildeten Wasserstoffs hängt von der Oxidationsstufe des Eisens im Oxid ab. Zunächst entsteht zweiwertiges Eisenhydroxid, nach der Gleichung



Als thermodynamisch stabiles Oxidationsprodukt wird in der Regel Magnetit angenommen, der nach der folgenden Bruttogleichung gebildet wird:



Bei dieser Reaktion werden pro Mol Eisen 1,33 Mol Wasserstoff gebildet, also 30% mehr als bei der Bildung von $\text{Fe}(\text{OH})_2$.

Da die Korrosion an der Metalloberfläche stattfindet, hängt der resultierende zeitliche Verlauf der Gasentwicklung sowohl von der Masse der Metalle als auch von deren Oberflä-

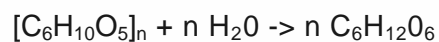
che/Volumenverhältnis ab. Die gesamte Oberfläche der metallischen Abfälle verringert sich im Laufe der Zeit durch das Fortschreiten der Korrosion, wobei die Abnahme nicht proportional zur Abnahme der Metallmasse ist, sondern zusätzlich von der Form der einzelnen Metallstücke abhängt. Dünnwandige Bleche, wie sie z.B. für Fässer verwendet werden, weisen während der Dauer der Korrosion eine fast konstante Oberfläche auf, sind jedoch nach einer relativ kurzen Zeit vollständig korrodiert. Bei Metallstücken mit einer komplexen Geometrie oder einer Kombination von dünn- und dickwandigen Elementen verringert sich im Laufe der Zeit die Oberfläche.

2,2 Mikrobielle Abbauprozesse

Der mikrobielle Abbau von organischen Abfällen führt unter anaeroben Bedingungen, wie sie sich nach dem Verschluss des Endlagers einstellen werden, vorwiegend zu gasförmigen Produkten wie Methan und Kohlendioxid sowie zu Wasser. Polymere organische Stoffe werden in einem ersten Schritt zu kleineren Einheiten hydrolysiert und anschließend weiter zu den Endprodukten abgebaut. In Gegenwart von Elektronenakzeptoren wie Nitrat und Sulfat können unterschiedliche mikrobielle Reaktionen ablaufen. Die Reihenfolge der Reaktionen wird durch die freie Reaktionsenthalpie bestimmt. Wenn Nitrat vorhanden ist, wird dieses bevorzugt für die Denitrifikation als Elektronenakzeptor verwendet. Nachdem das Nitrat aufgebraucht ist, kann Sulfat bei der Sulfatreduktion als Elektronenakzeptor verwendet werden. Anschließend findet die Fermentation als Abbaureaktion ohne externen Elektronenakzeptor statt. Methanogene Bakterien können aus Kohlendioxid und Wasserstoff Methan bilden. Die Details dieser Prozesse finden sich u.a. in Suter et al. (1999).

2.2.1 Hydrolyse

Fast alle organischen Abfallkomponenten sind polymere Feststoffe. Damit diese von den Bakterien aufgenommen und abgebaut werden können, müssen sie zuerst zu kleineren löslichen Molekülen abgebaut werden. Die Zellulose kann durch Hydrolyse zu Traubenzuckermolekülen abgebaut werden.



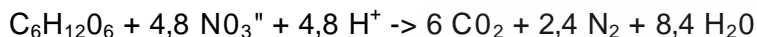
Die Kunststoffe haben sehr unterschiedliche chemische Zusammensetzungen. Da Polyethen ein sehr häufig verwendeter Kunststoff ist, wird im Modell bei der Stöchiometrie der Abbaureaktionen angenommen, dass alle Kunststoffe dessen Zusammensetzung aufweisen. Das formale Monomer, das für die Modellrechnungen verwendet wird, ist C_2H_4 . Es tritt bei den Abbaureaktionen chemisch nicht in dieser Form auf, aber es dient dazu, die Stöchiometrie formal richtig darzustellen. Der Kohlenstoff hat hier die formale Oxidationsstufe -2. In allen anderen Polymeren ist (im Verhältnis zum Kohlenstoff) der Wasserstoffgehalt kleiner bzw. der Sauerstoffgehalt größer, was bei der anschließenden Fermentation (vgl. Abschnitt 2.2.4) zu kleineren Gasmengen führen würde.

2.2.2 Denitrifikation

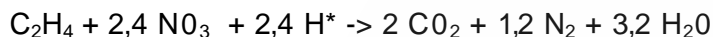
Da die Denitrifikation eine hohe Energieausbeute ergibt, ist diese Reaktion vor den anderen bevorzugt. Dabei dient Nitrat als Elektronenakzeptor und als Produkt entsteht über mehrere Zwischenstufen molekularer Stickstoff. Der Kohlenstoff wird dabei vollständig in Kohlendioxid übergeführt.

Der Abbau von Zellulose und Kunststoffen bzw. deren Hydrolyseprodukte durch Denitrifikation kann im Modell durch die folgenden Bruttoreaktionen beschrieben werden.

Zellulose:



Kunststoffe:



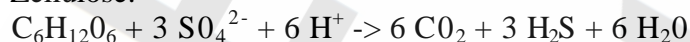
In einigen Einlagerungsbereichen des ERAM sind größere Nitratmengen vorhanden, welche aus Verdampferkonzentraten stammen. In diesen Fällen kommt der Denitrifikation eine erhöhte Bedeutung zu.

2.2.3 Sulfatreduktion

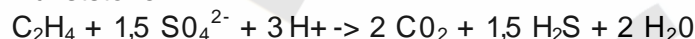
Nach dem Verbrauch des vorhandenen Nitrats kommen andere Abbaureaktionen zum Zuge. Die Sulfatreduktion liefert gegenüber der Fermentation/Methanogenese eine leicht größere Energieausbeute, weshalb sie vor dieser abläuft. Das Sulfat wird bei dieser Reaktion zu Sulfid reduziert, und der Kohlenstoff wird vollständig zu Kohlendioxid oxidiert.

Für den Abbau von Zellulose und Kunststoffen bzw. deren Hydrolyseprodukten ergeben die folgenden Reaktionen:

Zellulose:



Kunststoffe:



Beim Zufluss von sulfathaltigen Salzlösungen können in den Einlagerungsgrubenbauen größere Sulfatmengen auftreten.

2.2.4 Fermentation

Wenn kein externer Elektronenakzeptor zur Verfügung steht, können die Bakterien durch die Fermentation der organischen Stoffe Energie gewinnen. Als Produkte entstehen dabei Kohlendioxid, Methan und Wasserstoff. Für die beiden Modell-Edukte ergeben sich die folgenden Reaktionen:

Zellulose:



Kunststoffe:

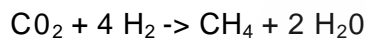


Wasserstoff wird sowohl bei der Fermentation, als auch bei der anaeroben Metallkorrosion gebildet. Bei einer reversiblen Gleichgewichtsreaktion führt die Akkumulation eines Produktes zur Inhibition der Reaktion, wenn sich die Konzentration der Gleichgewichtskonzentration nähert. Dies kann bei der Fermentation schon bei relativ niedrigen Wasserstoffpartialdrücken beobachtet werden und wird im Modell entsprechend berücksichtigt.

Für die anaerobe Eisenkorrosion liegt das Gleichgewicht sehr weit auf der Seite der Korrosionsprodukte, sodass bei Experimenten erst bei sehr hohen Partialdrücken Hinweise auf eine mögliche Inhibition gefunden werden konnten.

2.2.5 Methanogenese

Bei der Methanogenese wird aus Kohlendioxid und Wasserstoff Methan gebildet. Die Edukte stammen in der Regel aus der Fermentation, doch wenn, wie im ERAM, zusätzlich größere Wasserstoffmengen durch die anaerobe Metallkorrosion gebildet werden, kann auch dieser Wasserstoff durch die Bakterien verwendet werden.



Mit dieser Reaktion geht eine nennenswerte Volumenverringerng des Gases einher, da aus 5 Mol Gas als Edukt ein Mol Gas als Produkt gebildet wird. Da sämtliche Edukte gasförmig sind, ist diese Reaktion im Gegensatz zu den vorhergehenden Abbaureaktionen weniger stark an den Einlagerungsort der Abfälle gebunden.

2.3 Ausfällungsreaktionen

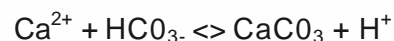
Während Gase wie Wasserstoff und Methan relativ inert sind, können Kohlendioxid und Schwefelwasserstoff in Anwesenheit von Wasser mit verschiedenen Kationen schwerlösliche Salze bilden. Wenn es auf diesem Weg zu Ausfällungsreaktionen kommt, bilden deren Reaktionsprodukte eine Senke für die entsprechenden Gase, durch die unter Umständen größere Gasmengen aus der Gasphase entfernt werden können.

2.3.1 Carbonatfällung (Carbonatisierung)

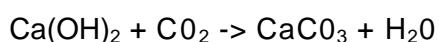
Das durch die mikrobiellen Reaktionen gebildete Kohlendioxid löst sich teilweise im Porenwasser als Hydrogencarbonat bzw. Carbonat.



In Gegenwart von Calcium kann es in alkalischem Milieu zur Ausfällung von Calcit kommen.



Für die Carbonatfällung sind vor allem die leicht löslichen Calciumverbindungen relevant, welche unter anderem im Zement vorhanden sind. In der Zementchemie wird der entsprechende Prozess Carbonatisierung genannt. Ein Teil der Abfälle im ERAM wurde durch Zement konditioniert, und die Hohlräume werden durch zementhaltigen Salzbeton verfüllt. Auch die Braunkohlefilterasche enthält leichtlösliche Calciumverbindungen. Die Ausfällung von Calcit wird darum im Modell für die Prognose der Gasentwicklung nach der folgenden Reaktionsgleichung berücksichtigt:



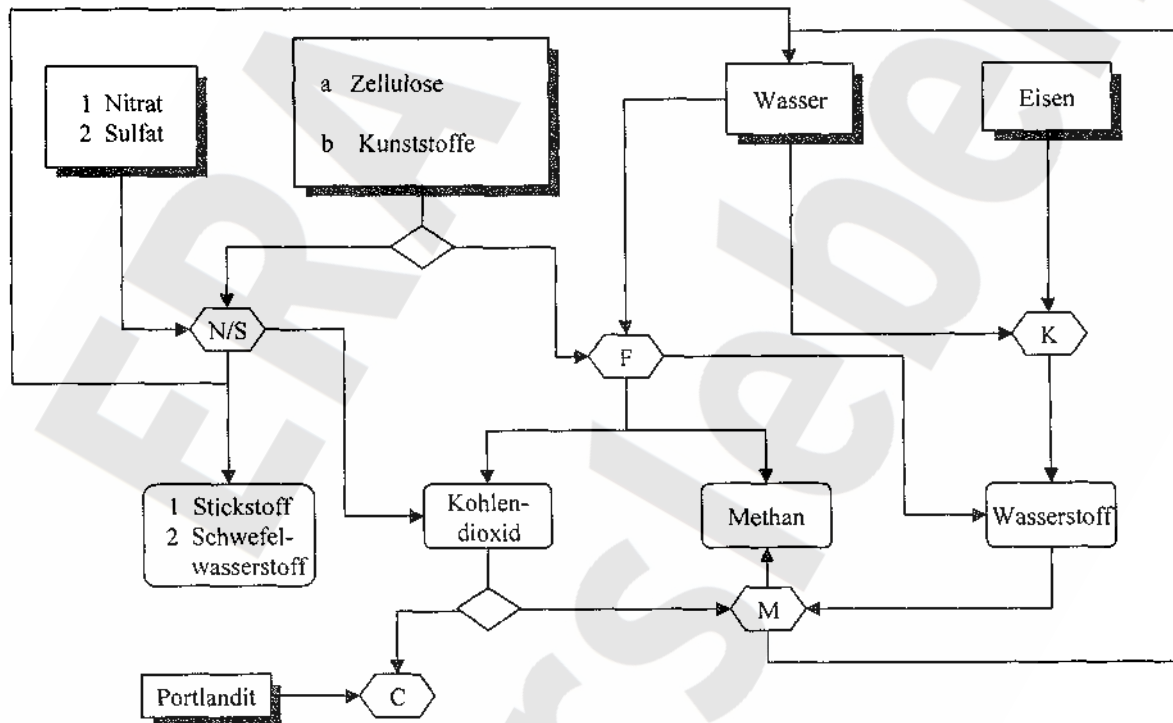
Als Edukte dieser Reaktion werden sowohl der z.B. im Zement vorhandene Portlandit als auch vergleichbare leichtlösliche Calciumverbindungen eingesetzt.

2.3.2 Schwefelwasserstoff

Der bei der mikrobiellen Sulfatreduktion entstehende Schwefelwasserstoff bildet mit Eisen und anderen Metallionen schwerlösliche Sulfide.



Da im Abfall große Mengen an Eisen und anderen Metallen vorliegen, wird im Modell angenommen, dass der Schwefelwasserstoff quantitativ ausgefällt wird und nichts zum gebildeten Gasvolumen beiträgt.



Prozesse im Modell zur Prognose der Gasentwicklung

Figur 1 Schema der in GASGEN berücksichtigten Prozesse. N steht für Denitrifikation, S für Sulfatreduktion, F für Fermentation, M für Methanogenese, K für Korrosion und C für Carbonatisierung

3 Modell GASGEN

Im vorliegenden Kapitel wird die Umsetzung der in Kapitel 2 beschriebenen Prozesse im Modell erläutert.

3.1 Modellkonzept

Die räumliche Verteilung der gasbildenden Stoffe in den Einlagerungsbereichen ist relativ heterogen. Als Folge davon kann es vorkommen, dass einige der möglichen zur Gasbildung führenden Reaktionen nicht oder nur unvollständig ablaufen, weil die Reaktionspartner zu weit voneinander entfernt sind. Eine modellmäßige Berücksichtigung dieser Heterogenitäten wäre nur sinnvoll, wenn einerseits detaillierte Informationen zur räumlichen Verteilung der Stoffe im Grubengebäude vorhanden wären und andererseits die gasbildenden Prozesse in verschiedenen Teilvolumina differenziert beschrieben werden könnten. Da beide Voraussetzungen nicht erfüllt sind, ist es sinnvoller, die Einlagerungsgrubenbaue eines Einlagerungsbereichs zusammen als Mischtank zu modellieren. Dabei wird angenommen, dass Abfallinventare, Wasser, Elektronenakzeptoren und Mikroorganismen homogen im betrachteten Raum verteilt sind.

Bei der Umsetzung der chemischen und mikrobiellen Reaktionen in GASGEN müssen mikroskopische und makroskopische Aspekte berücksichtigt werden. Die in Kapitel 2 vorgestellten Prozesse beschreiben die Reaktionen auf der molekularen Ebene und liefern die Stöchiometrie der Stoffumsätze. Experimentell bestimmte Reaktionsgeschwindigkeiten beziehen sich, vor allem bei den mikrobiellen Prozessen, nicht auf eine Einzelreaktion, sondern auf eine Bruttoreaktion als Summe von mehreren gekoppelten Reaktionen.

Bei der Modellierung steht man vor der Wahl, entweder den Gesamtprozess durch viele Teilreaktionen darzustellen, für die nur unzureichende Modellparameter zur Verfügung stehen, oder ein wenig detailliertes Modell zu verwenden, für das die entsprechenden makroskopischen Parameter leichter erhältlich sind. Im vorliegenden Modell wurde versucht, die klassischen einfachen Konzepte weiter zu entwickeln, aber gleichzeitig der beschränkten Datenbasis Rechnung zu tragen.

3.2 Mikrobielle Prozesse

Jede mikrobielle Reaktion wird als eine Reaktion erster Ordnung modelliert. Dabei wird ein Edukt y mit einer Geschwindigkeitskonstanten λ umgesetzt.

$$dy/dt = - \lambda y$$

Wenn für die Reaktion noch ein zweites Edukt verwendet wird, geht dies nicht explizit in die Gleichung ein; es wird jedoch bei der Massenbilanz berücksichtigt und die mögliche Limitierung durch das zweite Edukt wird dabei durch einen Regelparameter gesteuert (s. Kap. 5.3).

Beim mikrobiellen Abbau der organischen Abfallbestandteile wird im Modell zwischen leicht und schwer abbaubaren Stoffen unterschieden. Bei den leicht abbaubaren Stoffen handelt es sich vorwiegend um Zellulose, während es sich bei den schwer abbaubaren Stoffen vor allem um Kunststoffe und Bitumen handelt. Diese zwei Stoffklassen unterscheiden sich neben der Abbaurate auch in der stöchiometrischen Zusammensetzung. Zellulose ist stöchiometrisch definiert, und die Abbaureaktionen sind relativ gut untersucht. Die Kunststoffe hingegen weisen unterschiedliche Zusammensetzungen auf, die sich in unterschiedlichem Abbauverhalten und einem unterschiedlichen Produktespektrum äußern. Da die Kunststoffe im

Abfallinventar nur summarisch aufgeführt sind und nur sehr wenige experimentelle Daten über den Abbau der einzelnen Kunststoffe vorliegen, musste die Modellierung der Kunststoffe stark vereinfacht werden. Da davon ausgegangen werden kann, dass ein großer Teil der Kunststoffe aus Polyethen besteht, wird dessen chemische Zusammensetzung für die Stöchiometrie des mikrobiellen Kunststoffabbaus eingesetzt. Bei der Festlegung der Geschwindigkeitskonstanten wurde hingegen das ganze Spektrum von leicht bis schwer abbaubaren Kunststoffen berücksichtigt.

3.3 Korrosion

Die Modellierung der Korrosion war nicht Bestandteil des ursprünglichen Projektes, das zur Entwicklung von GASGEN führte (Suter et al., 1999). Aus diesem Grund wurde auf die Daten der entsprechenden Modellierung von Noack (2000) zurückgegriffen. In dieser Arbeit wurden die korrodierbaren Metalle Eisen, Aluminium und Zink unterschieden.

Da die Informationen über die Zusammensetzung der Metallkomponenten des Abfalls und über deren Oberflächen/Volumen-Verhältnisse nur sehr beschränkt zur Verfügung stehen, müssen bei der Modellierung Vereinfachungen vorgenommen werden. Noack (2000) teilte die Metallkomponenten gemäß ihrer Dicke in verschiedene Klassen ein. Aus der Dicke lässt sich eine spezifische Oberfläche für jede Klasse ableiten. Zusammen mit den entsprechenden Korrosionsraten lässt sich die zeitliche Gasentwicklung als Stufenfunktion errechnen.

Im Modell GASGEN werden alle Prozesse durch Reaktionen erster Ordnung beschrieben. Aus diesem Grund wurde auch die Korrosion auf diese Weise dargestellt. Die von Noack (2000) modellierte Stufenfunktion wurde durch eine Exponentialfunktion angenähert. Durch diese sind die relative Verteilung der Schichtdicken der Metallkomponenten und die Korrosionsraten festgelegt. Da sich die Mittelwerte der so erhaltenen Geschwindigkeitskonstanten für die verschiedenen Einlagerungsbereiche nur um wenige Prozent unterscheiden, wurde für diese der Mittelwert über alle Felder verwendet. Den Unsicherheiten bei den Korrosionsraten (ein Faktor 10 zu höheren und ein Faktor 100 zu niedrigeren Raten, vgl. Tabelle 5 in Abschnitt 5.2.1) und den Metallinventaren wurde mit entsprechenden Bandbreiten Rechnung getragen. Die Angaben zu den Inventaren wurden um die metallischen Abfälle außerhalb der Einlagerungsgrubenbaue ergänzt (s. Kap. 4). Die stöchiometrisch gebildeten Gasmengen waren in Noack (2000) unter der Annahme berechnet worden, dass die Korrosion nur zu Fe(II)-Verbindungen führt. Sie wurden für die vorliegende Arbeit daher um den Faktor 1,3 korrigiert (Bildung von Fe_3O_4 , siehe Abschnitt 2.1).

3.4 Ausfällungsreaktionen und Methanogenese

Das durch die mikrobiellen Abbauprozesse gebildete Kohlendioxid kann entweder durch Calcium-Ionen ausgefällt (Carbonatisierung von Portlandit) oder zusammen mit Wasserstoff in Methan umgewandelt werden (Methanogenese). Diese zwei Prozesse unterscheiden sich sowohl in ihrer Kinetik als auch in der Lokalisierung der Reaktion innerhalb der Einlagerungsbereiche. Die Carbonatisierung findet vorwiegend am Ort des Portlanditinventars statt, d.h. nicht nur in den verfüllten Einlagerungsgrubenbauen, sondern auch im restlichen Einlagerungsbereich, der durch Salzbeton verfüllt wird. Die Methanogenese findet hingegen vorwiegend in den Einlagerungsgrubenbauen statt, wo sich die Bakterien bevorzugt in der Nähe der Abfälle ansiedeln.

Um diese räumlichen Unterschiede zu berücksichtigen, wird bei der Carbonatisierung vom Prinzip des Misch tanks abgewichen, und es wird jeweils zwischen zwei Teilinventaren unterschieden. Diese bestehen aus dem Portlandit im unmittelbaren Einlagerungsgrubenbau (EH)

und jenem im restlichen Einlagerungsbereich (REB). Aus dieser Zweiteilung der Inventare ergeben sich im Modell zwei unterschiedliche Phasen, während derer die zwei konkurrierenden Reaktionen Carbonatisierung und Methanogenese unterschiedlich behandelt werden (Tabelle 1).

Für jene Phase, während der noch Portlandit im Einlagerungsgrubenbau vorhanden ist, wird davon ausgegangen, dass der größte Teil des Kohlendioxids instantan durch die Carbonatisierung gebunden wird, d.h. die Geschwindigkeit der CO_2 -Bindung als Carbonat ist fast so groß wie die Geschwindigkeit seiner Bildung durch die mikrobiellen Reaktionen. Kohlendioxid, das nicht instantan gebunden wurde und sich in einem gasgefüllten Hohlraum angesammelt hat, wird mit einer entsprechenden Geschwindigkeitskonstante (unter Berücksichtigung der Verzögerung, die dadurch entsteht, dass das CO_2 zunächst in das Versatzmaterial hinein diffundieren muss) ebenfalls durch die Carbonatisierung gebunden. Gleichzeitig und in Konkurrenz zur Carbonatisierung wird ein Teil des gebildeten Kohlendioxids durch die Methanogenese instantan verbraucht.

In der späteren Phase, wenn der im Einlagerungsgrubenbau vorhandene Portlandit vollständig carbonatisiert ist, bleibt für die Bindung des Kohlendioxids nur noch der Portlandit im restlichen Einlagerungsbereich. Dies bedeutet, dass das Kohlendioxid, das aus dem mikrobiellen Abbau der organischen Abfallbestandteile gebildet wird, durch die Porenräume zum Portlandit diffundieren muss. Darum wird während dieser Periode die Carbonatisierung durch eine Geschwindigkeitskonstante bestimmt, welche die mittlere Transportdauer des Kohlendioxids vom Entstehungsort zum Ort der Ausfällung repräsentiert. Wenn sich das Inventar des unverbrauchten Portlandits dem Ende nähert, wird die Rate proportional zum Restinventar verringert. In Konkurrenz zur Carbonatisierung wird Kohlendioxid durch die Methanogenese verbraucht. Ein vorgegebener Anteil des Kohlendioxids wird nach wie vor instantan unmittelbar nach dessen Bildung verbraucht, während die Umsetzung des Anteils, der sich bereits in der Gasphase befindet, durch die entsprechende Geschwindigkeitskonstante gesteuert wird.

Portlandit im Einlagerungsgrubenbau (EH) vorhanden		
Kohlendioxid	Methanogenese	Carbonatisierung
durch Abbau gebildetes CO_2	CO_2 -Anteil reagiert instantan	CO_2 -Anteil reagiert instantan
CO_2 in Gasphase	Rest geht in Gasphase	Verbrauch entsprechend „Carbonatisierungs“-Rate
Portlandit nur noch im restlichen Einlagerungsbereich (REB) vorhanden		
Kohlendioxid	Methanogenese	Carbonatisierung
durch Abbau gebildetes CO_2	CO_2 -Anteil reagiert instantan	—
CO_2 in Gasphase	Verbrauch entsprechend Methanogenese-Rate	Rest geht in Gasphase Verbrauch entsprechend „Carbonatisierungs“-Rate (mit abnehmender Portlandit-Menge asymptotisch gegen Null)

Tabelle 1: Schematischer Ablauf der Steuerung von Methanogenese und Carbonatisierung im Modell. Die Anteile des Kohlendioxids, die in die Methanogenese bzw. die Carbonatisierung gehen, werden im Modell durch die entsprechenden Regelparameter vorgegeben

4 Probabilistisches Modell

Das Grundmodell von GASGEN ist in einem deterministischen Modul implementiert. Dieses berechnet die Gasentwicklung für einen festen vorgegebenen Datensatz. Da sämtliche Eingangsdaten für die Berechnungen mit Unsicherheiten behaftet sind, müssen diese in der Modellberechnung berücksichtigt werden. Eine zu diesem Zweck häufig eingesetzte Methode ist die probabilistische Modellierung.

Bei dem verwendeten probabilistischen Programmcode *CIRCE* handelt es sich um eine hauseigene Weiterentwicklung des public domain Programmcodes *CIRCE* des Oak Ridge National Laboratory (USA). Dieses Paket basiert auf der *Latin Hypercube Sampling* Methode.

Das Softwarepaket liefert Wahrscheinlichkeitsverteilungen von Parametersätzen (konstant, triangular verteilt, gleichverteilt, normalverteilt, logarithmisch gleichverteilt, logarithmisch normalverteilt), die in einem externen Modell (hier: GASGEN) Verwendung finden. Neben der Verwendung statistischer Kenngrößen (Mittelwert, Varianz und Standardabweichung) der Inputparameter und der Ausgabe statistischer Verteilungen der Ergebnisse (Perzentilen, Min-, Max- und Medianwerte) können Korrelationen zwischen verschiedenen Inputparametern berücksichtigt werden.

Die *Latin Hypercube Sampling* Methode (LHS) garantiert dabei eine effizientere Abbildung des Parameterraums als eine einfache Zufallsgenerierung (Monte Carlo Methode). Bei dem LHS-Verfahren wird sicher gestellt, dass auch für kleine Probenzahlen der gesamte mögliche Varianzbereich des Parameterraums adäquat Berücksichtigung findet.

Das deterministische Modell berechnet für jeden Parametersatz sämtliche Resultate; diese können anschließend statistisch ausgewertet werden. Die Resultate können dann für jedes Produkt als Bandbreiten mit einer Wahrscheinlichkeitsverteilung dargestellt werden. Diese reflektieren die Bandbreiten der Eduktmengen und der Geschwindigkeitskonstanten. Bei der Darstellung und Interpretation der Resultate wurden stets die probabilistischen Rechnungen ausgewertet; deterministische Rechnungen mit den Referenzparametern wurden nicht berücksichtigt. Um extreme Ergebnisse mit geringer Wahrscheinlichkeit auszuschließen, wurden dazu die Bandbreiten zwischen den 5% und den 95% Perzentilen (bezogen auf die gebildeten Gasmengen) verwendet.

5 Stoffinventare und Modellparameter

Die wichtigsten Parameter für die Prognose der Gasentwicklung sind die Stoffinventare und die Geschwindigkeitskonstanten für die gasbildenden Prozesse. Weitere Modellparameter steuern den Ablauf und die Kopplung der Prozesse sowie die Inhibition der Fermentation.

5,1 Stoffinventare

Für die Modellierung der Gasbildung mit dem Programm GASGEN werden die Mengenangaben für die Stoffe Zellulose, Kunststoffe, Eisen, Portlandit, Nitrat, Sulfat und Wasser benötigt. Für die probabilistische Modellierung ist für jeden Stoff ein Referenzwert und eine Verteilungsfunktion erforderlich.

Die Inventardaten stammen überwiegend aus Kugel & Noack (2000) und Blanke & Walter (2001). Die in Kugel & Noack (2000) angegebenen Mengen in Megagramm (Mg) können direkt verwendet werden. Aus den Daten nach Blanke & Walter (2001) für die ermittelte Menge der Organika und der Metalle und den Hochrechnungen für die gesamte Stoffmenge wurden die Anteile an Organika und Metall proportional abgeleitet (Tabelle 2).

Feldesteib	im ERAM erfasste Mengen			Hochrechnung		
	Organika	Metall	Gesamt	Gesamt	Organika	Metall
Ostfeld	14	66	80	113	20	93
Südfeld	110	183	293	631	237	394
Westfeld	2	5	7	15	4	11
Nordfeld	0	0	0	0	0	0
UMF	0	144	144	144	0	144
Zentralteil	0	42	42	46	0	46
Restgrube Bartensleben	332	1225	1557	1837	392	1445
Summe	458	16651	2123	2786	653	2133

Tabelle 2: Ermittelte Gesamtmenge (Blanke und Walter 2001) und Hochrechnung der Abfallinventare in den Einlagerungsbereichen und der Restgrube Bartensleben (in Mg).

Zellulose

Die Daten für Zellulose stammen aus Kugel & Noack (2000) und Blanke & Walter (2001). Die Angaben für Organika aus Blanke & Walter (2001) wurden vollständig als Zellulose angerechnet. Für die Untergrenze werden 70 % des Referenzwertes angesetzt. Als Obergrenze wird wegen der Ungenauigkeit der Daten 130 % des Referenzwertes angesetzt. Der Referenzwert für die Restgrube entspricht dem Inventar der übrigen Grube Bartensleben. Der Minimalwert berücksichtigt 20 % Messungenauigkeit. Für den Maximalwert wurde zusätzlich das Inventar in der Grube Marie berücksichtigt und der Messfehler von 20 %. Zur Umrechnung der Menge von Zellulose wurde formal die Molmasse des Monomers ($C_6H_{10}O_5$) von 162 g eingesetzt.

Kunststoffe

Die Daten für Kunststoffe, Styrol-Copolymerisate und sonstige Organika stammen aus Kugel & Noack (2000). Für die Untergrenze werden wegen der Ungenauigkeit der Daten 70 % des Referenzwertes angesetzt. Als Obergrenze wird 130 % des Referenzwertes angesetzt plus das Inventar an Bitumen in Mg (= t). Für die Stöchiometrie wurde vereinfachend angenommen, dass es sich bei den Polymeren um Polyethen (PE) handelt (vgl. Abschnitt 2.2.1). Für die Mengenangabe in Mol wurde die Molmasse des Modell-Monomers (C_2H_4) von 28 g eingesetzt.

Eisen

Die Daten für die Metalle stammen aus Kugel & Noack (2000) und Blanke & Walter (2001). Die Untergrenze wird mit 70 % und die Obergrenze mit 130 % angenommen. Alle Metalle werden als Eisen betrachtet (Molmasse 55,85 g). Für das übrige Grubengebäude entspricht der Referenzwert dem Inventar der Grube Bartensieben. Der Minimalwert berücksichtigt 20 % Messungenauigkeit. Für den Maximalwert wurde zusätzlich das Inventar in der Grube Marie berücksichtigt und der Messfehler von 20 %.

Nitrat

Als Referenzwert werden die Daten für Salze aus Kugel & Noack (2000) verwendet. Alle Salze werden als Natriumnitrat ($NaNO_3$) betrachtet (Molmasse 85 g). Wegen der Unsicherheit der Daten und weil wahrscheinlich die Salze nicht ausschließlich aus Nitrat bestehen, wird für die Untergrenze 50 % angesetzt, und die Obergrenze wird auf 115 % des Referenzwertes festgelegt.

Portlandit

Portlandit steht für die Menge an verfügbarem Calcium für die Ausfällung von Kohlendioxid (CO_2) (Siehe Anhang B). Als Quellen für verfügbares Calcium dienen „Silikate“ (nach Angaben in Kugel & Noack 2000), Zement (nach Kugel & Noack 2000), Braunkohlefilterasche (BFA) (nach Kugel und Noack 2000, mit Bandbreiten, vgl. Anhang A, Tabelle A6) und Salzbeton (mit Bandbreiten gemäß Verfüllplan, vgl. Anhang A, Tabelle A6).

Die Salzbetonmengen für die Einlagerungsbereiche sind der Tabelle 6.2 aus DBE (2001) entnommen, für die übrige Grube der Tabelle 6.1. Die Bandbreite der Salzbetonmenge des restlichen Grubengebäudes ergibt sich aus der Variation des betrachteten Teils der übrigen Grube: Das Minimum entspricht der Menge in der Grube Marie und das Maximum entspricht der Menge in den Gruben Marie und Bartensieben. Der Referenzwert entspricht der Grube Bartensieben. Abweichend von den Angaben in Tabelle 6.2 (DBE 2001) ist für den Minimalwert des gemeinsamen West-/Südfeldes nicht das "kleine Südfeld"¹ verwendet worden, sondern das Referenzsüdfeld abzüglich des Messfehlers.

¹ Für die Rechnungen zum Nachweis der Langzeitsicherheit wird davon ausgegangen, dass im Südfeld die Einlagerungsgrubenbaue im Minimum nur mit den Abbauen 8s, 9n und 9s auf der 4a-Sohle, den Abbauen 1s, 8n und 8s auf der 3. Sohle, den Abbauen 1s auf der 3a und der 2. Sohle, den Abbauen 1n und 1s auf der 2a-Sohle und dem Abbau 1n auf der 1. Sohle verbunden und gegen den restlichen Einlagerungsbereich abgedichtet sind. Der Referenzfall für das Ostfeld („kleines Ostfeld“) hat als Einlagerungsbereich nur 1/3 des Volumens des Ostfelds. Im folgenden sind die Maximalwerte (Portlanditmengen, Hohlraumvolumina und daraus abgeleitete Größen) stets auf den gesamten Einlagerungsbereich bezogen.

Die Menge an verfügbarem Calcium wurde für die einzelnen Materialien mit dem jeweiligen Gehalt an verfügbarem Calcium (vgl. Anhang B) berechnet. Die Unter- bzw. Obergrenze wurde unter Verwendung der Unter- bzw. Obergrenze für die BFA- und Salzbetonmenge ermittelt.

Sulfat

Zur Bestimmung des Referenzwertes wurden die folgenden Modellannahmen getroffen: Zur Umsetzung der Abfälle (Korrosion von Eisen, mikrobieller Abbau der Organika) wird Wasser benötigt. Dieses stammt aus zugeflossener Salzlösung (IP21-Lösung). Aus der stöchiometrisch minimal erforderlichen Wassermenge wird über die Zusammensetzung der IP21-Lösung die Menge an Sulfat berechnet.

Das Sulfat im Versatzstoff ist chemisch gebunden und daher wenig mobil. Auch das Sulfat aus zutretender IP21-Lösung kann durch den Portlandit im Versatzstoff als Gips, Ettringit etc. ausgefällt werden, bevor es die Abfälle erreicht. Für die Untergrenze wird daher angenommen, dass nahezu kein Sulfat für den mikrobiellen Abbau der Organika verfügbar ist.

Als Obergrenze wurde die Sulfatmenge ermittelt, die in der zum Einlagerungsbereich (Referenzwert) zutretenden Lösungsmenge (unter der Annahme einer IP21-Lösung) enthalten ist. Die Berechnung ist in Tabelle A4 im Anhang A dargestellt. Die Teilvolumina (unverfüllt, kompaktierbar versetzt, nicht kompaktierbar versetzt) für die Einlagerungsbereiche sind der Tabelle 6.1 in DBE (2001) entnommen.

Wasser

Bei den durchgeführten Modellrechnungen wurde angenommen, dass zu jedem Zeitpunkt für die gasbildenden Prozesse ausreichend Wasser zur Verfügung steht. Dazu wird in den jeweiligen Einlagerungsbereichen jene Wassermenge eingesetzt, die sich im gesamten Poren- und Hohlraum befindet. Dabei wurde für die Lösungszusammensetzung einheitlich von einer IP21-Lösung ausgegangen. Die Teilvolumina (unverfüllt, kompaktierbar versetzt, nicht kompaktierbar versetzt) für die Einlagerungsbereiche sind der Tabelle 6.1 in DBE (2001) entnommen. Die Berechnung ist im Anhang A in den Tabellen A1 bis A3 dargestellt.

In den Tabellen 3 und 4 sind die Stoffinventare für die einzelnen Einlagerungsbereiche zusammengestellt. Entsprechend den Anforderungen von GASGEN werden die Werte in der Einheit Mol angegeben.

Material	Südfeld	* Westfeld	West-Südfeld	Ostfeld
Mengen in Mol				
Zellulose	1.60E+06	8,56E*06	1.02E+07	1.55E+06
ME	1.12E+06	1.45E+08	7,12E*06	1.09E+06
Max.	2,09E*Q6	1.11E+07	1,32E+Ö7	2,01 E+Q6
Kunststoffe	5,96E+Q6	1.20E+08	1.26E+08	2.04E+07
Min.	4.18E+Q6	8,43E+07	8.85E+07	1.43E+07
Max.	7,79E+08	1.57E+08	1.65E+08	2.65E+07
Metall	1.54E+07	1.45E+08	1.60E+08	5.35E+Q7
Min.	1.08E+07	1.02E+08	1.12E+08	3,75E*07
Max.	2,00E+Ö7	1.89E+08	2.09E+08	6,96E*Q7
Portlandit	1.11E+09	1.25E+08	1.24E+09	2,2QE+Q8
Min.	1.88E+08	8.87E+07"	1.10E+Ö9J	5T38E+07
Max.~	1.18E+09	1.34E+08	1.32E+09	5.37E+08
Na^NÜrät	T?[6E+Q7	2,58E+06	1.42E+07	1.36E+06
Min.	5,81 E+H36	1.29E+06	7,09E+i06	6.82E+05
Max.	1.34E+07	2.96E+06"	1.63E+07	1.57E+06
Sulfat	1.23E+05	1.34E+06	1.47E+06	4,13E+05
Min.	1.00E+01	1.00E+01	1.00E+01	1.00E+01
Max.	8.93E+07	6.56E+06	9.76E+07	6.27E+06

Tabelle 3: Inventardaten [mol] für die GASGEN-Berechnungen. Die Werte wurden aus den Rohdaten in den Tabellen A1 bis A3 und A6 im Anhang A abgeleitet

Material	Nordfeld	Zentralteil	Sohlenbohr- loch	Restgrube
Mengen in Mol				
Zellulose	6.05E+05	1.23E+04	0,00EH-00	2.42E+06
Min. ~	<u>4.23E+05</u>	<u>8.64E+03</u>	<u>Q,00E"+QQ</u>	<u>1.94E+Ö6</u>
Max.	<u>7.86E+05</u>	<u>1.60E+04</u>	<u>0,00E+00</u>	4.90E+06
Kunststoffe	<u>5,71 E+06</u>	<u>3,57E*Q4</u>	<u>7,14E+03</u>	<u>Q,QQE+QQ</u>
Min.	<u>4,00E+06</u>	<u>2,50E+04</u>	<u>5,QQE-*03</u>	<u>0,00E+00</u>
Max.	<u>8.33E+06</u>	<u>4.64E+04</u>	<u>9.29E+03</u>	<u>0,00E+00</u>
Metall	<u>5,57E+06</u>	<u>1,97E+06</u>	<u>6,62E+03</u>	<u>2,59E+07</u>
Min.	<u>3,90E+08</u>	<u>1,38E+06</u>	<u>4,64E+03</u>	<u>2,07E*Q7</u>
Max.	<u>7,24E-S06</u>	<u>2,56E+06</u>	<u>8,61 E " ^</u>	<u>5,2E+07</u>
Portlandit	<u>3,04E+06</u>	<u>5,64E+07</u>	<u>4,56E+04</u>	<u>6,08E+09</u>
Min.	<u>"3,04E+06</u>	<u>5,38E+07</u>	<u>2,36E+04</u>	<u>1,29E+09</u>
Max.	<u>3,04E+06</u>	<u>5,85E+07</u>	<u>1,11E+05</u>	<u>7,36E+09</u>
Na-Nitrat	<u>2,12E+05</u>	<u>2,35E+04</u>	<u>0,00E+00</u>	<u>0,00E+00</u>
Min.	<u>1,06E+05</u>	<u>1,18E+04</u>	<u>0,00E+00</u>	<u>0,00E+00</u>
Max.	<u>2,44E+05</u>	<u>2,71 E+04</u>	<u>Q,00E+0Q</u>	<u>0,00E+00</u>
Sulfat	<u>5,59E+04~~</u>	<u>1,28E+04</u>	<u>6,53E+01</u>	<u>1,74E+05</u>
Min.	<u>1,00E+01</u>	<u>1,00E+01</u>	<u>1,00E+01</u>	<u>1,00E+01</u>
Max. "	<u>2,24E+Ö5</u>	<u>3,53E*06</u>	<u>6,03E+02</u>	<u>2,24E*08</u>
Wasser	<u> 7,00E+07 </u>	<u>~~V1ÖE+Ö9r~</u>	<u>IT88E+Ö5 </u>	<u>6J98^10</u>

Tabelle 4: Inventardaten [mol] für die GASGEN-Berechnungen. Die Werte wurden aus den Rohdaten in den Tabellen A1 bis A3 und A6 im Anhang A abgeleitet

5.2 Modellparameter

Für die Modellberechnungen werden neben den Inventarmengen weitere Parameter benötigt. Dazu gehören die Geschwindigkeitskonstanten der mikrobiellen Prozesse und der Korrosion sowie eine Reihe von weiteren Parametern für die Kopplung der einzelnen Reaktionen. Die Geschwindigkeitskonstanten sind aus Experimenten abgeleitet. Dabei musste berücksichtigt werden, dass die Beobachtungszeiträume bei Laborexperimenten um mehrere Größenordnungen kürzer sind als die zu modellierenden Zeiträume. Außerdem wird bei experimentellen Untersuchungen fast immer ein kleines homogenes Volumen betrachtet, während die Verteilung der Materialien in den Einlagerungsbereichen des ERAM eine beträchtliche Heterogenität aufweist.

5.2.1 Metallkorrosion

Die Korrosionsraten hängen neben der Metallzusammensetzung von einer Vielzahl von weiteren Faktoren ab. Da die Korrosion durch die Bildung von dichten Oxidschichten auf der Oberfläche inhibiert werden kann (Passivierung), hängen die Korrosionsraten stark davon ab, ob in der umgebenden Lösung chemische Stoffe gelöst sind, welche die Bildung oder die Auflösung von solchen Oxidschichten begünstigen. Da diese Einflüsse nur qualitativ bekannt sind, muss bei der Modellierung auf empirische Korrosionsraten zurückgegriffen werden. Die von Noack (2000) kompilierten Korrosionsraten sind in Tabelle 5 aufgeführt.

pH-Wert	Korrosionsraten für Eisen [m/a]		
	Referenzwert		Bandbreite
>7	03		0,03-3
<7	3	1	0,3-30

	Korrosionsraten für Aluminium [nm/a]		
	Referenzwert		Bandbreite
6 - 8	100		10-1'000
<6, >8	1'000	1	100-10'000

	Korrosionsraten für Zink [µm/a]		
	Referenzwert		Bandbreite
6 - 8	100		10-1'000
<6, >8	1'000	1	100-10'000

Tabelle 5: Korrosionsraten für Eisen, Aluminium und Zink nach Noack (2000)

Noack (2000) klassifizierte die metallischen Abfallkomponenten im ERAM gemäß den unterschiedlichen Materialdicken. Nach dieser Schätzung liegen 70 % der Eisenkomponenten und 80 % der Aluminiumkomponenten im Bereich von 1 - 4 mm Dicke, während 80 % der Zinkkomponenten eine Dicke von weniger als 0,1 mm aufweisen. Damit handelt es sich bei der Mehrheit der Metallkomponenten um relativ dünnwandige Stücke, die sich gut als dünnwandige Platte modellieren lassen. In diesem Fall wird die Rate der Gasentwicklung durch die (konstante) Oberfläche und deren Dauer durch die Dicke des Materials bestimmt. Die gesamte Gasbildungsrate setzt sich dann aus den Beiträgen der einzelnen Klassen zusammen.

Die Zeitabhängigkeit der gemäß Noack (2000) gebildeten Gasmengen erlaubt den Rückschluss, dass mit einer Korrosionsrate für Eisen von 3 µm/a gerechnet worden war. Daraus wurde, wie in Abschnitt 3.3 beschrieben, für die Modellrechnungen mit GASGEN eine Geschwindigkeitskonstante von $3.5 \cdot 10^{-3}$ /a erhalten. Dieser Wert wurde für die probabilistischen Rechnungen unter Berücksichtigung der Bandbreite für Eisen (Tabelle 5) um einen Faktor 10 nach oben und einen Faktor 100 nach unten variiert.

5.2.2 Mikrowelle Prozesse

Die Raten der einzelnen mikrobiellen Abbaureaktionen müssen aus experimentellen Untersuchungen abgeleitet werden. Leider stehen dafür nur sehr wenige Daten zur Verfügung. Die gemessenen Raten hängen von verschiedenen Parametern wie der Art des organischen Materials, der Bakteriendichte, den Konzentrationen von Edukten, Spurenelementen und Inhibitoren ab. Für eine detaillierte Ableitung der Abbauraten wäre darum eine sehr umfang-

reiche Charakterisierung des experimentellen Systems erforderlich, was in der Praxis nur teilweise erfüllt ist.

Ein Vergleich zwischen unterschiedlichen Experimenten ist wegen den verschiedenen Einflussfaktoren nur in Einzelfällen aufschlussreich. Aus Vergleichsexperimenten, die sowohl mit als auch ohne Nitrat durchgeführt wurden, lässt sich schließen, dass die Denitrifikation schneller abläuft als die übrigen Prozesse. Diese Beobachtung ist auch mit anderen Erwägungen kompatibel. Für die Sulfatreduktion und die Fermentation kann von vergleichbaren Reaktionsgeschwindigkeiten ausgegangen werden.

Alle Größen, welche die Geschwindigkeit der Abbauprozesse beeinflussen (z.B. pH-Wert, Zusammensetzung der Lösungen), sind in den verschiedenen Einlagerungsbereichen sehr variabel und können sich auch im Laufe der Zeit ändern. Bei deterministischen Rechnungen sind die Werte für jeden Parameter fix vorgegeben. Die probabilistische Modellierung erlaubt eine große Anzahl von Berechnungen mit verschiedenen Parametern, die über eine vorgegebene Bandbreite variieren. Damit können die Unsicherheiten der einzelnen Parameter angemessen berücksichtigt werden.

Aus einer Zusammenstellung der vorhandenen Daten (Suter et al., 1999) und einigen grundsätzlichen Überlegungen zur chemischen Kinetik lassen sich repräsentative Bandbreiten für die einzelnen Raten ableiten (Tabelle 6). Die Bandbreite kann aus den wenigen verfügbaren Experimenten nach den folgenden Überlegungen abgeleitet werden: Die höchsten experimentellen Raten von verschiedenen Experimenten liegen in derselben Größenordnung. Es ist nicht anzunehmen, dass langfristige Abbauraten höher als die beobachteten kurzfristigen Maximalraten sein können, da bei hohen Raten die verschiedenen lokal vorhandenen Edukte und Spurenelemente schnell verbraucht wären, wodurch die Raten sinken würden. Als absolutes Minimum könnte theoretisch angenommen werden, dass kein Abbau stattfindet. Da aber davon auszugehen ist, dass es während eines Zeitraumes von 1 Mio. Jahren in der Gegenwart der benötigten Edukte und Wasser zu einem Abbau kommt, werden auch die kleinsten Raten größer als Null gesetzt.

Abbauprozess	Geschwindigkeitskonstante [a^{-1}]		
	Minimum	Referenzwert	Maximum
Zellulose, Denitrifikation	1,0 E-04	2,0 E-02	3,0 E-02
Zellulose, übrige Prozesse	1,0 E-05	3,0 E-03	3,0 E-02
Kunststoffe	1,0 E-06	2,0 E-04	3,0 E-03
"Methanogenese	1,0 E-05	3,0 E-03	3,0 E-02

Tabelle 6: Geschwindigkeitskonstanten der mikrobiellen Abbauprozesse

Zum Zelluloseabbau durch Denitrifikation liegen einige wenige Experimente vor. Aus dem Vergleich mit ähnlichen Experimenten, die mit und ohne Zugabe von Nitrat durchgeführt wurden, lässt sich schließen, dass der Abbau in Gegenwart von Nitrat deutlich schneller ist.

Die Ableitung von Abbauraten für Kunststoffe erweist sich wegen der geringen und selektiven Datenbasis als schwierig. Abbauprozesse werden vor allem mit leicht bis mittelschwer abbaubaren Kunststoffen (z.B. zur Prüfung ihrer Eignung als Verpackungsmaterial, das sich auf Deponien rasch zersetzen soll) durchgeführt. Untersuchungen des Abbaus von schwer abbaubaren Kunststoffen sind im Hinblick auf deren Alltagsgebrauch nicht von Interesse, außerdem wären Experimente nur schwer durchzuführen und würden viele Jahre dauern. Teilweise werden stabile Kunststoffe in der Literatur als „nicht abbaubar“ klassifiziert. Dies ist für kurze bis mittlere Zeiträume zweifellos eine sinnvolle Näherung. Für die langfristi-

ge Betrachtung in einem Endlager ist dies jedoch nicht anwendbar, denn auch ein sehr langsamer Abbau kann zu einer Akkumulation von Gas führen und zu einem späten Zeitpunkt als treibende Kraft für die Radionuklidfreisetzung wirken. Aus diesem Grund wurden konzeptuelle Annahmen für den langsamen Abbau der Kunststoffe getroffen. Als untere Grenze für den Bereich der Abbauraten wurde ein Wert eingesetzt, der um eine Größenordnung kleiner ist als jener für den Abbau von Zellulose. Bei Bitumen, das bei gewissen Abfällen als Konditionierungsmittel eingesetzt wird, stellt sich ebenfalls die Frage nach der Abbaubarkeit. Je nach Perspektive wird es in der Literatur als langsam abbaubar oder als nicht abbaubar bezeichnet. Um diese Unsicherheit im Modell angemessen zu berücksichtigen, wird Bitumen für die Berechnung des Referenz- und des Minimalinventars der Kunststoffe nicht berücksichtigt, aber bei der Berechnung des Maximalinventars wird es zur Menge der Kunststoffe hinzugezählt. Auf diese Weise kann im Modell sowohl die Annahme eines langsamen Abbaus als auch jene einer vollständigen Inertheit evaluiert werden.

Für die reine Methanogenese liegen keine experimentellen Daten vor. Die Bandbreite der Geschwindigkeitskonstanten wurde darum in Relation zu den Werten der übrigen Prozesse abgeleitet. Da die Edukte bei der Methanogenese gasförmig sind, entfällt der bei den Abbaureaktionen der Feststoffe in der Regel geschwindigkeitsbestimmende Schritt der Hydrolyse. Da die Methanogenese in der Natur die Folgereaktion der Fermentation darstellt, wird davon ausgegangen, dass sie nicht schneller als jene abläuft. Aus diesen Gründen wird für die Methanogenese dieselbe Geschwindigkeitskonstante wie für den Abbau der Zellulose eingesetzt.

5.3 Verteilungsfunktionen und Korrelationen

Für normal und log-normalverteilte Parametersätze werden für alle Beispiele minimaler und maximaler Grenzwert mit dem Abstand der doppelten Standardabweichung, 2σ , vom Referenzwert festgelegt, was sicherstellt, dass sich 95% der Proben im zwischen diesen Grenzwerten befinden. Bei abgeschnittenen Normalverteilungen wird die doppelte Standardabweichung 2σ durch das größere Intervall zwischen dem Referenzwert und dem Minimal- bzw. Maximalwert bestimmt.

Die nachfolgende Tabelle 7 gibt die verwendeten Verteilungsfunktionen der Inputparameter wieder;

Parameter	Verteilungs- funktion	Verteilungsfunktion definiert durch:			
Zellulose initial Kunststoffe initial Eisen initial Portlandit initial Nitrat initial	u	Referenz- wert		Minimaler Grenzwert	Maximaler Grenzwert
Wasser initial	c	Referenz- wert			
Sulfat initial	lu	Referenz- wert		Minimaler Grenzwert	Maximaler Grenzwert
Zelluloseabbau Kunststoffabbau Eisenkorrosion Portlanditbindung Zellulose- Denitrifikation Methanogenese	ln	Mittelwert	Standard- abweichung	Minimaler Grenzwert	Maximaler Grenzwert

Tabelle 7: Verteilungsfunktionen der Inputparameter (c = konstant; u = gleichverteilt, lu logarithmisch gleichverteilt; ln = logarithmisch normalverteilt); bei den gleich- und log-gleichverteilten Parametern hat der Referenzwert nur für die deterministischen Rechnungen eine Bedeutung

Weil davon ausgegangen wird, dass der mikrobielle Abbau von Zellulose und von Kunststoffen grundsätzlich den gleichen (beschleunigenden oder inhibierenden) Einflüssen unterliegt, wird eine Kopplung zwischen dem Zelluloseabbau und dem Kunststoffabbau angewendet. Da sowohl die mikrobiellen Prozesse als auch die Korrosion stark vom lokalen Wasserangebot abhängen, wurde auch eine Kopplung zwischen den entsprechenden Raten definiert. Dabei werden für alle Felder folgende Korrelationsbeziehungen berücksichtigt:

Parameter 1		Parameter 2	Linearer Korrelationskoeffizient r
Zelluloseabbau	<=>	Kunststoffabbau	0,8
Zelluloseabbau	o	Korrosion	0,5
Kunststoffabbau	<=>	Korrosion	0,5

5.4 Regelparameter

Die Regelparameter im Programm GASGEN steuern den Ablauf der gasbildenden Reaktionen. Operationell haben die Regelparameter unterschiedliche Funktionen. Tabelle 8 gibt eine Übersicht über die verwendeten Regelparameter.

5.4.1 Edukt-Regler

Im Modell ist die Abbaurrate des Hauptedukts proportional zu seiner Konzentration. Für die weiteren Reaktionspartner gelten andere Zusammenhänge. Von biologischen Vorgängen ist bekannt, dass z.B. die Wachstums- oder Reproduktionsgeschwindigkeit in weiten Bereichen unabhängig von der Konzentration weiterer Nährstoffe ist, solange ein gewisses Minimum zur Verfügung steht. Erst bei dessen Unterschreitung werden die Prozesse verlangsamt. Daher wäre es nicht richtig, die Konzentration der Nebenedukte (z.B. Nitrat bei der Denitrifikation) explizit in die Differentialgleichung aufzunehmen. Es muss jedoch sichergestellt werden, dass die jeweilige Reaktion zum Stillstand kommt, wenn das entsprechende Nebenedukt aufgebraucht ist. Außerdem soll die Reaktion abgebremst werden, wenn dessen Menge einen gewissen Wert unterschreitet. Zu diesem Zweck wird in die Gleichung ein Regler F eingeführt. Er ist hoch (je nach Reaktion 0,9 bis 1), falls genügend Edukt im System vorhanden ist. Unterschreitet das Edukt einen vorgegebenen Schwellenwert, wird der Regler F linear vom maximalen Wert $F(\max.)$ auf den minimalen Wert $F(\min.)$ zurückgeführt. Wenn die Menge des Edukts null ist, dann ist der Wert des Reglers meistens ebenfalls null.

$$dy/dt = -FA, y$$

Da die „Umschaltung“ von einer Reaktion zur anderen wegen der Heterogenität in den Einlagerungsbereichen nicht überall gleichzeitig erfolgt, werden die Obergrenzen für die Regler meistens nicht auf 1 gesetzt, sondern liegen im Bereich 0,9 bis 0,99. Dies ermöglicht einen Übergang zur sequenziell nächsten Reaktion, bevor die vorhergehende Reaktion vollständig abgelaufen ist.

6.4.2 Inhibitions-Regler

Der Regler für die Inhibition der Fermentation durch Wasserstoff weist dieselbe mathematische Form auf wie die übrigen Regler. Allerdings unterscheidet er sich von jenen in einigen Punkten. Während die Abbaureaktion bei einem hohen Angebot des Edukts abläuft und bei geringer Menge abgebremst wird, wirkt die Inhibition durch das Produkt Wasserstoff nicht bei tiefer, sondern erst bei erhöhter Konzentration. Die Inhibition setzt bei einem Wasserstoff-Partialdruck von 10 Pa ein und nimmt bis zur maximalen Inhibition bei einem Partialdruck von 10000 Pa zu. Der zweite Unterschied liegt darin, dass die Inhibition durch die Konzentration (bzw. Aktivität) des Wasserstoffs bestimmt wird, nicht durch die Menge. Da das Modell grundsätzlich nur mit Mengen rechnet, muss in diesem Fall bei der Festlegung der Schwellenwerte die Umrechnung von der Konzentration auf die Menge im entsprechenden Einlagerungsbereich vorgenommen werden.

Wegen der großen Bandbreite der Werte vom Einsetzen der Inhibitionswirkung bis zum Maximum erfolgt die Interpolation zwischen dem unteren und dem oberen Schwellenwert nicht linear, sondern im logarithmischen Raum, d.h. durch eine Potenzfunktion.

Regler	Funktion	Unterer Schwellenwert [Einheit]	Oberer Schwellenwert [Einheit]	Faktor Minimum	Faktor Maximum
Nr. 4	Verfügbarkeit von Portlandit [-][-]	0	feldspezifisch	0	0,9
Nr. 5	Verfügbarkeit von Wasser	0 [-1]	1,0E-04 [-1]	0	1,0
Nr. 6	Verfügbarkeit von Nitrat	0 [-]	1,0E-04 [-]	0	0,995
Nr. 7	Verfügbarkeit von Sulfat	0	feldspezifisch	0	0,9
Nr. 8	Inhibition durch Wasserstoff	feldspezifisch [Mol]	feldspezifisch [Mol]	1	0,05
Nr. 10	Anteil Kohlendioxid für Carbonatisierung	0 Mol	1,0E+02 Mol	0	0,9
Nr. 8M	Verfügbarkeit von Wasserstoff	0 Mol	1,0E+03 Mol	0	1,0
Nr. 10M	Verfügbarkeit von Kohlendioxid für Methanogenese	0 Mol	1,0E+04 Mol	0	0,9

Tabelle 8: Parameter für die Regler. Die Schwellenwerte sind entweder als Bruchteil des entsprechenden Inventars oder als absolute Stoffmenge in Mol festgelegt. Die feldspezifischen Schwellenwerte sind in Tabelle 9 aufgeführt. Die Herleitung findet sich in den Tabellen A4 und A5 im Anhang A

Dem Regler Nr. 4 (Verfügbarkeit von Portlandit) liegt die folgende Annahme zugrunde: CO₂ (welches überwiegend in Einlagerungsgrubenbauen gebildet wird) reagiert rasch mit dem Portlandit in den Einlagerungsgrubenbauen, da es die Versatzmaterialien zumindest teilweise durchströmen muss, bevor es in den restlichen Einlagerungsbereich gelangen kann. Einmal dort angekommen, erfolgt die Reaktion mit Portlandit, der sich dort im Versatz befindet, deutlich langsamer (weil durch Diffusionsprozesse begrenzt). Der obere Schwellenwert wird daher durch den Anteil an Portlandit im restlichen Bereich, bezogen auf den gesamten Einlagerungsbereich, berechnet. Solange dieser Wert überschritten ist, befindet sich noch Portlandit im Einlagerungsgrubenbau, und die Umsetzung erfolgt rasch (vgl. die Darstellung in Tabelle 1).

Da die für die Sulfatreduktion zur Verfügung stehende Sulfatmenge durch das Poren- und Hohlraumvolumen mitbestimmt wird, muss beim Regler für die Sulfatreduktion (Nr. 7) die entsprechende Menge, ähnlich wie beim Portlandit, für jeden Einlagerungsbereich individuell bestimmt werden. Es wird dabei zwischen dem Sulfat im Einlagerungsgrubenbau (EH) und jenem im restlichen Einlagerungsbereich (REB) unterschieden. Der Umschaltzeitpunkt für die Sulfatreduktion ist dann erreicht, wenn das Sulfat im Einlagerungsgrubenbau (EH) verbraucht ist und nur noch der entsprechende Anteil im restlichen Einlagerungsbereich (REB) übrigbleibt. Die entsprechenden Werte sind in Tabelle 9 zusammengestellt.

Die Regler Nr. 5 und 8M sind nur aus numerischen Gründen erforderlich, damit die entsprechenden Prozesse langsam abklingen, wenn die Edukte fast verbraucht sind; den Schwellenwerten kommt hier keine physikalische Bedeutung zu. Ähnlich ist es mit den oberen Schwellenwerten für die Regler 6, 10 und 10M; die Funktionswerte der Regler bestimmen hier aber zusätzlich den Anteil zwischen konkurrierenden Reaktionen.

Einlagerungs- bereich	Portlandit Anteil REB [%]	Sulfat Anteil REB [%]	Wasserstoffmenge [mol] bei 10 Pa	Wasserstoff- menge [mol] bei 10'000 Pa
Südfeld	91,3	89,9	2,7E+03	2,7E+06
Westfeld	15,0	38,6	1,9E+02	1,9E+05
West-Südfeld	83,5	87,1	2,8E+03	2,8E+06
Ostfeld	83,0	85,8	4,3E+02	4,3E+05
Nordfeld	0,0	0,0	6,7E+00	6,7E+03
Zentralteil	0,0	0,0	1,1E+02	1,1E+05
Sohlenbohrloch	0,0	0,0	1,8E-02	1,8E+01
Restgrube	0,0	0,0	6,6E+03	6,6E+06

Tabelle 9: Stoffanteile bzw. -mengen für die Steuerung der Regler für die Carbonatfällung durch Portlandit, die Sulfatreduktion und die Inhibition der Fermentation durch Wasserstoff

6 Resultate

Die Gasentwicklung wurde für jeden Einlagerungsbereich separat berechnet. Außerdem wurde die Gasentwicklung für eine Kombination von West- und Südfeld berechnet. Wegen des unterschiedlichen Ablaufs der verschiedenen Reaktionen entspricht die Gasmenge der vereinigten Felder nicht der Summe der beiden Einzelfelder.

In Tabelle 10 sind das minimale und das maximale Gasvolumen nach 1 Mio. Jahren zusammengestellt. Für die Bandbreite wurde der Bereich zwischen den 5%- und 95%-Perzentilen gewählt. Die darüber und darunter liegenden Werte stellen Extremwerte mit einer geringen Eintretenswahrscheinlichkeit dar.

Einlagerungsbereich	Gasvolumen nach 1 Mio. Jahren [in ³]	
	Minimum	Maximum
Südfeld	4,10E+05	1,04E+06
Westfeld	6,72E+Q8	1,17E+07
West-Südfeld	6,Q3E+06	1,74E+07
Ostfeld	1,82E+06	3,88E+Q6
Nordfeld	2,42E+05	3,70E+05
Zentralteil	4,48E+Q4	7,66E+Q4
Sohlenbohrloch	2,98E+Q2	9,90E+02
Restgrube	7,37E+05	1,89E+06

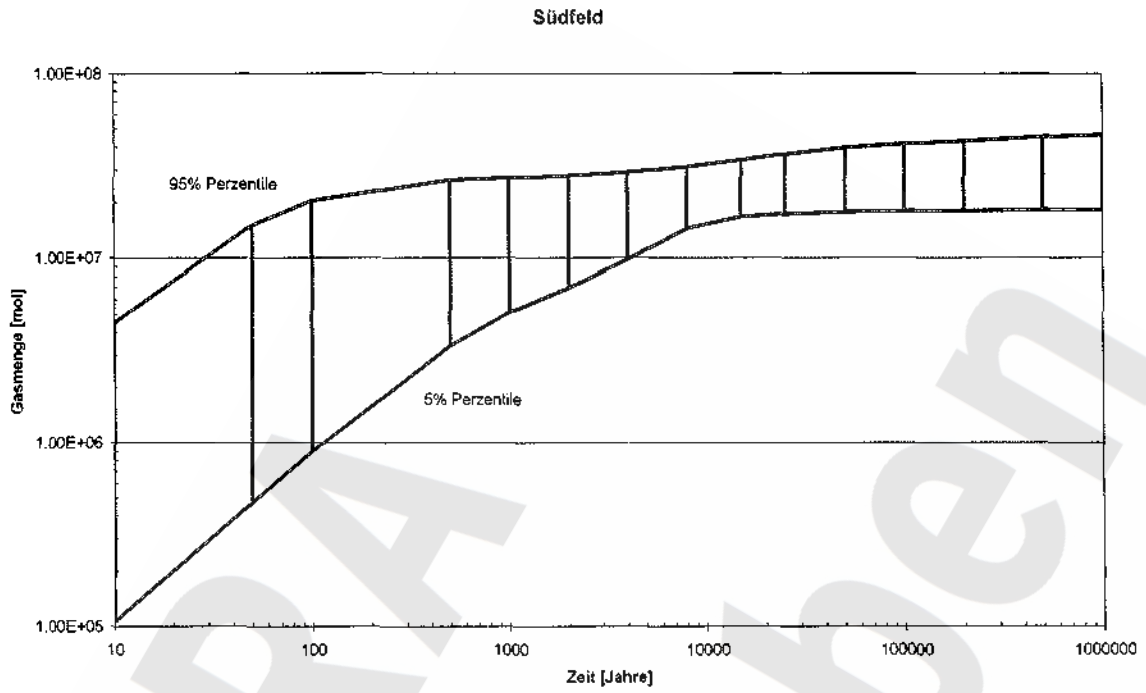
Tabelle 10: Berechnete Gesamtgasvolumen nach 1 Mio. Jahren. Das Minimum entspricht der 5% Perzentile und das Maximum der 95% Perzentile der Bandbreite für die Summe der gebildeten Gase

Wegen der hohen Metallinventare besteht der größte Teil des Gases aus Wasserstoff. Der zweitgrößte Anteil besteht in der Regel aus Methan, mit Ausnahme des Südfeldes und des Zentralteils, in denen wegen der großen Nitratmengen der Stickstoff das Methan mengenmäßig überwiegt. Der Anteil des Kohlendioxids ist sehr gering, da es entweder durch die Portlanditcarbonatisierung gebunden oder durch die Methanogenese mikrobiell umgewandelt wird. Lediglich im Nordfeld kann es vorkommen, dass Portlandit und Wasserstoff völlig verbraucht werden; als Folge bleiben dann größere Mengen an gasförmigem CO₂ übrig. In Tabelle 11 sind die minimalen und maximalen Anteile der einzelnen Gase nach 1 Mio. Jahren aufgeführt (5%- und 95%-Perzentilen der Bandbreite).

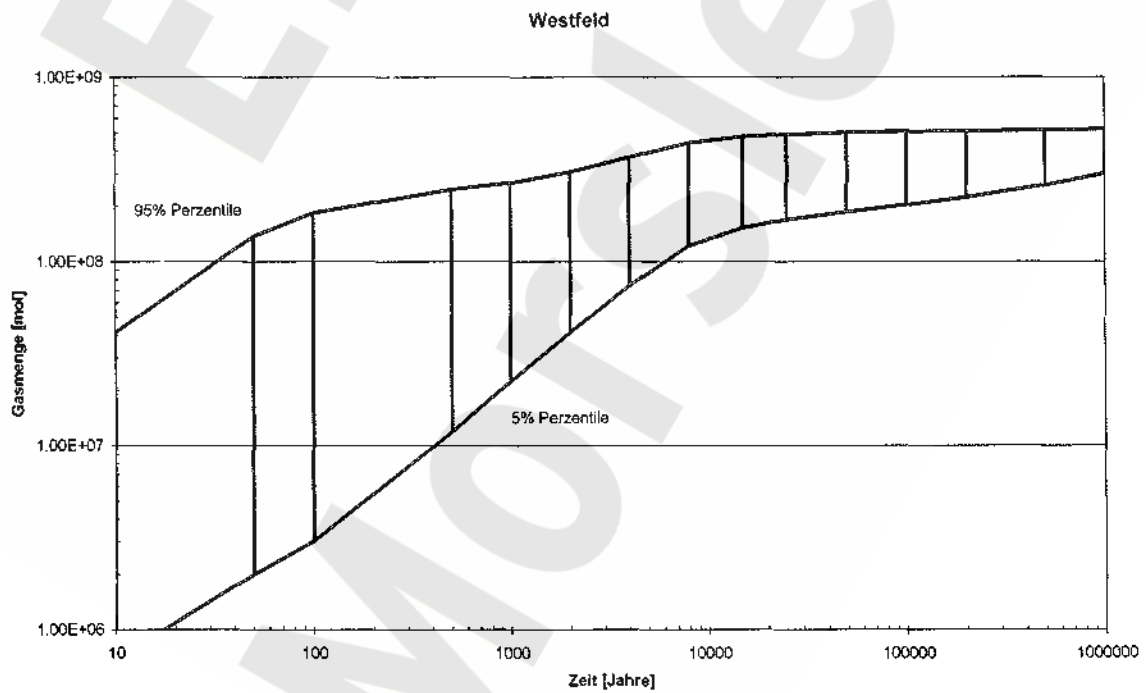
Einlagerungs- bereich	Gasvolumen nach 1 Mio. Jahren			
	Minimum, Maximum [m ³]			
	Wasserstoff	Methan	Stickstoff	Kohlendioxid
Südfeld	2.84E+05	1.37E+04	6.85E+04	0.00E+00
	8.24E+05	1.31E+05	1.44E+05	7.39E+01
Westfeld	3.14E+06	7.17E+05	1.53E+04	0.00E+00
	8.69E+06	5.80E+06	3.23E+04	1.86E+03
West-Südfeld	5.38E+06	5.02E+05	8.44E+04	0.00E+00
	1.43E+07	3.83E+08	1.77E+05	4.61 E+02
Ostfeld	1.51E+06	9.43E+04	8.13E+03	0.00E+00
	3.40E+08	6.99E+05	1.71 E+04	1.86E+02
Nordfeld	0.00E+00	4.66E+04	1.27E+03	0.00E+00
	2.26E+05	3.45E+05	2.84E+03	2.60E+04
Zentralteil	4.44E+04	2.46E+01	1,41 E+02	0.00E+00
	7.59E+04	9.90E+02	2.96E+02	1.45E+00
Sohlenbohrloch	2.82E+02	1.58E+01	0,00E+00	0.00E+00
	8.62E+02	1,31 E+02	0,00E+00	0,00E+00
Restgrube	6.99E+05	2,84E+04	0.00E+00	0.00E+00
	1.69E+06	2.44E+05	0,00E+00	4,26E+01

Tabellen: Zusammensetzung des Gasvolumens (Minimum, Maximum, d.h. 5%- und 95%-Perzentilen der Bandbreite) nach 1 Mio. Jahren

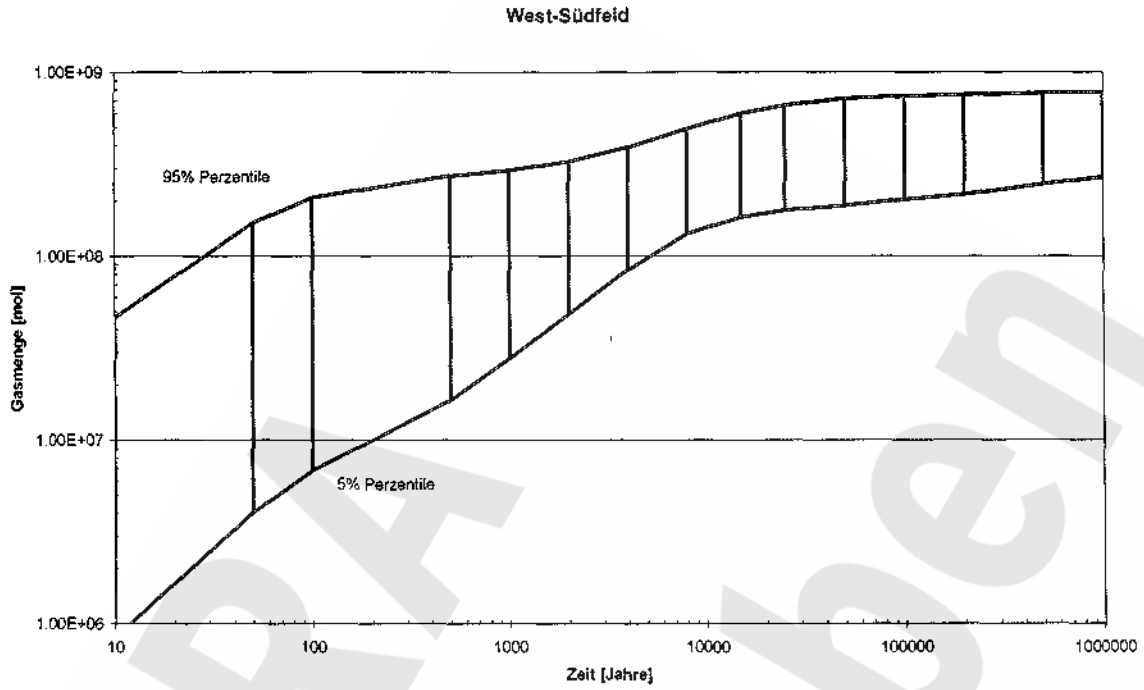
Die folgenden Grafiken geben die zeitliche Gasentwicklung für die einzelnen Einlagerungsbereiche wieder. Die Bandbreiten zeigen jeweils den Bereich zwischen der 5%- und der 95%-Perzentile. Wegen der Unsicherheiten bei den Geschwindigkeiten der einzelnen Gasbildungsreaktionen weisen die Gasmengen zu den frühen Zeiten eine große Streuung auf. Da die verschiedenen Modellfälle langfristig einem ähnlichen Endzustand zustreben, verringert sich die Streuung im Laufe der Zeit auf eine Bandbreite, die vorwiegend durch die Stoffinventare bestimmt ist. Neben den Stoffinventaren wird die Gasmenge zu späten Zeiten durch die relative Größe der Reaktionsgeschwindigkeiten von Methanogenese und Carbonatfällung mitbestimmt, welche die Verteilung des Kohlendioxids zwischen Gasphase und Festphase (Carbonatisierung) steuert.



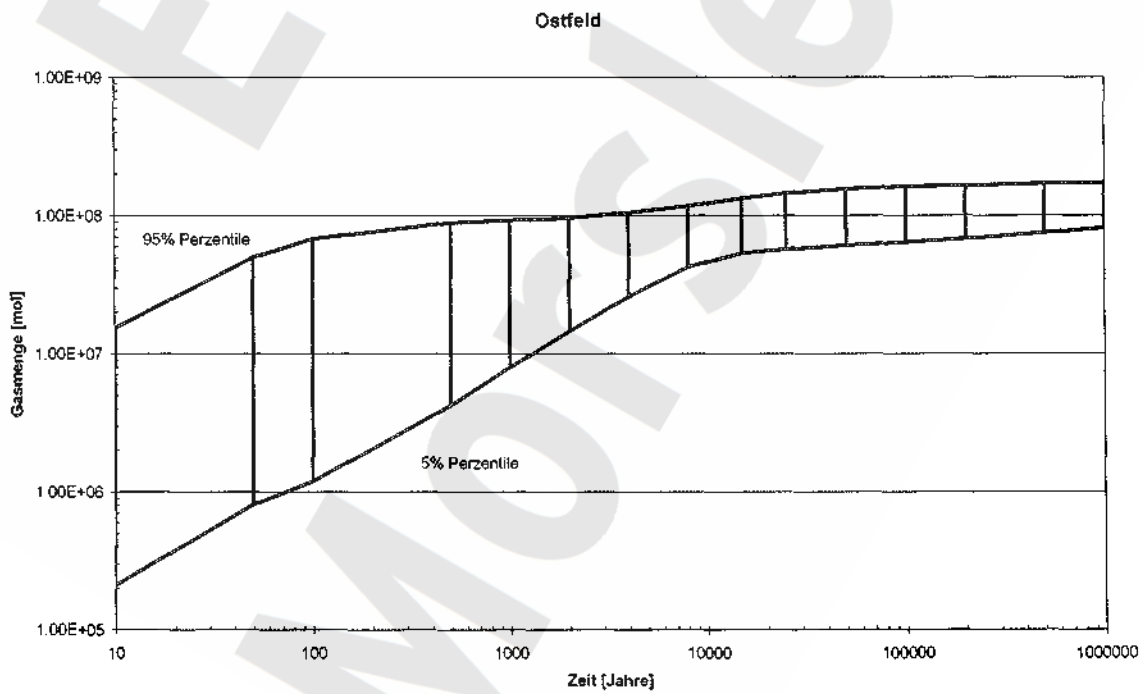
Figur 2 Zeitliche Gasentwicklung im Südfeld des ERAM



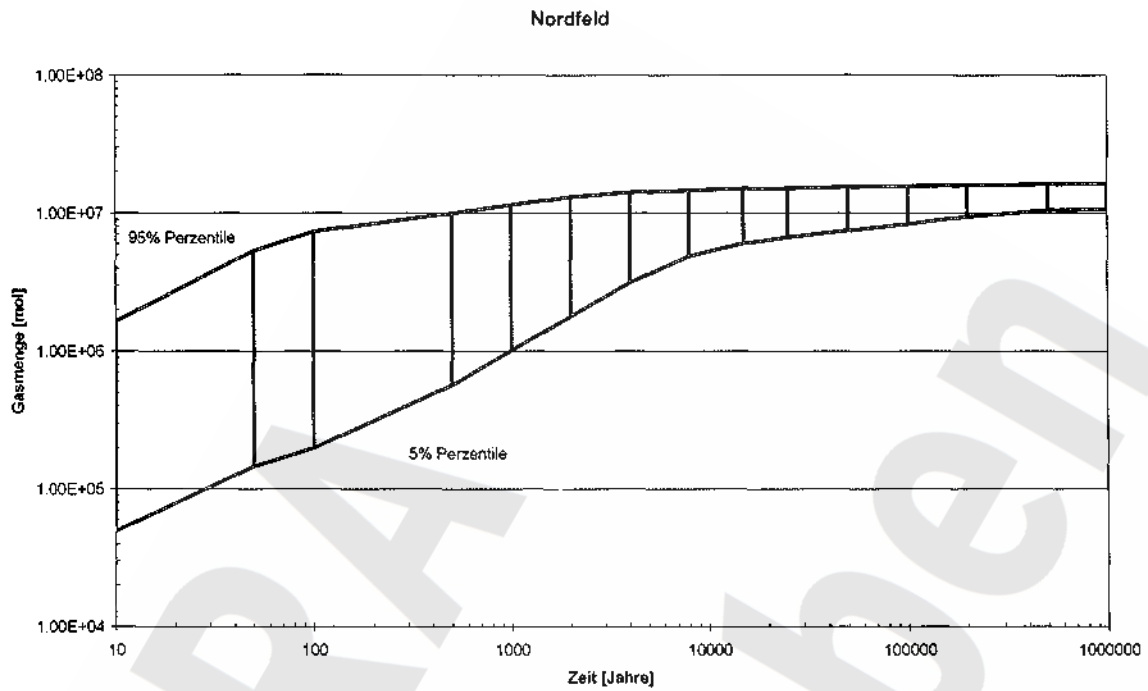
Figur 3 Zeitliche Gasentwicklung im Westfeld des ERAM



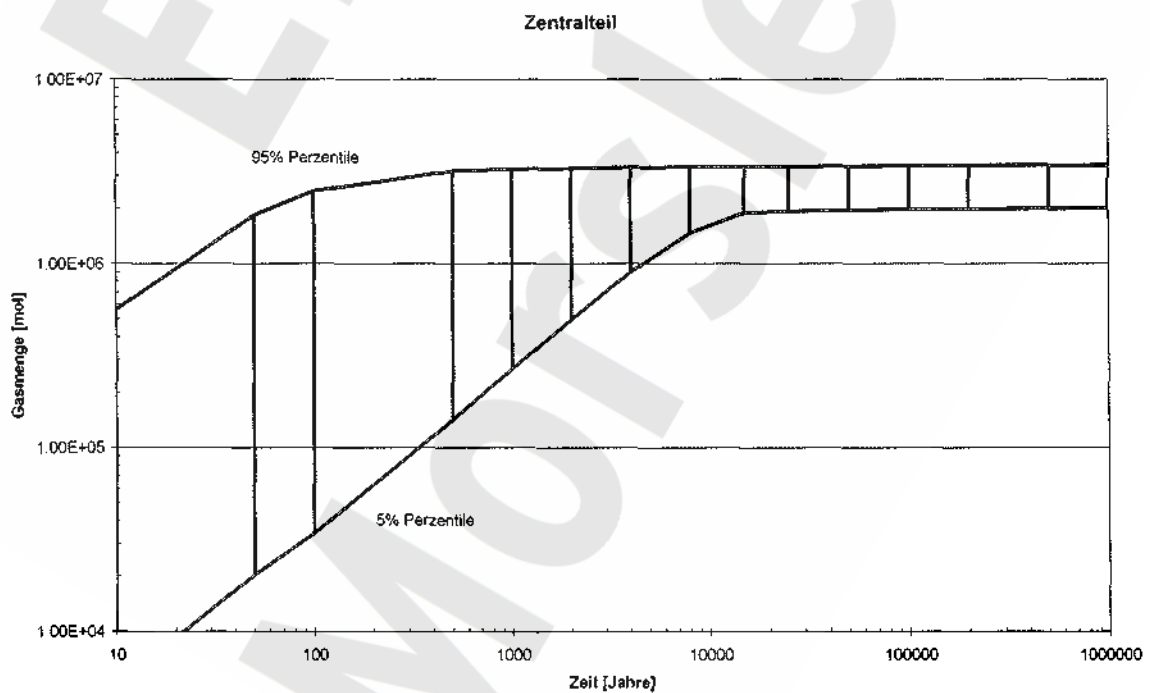
Figur 4 Zeitliche Gasentwicklung im West/Südfeld des ERAM



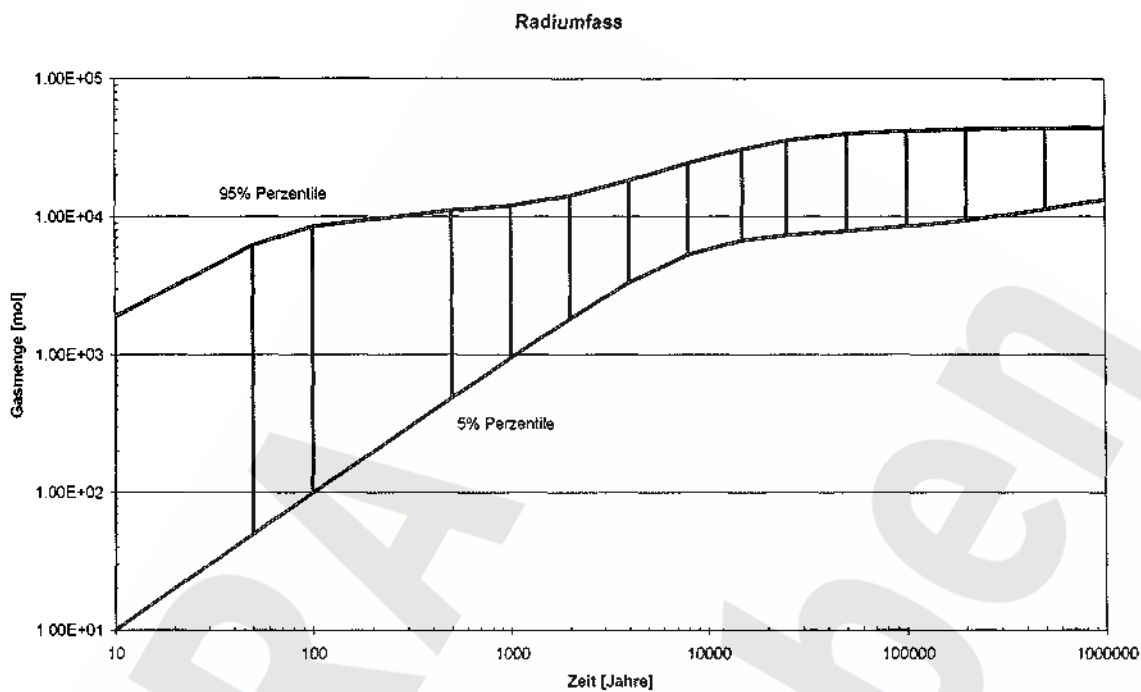
Figur 5 Zeitliche Gasentwicklung im Ostfeld des ERAM



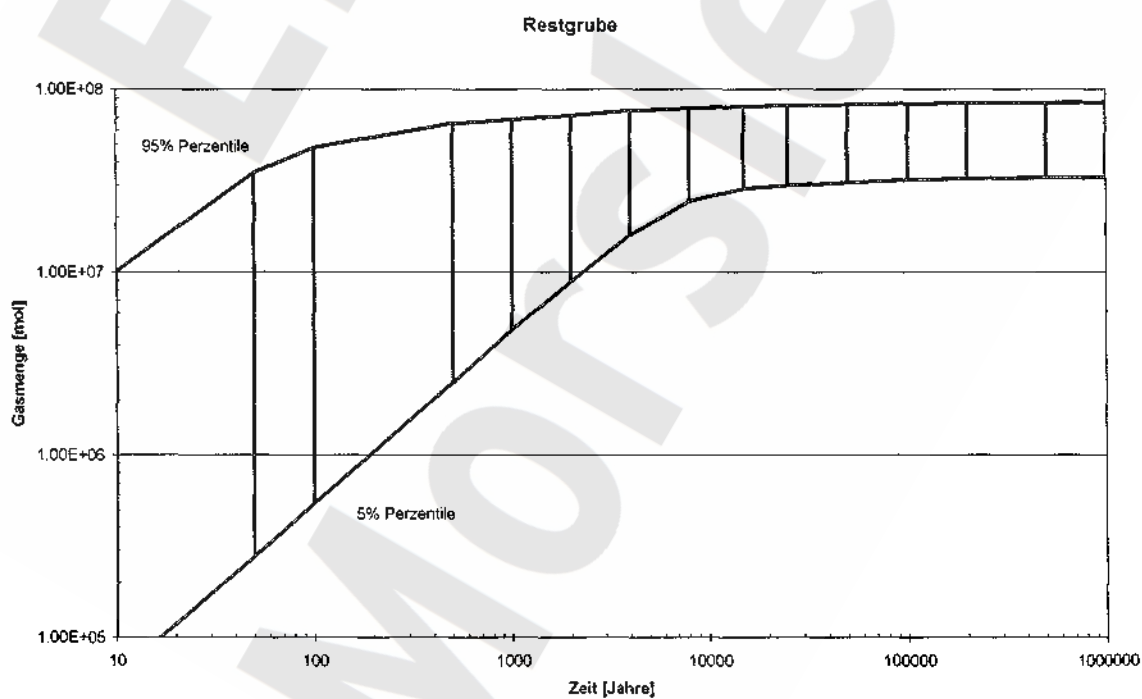
Figur 6 Zeitliche Gasentwicklung im Nordfeld des ERAM



Figur 7 Zeitliche Gasentwicklung im Zentralteil des ERAM



Figur 8 Zeitliche Gasentwicklung im Sohlenbohrloch des ERAM



Figur 9 Zeitliche Gasentwicklung in der Restgrube des ERAM

7 Ableitung der Gasbildungsdaten für die Sicherheitsanalyse

Das Ziel der Parametrisierung besteht nunmehr darin, die Ergebnisse der probabilistischen GASGEN-Berechnungen in einer geeigneten Form darzustellen, die eine weitere Verwendung im Rahmen der Sicherheitsanalyse (als Inputparameter des entsprechenden Programmcodes) gestatten. Dabei kann nicht die vollständige Vielfalt der mit dem probabilistischen Modell erzeugten Ergebnisse übernommen werden, jedoch sollen wesentliche Ergebnisse in Hinblick auf die Möglichkeiten zeitabhängiger Gasbildung Berücksichtigung finden.

7.1 Parametrisierung der Gasbildungsdaten

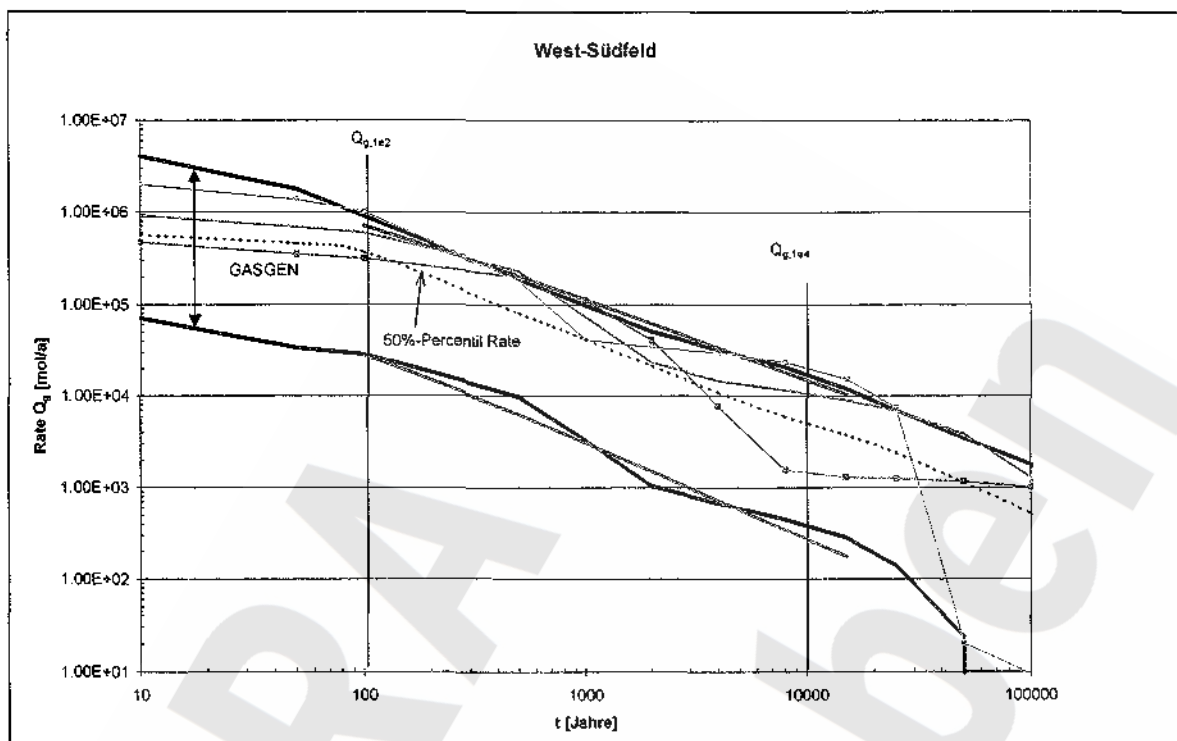
Dazu wird zur Parametrisierung der Ergebnisse ein funktionaler Zusammenhang gesucht, der

- die Bandbreite der Produktionsraten und daraus resultierenden Gasmengen,
- die nach abgeschlossener Gasbildung berechnete Gesamtgasmenge und
- die zeitliche Variabilität potentieller Gasbildungsdaten berücksichtigt.

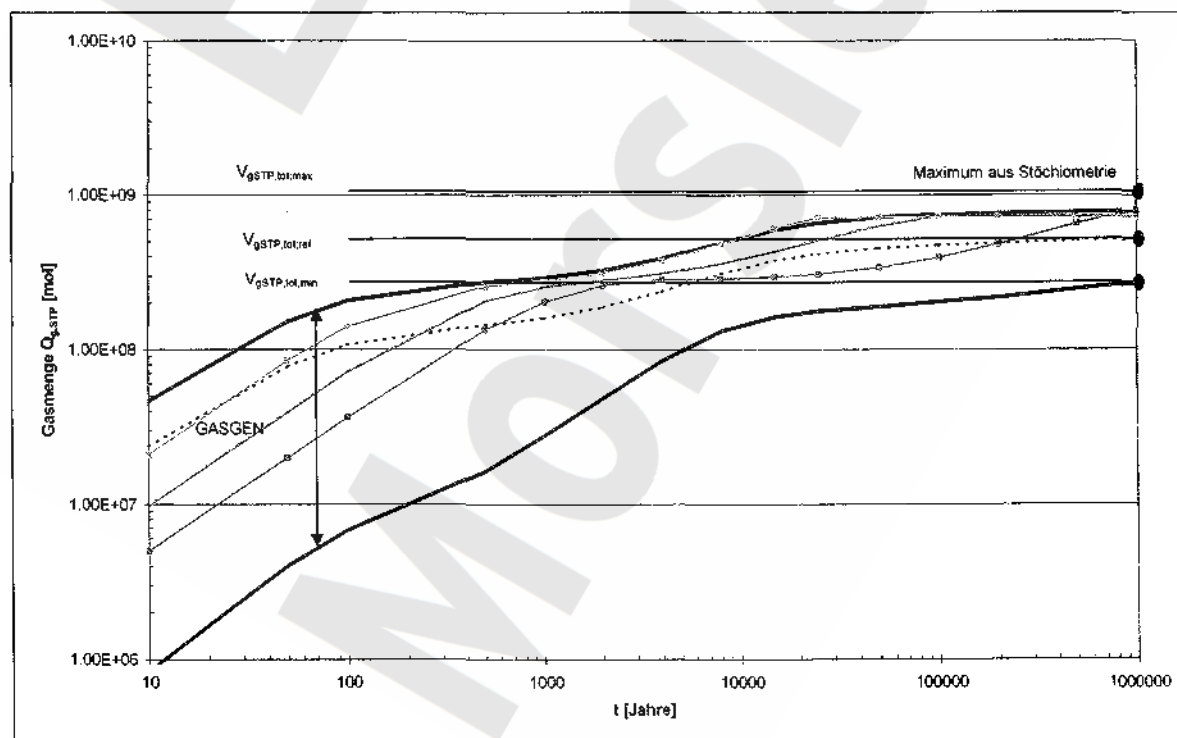
Letzteres wird durch die Begrenzung der Raten auf das Band zwischen der 5%- und der 95%-Perzentilen allein nur unzureichend gesichert. Andererseits zwingt die Vielzahl potentieller Verläufe zu Kompromissen in der Parametrisierung. Der nachfolgend beschriebene Weg sichert eine optimale Interpretation und Aufbereitung der Ergebnisse hinsichtlich ihrer Weiterverwendung in der Sicherheitsanalyse.

Im Ergebnis der probabilistischen GASGEN-Berechnungen liegen nicht nur die zeitabhängige Verteilung der Mengen der Gase (und Edukte), sondern auch deren effektive Generations- (bzw. Abbau-)raten vor. Das nachfolgend beschriebene Verfahren der Parametrisierung geht von zwei charakteristischen Perzentilen der Gasbildungsdaten aus.

Abb. 10 und 11 zeigen am Beispiel des West-Südfelds die Ergebnisse der Gesamtgas-Berechnungen mittels GASGEN (Raten und Mengen). Neben den 5%- und 95%-Perzentilen sind drei (aus 2000) ausgewählte Rechenfälle dargestellt.



Figur 10 Rate der Gesamtgasbildung (West-Südfeld); markiert sind die interpolierten Raten zwischen den repräsentativen Zeiten 100 und 10'000 Jahre



Figur 11 Gesamtgasbildung (West-Südfeld); markiert sind die Gesamtgasmenge $V_{g,STP,tot}$ für den Referenzfall und die Bandbreite (mit dem Maximalfall einer vollständigen Umsetzung)

Zur Parametrisierung werden nunmehr

- die Bandbreite der Gasbildungsrate $Q_{g,ie2,tot}$ zu repräsentativ frühen Zeiten ($t = 100$ Jahre),
- die Bandbreite der Gasbildungsrate $Q_{g,1e4,tot}$ zu repräsentativ späten Zeiten ($t = 10'000$ Jahre) und
- die Bandbreite für die Gesamtgasmenge $V_{g,STP,tot}$ genutzt

Der Index $_{tot}$ steht für eine 100-prozentige Teilnahme der Inventare an den gasbildenden Prozessen. Die Tatsache, dass ein Teil des Inventars durch aufkriechendes Salz eingeschlossen werden kann und nicht an den Prozessen der Gasbildung teilnimmt, kann durch einen zusätzlichen Parameter, der nicht aus den GASGEN-Berechnungen erhalten wird, berücksichtigt werden:

- der Anteil des Inventars an den Gasbildungsprozessen γ_l .

Für eine mathematische Beschreibung des funktionalen Zusammenhangs der drei Parameter wird von folgender phänomenologischer Beschreibung ausgegangen:

Die Einhüllenden der Gesamtgasbildungsrate (5%- und 95%-Perzentile) folgen unabhängig vom Einlagerungsbereich näherungsweise einem Potenzgesetz zwischen den repräsentativen frühen und späten Zeiten (100, resp. 10'000 Jahre):

$$Q_{g,in}(t) = a (t_0 + t)^n \text{ für } t < T_g \text{ (} T_g \text{ ist die Dauer der Gasbildung)}$$

$$Q_{g,in}(t) = 0 \text{ für alle übrigen Fälle.}$$

Die gebildete kumulierte Gasmenge $V(t)$ ergibt sich durch Integration zu

$$V(t) = \int_0^t a (t_0 + t')^n dt'$$

$$V(t) = \frac{a}{n+1} [(t_0 + t)^{n+1} - t_0^{n+1}] \text{ für } n \neq -1$$

$$V(t) = a \cdot \ln \frac{t_0 + t}{t_0} \text{ für } n = -1$$

Der Term t_0 berücksichtigt das „Abflachen“ der Kurvenscharen für Zeiten vor ca. 100 Jahren und ist zudem aus numerischen Stabilitätsgründen erforderlich. Dessen genauer Wert ist für Zeiten $t \gg 100$ Jahre von untergeordneter Bedeutung; es wird für alle Beispiele $t_0 = 30$ Jahre zum Ansatz gebracht.

Der Zeitpunkt des Abschlusses der Gasbildung T_g ergibt sich aus der Integration:

$$\int_0^{T_g} Q_{g,Jn} dt = V_{g,STP,tot}$$

für den Fall, dass mit dem o.g. Ansatz die kumulierte Gasmenge $V_{g,STP,tot}$ gebildet werden kann, bzw.:

$$\int_0^{\infty} Q_{g,in} dt' = V_{g,STP,tot}$$

$$n' = \frac{\ln(Q_{g,1e2,tot}/Q_{g,1e4,tot})}{\ln((t_0 + 100a)/(t_0 + 10'000a))}$$

$$a' = Q_{g,1e2,tot} / (t_0 + 100a)^{n'}$$

Falls $n' \geq -1$ oder $-\frac{a'}{n'+1} \cdot t_0^{n'+1} \geq V_{g,STP,tot}$, dann

$$n = n'$$

$$a = a'$$

$$T_g \text{ Lösung von } V_{g,STP,tot} = \begin{cases} \frac{a'}{n'+1} \cdot [(t_0 + T_g)^{n'+1} - t_0^{n'+1}] & n' \neq -1 \\ a' \cdot \ln\left(1 + \frac{T_g}{t_0}\right) & n' = -1 \end{cases}$$

sonst

$$n \text{ Lösung von } V_{g,STP,tot} = -\frac{Q_{g,1e2,tot}}{n+1} \cdot t_0 \cdot \left(\frac{t_0}{t_0 + 100a}\right)^n$$

$$a = Q_{g,1e2,tot} / (t_0 + 100a)^n$$

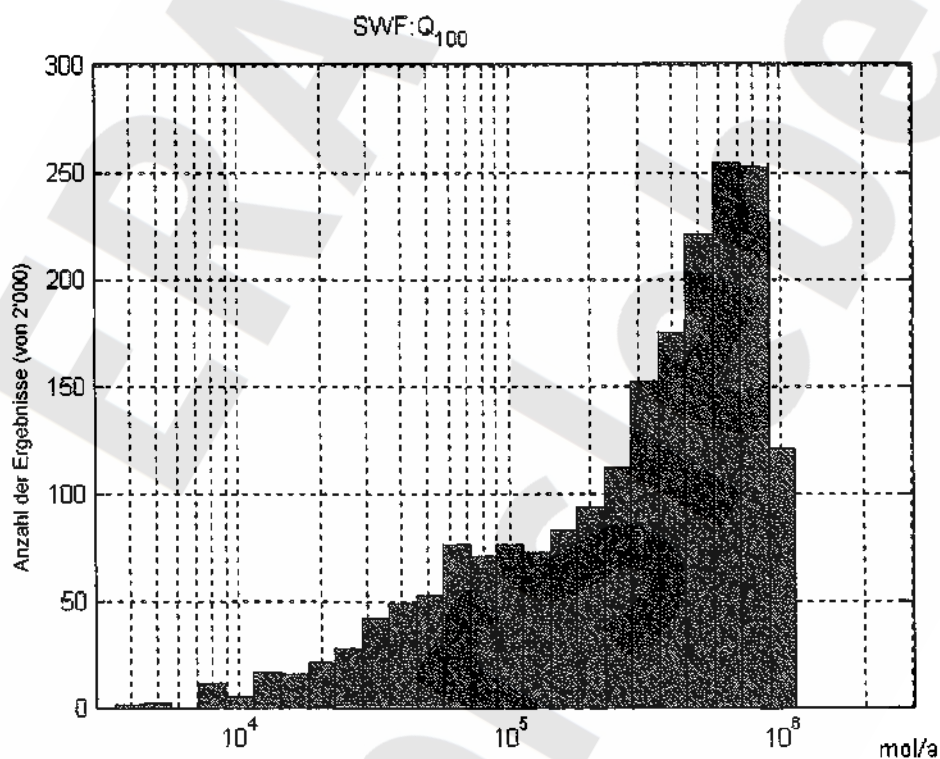
$$T_g = \infty$$

Im Falle, wo n , a und T_g auf diese Weise zu ermitteln sind, legen die Eingangsgrößen $Q_{g,1e2,tot}$ und $Q_{g,1e4,tot}$ einen derart raschen zeitlichen Abfall der Gasbildungsrate fest, dass die geforderte kumulierte Gasmenge $V_{g,STP,tot}$ mit der oben gewählten allgemeinen Parametrisierung nie erreicht wird. In diesem Fall werden nur die beiden Eingangsgrößen $V_{g,STP,tot}$ und $Q_{g,1e2,tot}$ berücksichtigt, die Eingangsgröße $Q_{g,1e4,tot}$ ignoriert und durch die Randbedingung ersetzt, dass die vorgegebene kumulierte Gasmenge nach unendlich langer Zeit erreicht wird. Dies entspricht einer möglichst raschen Abnahme der Gasbildungsrate bei vorgegebenen Werten für die kumulierte Gasmenge und die Gasbildungsrate zu frühen Zeiten.

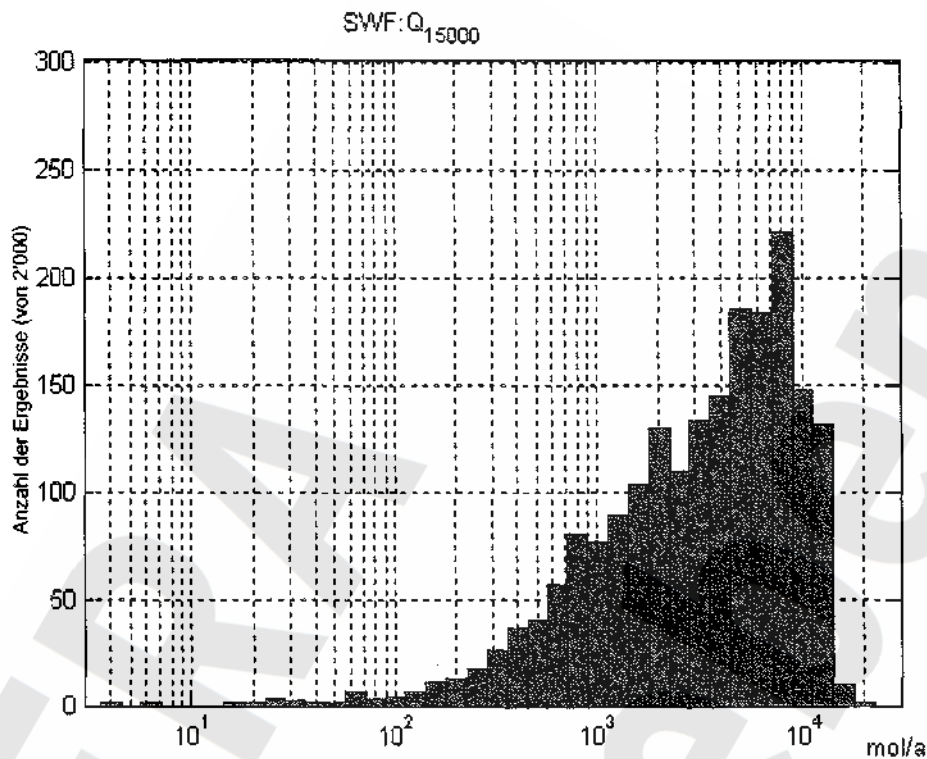
7,2 Berücksichtigung der Wahrscheinlichkeitsverteilung der Gasbildungsparameter

Die Ermittlung der 5%-, 50%- und 95%-Perzentilwerte der Gasbildungsrate zu den beiden repräsentativen Zeitpunkten 100 Jahre und 10'000 Jahre als statistisch stabile Modellergebnisse wurde oben beschrieben. Im folgenden soll dargelegt werden, wie aus diesen Werten die zugehörigen Eingangsparameter - Referenzwert, Minimalwert, Maximalwert und Art der Wahrscheinlichkeitsverteilung - abgeleitet werden,

Die Abbildungen 12 und 13 geben beispielhaft die Histogramme der berechneten Gesamtgasbildungsrate zu den Zeiten 100 Jahre und 15'000 Jahre für das West-Südfeld wieder.



Figur 12 Histogramm der mit GASGEN berechneten Raten der Gesamtgasbildung (West-Südfeld) zu t = 100 Jahre



Figur 13 Histogramm der mit GASGEN berechneten Raten der Gesamtgasbildung (West-Südfeld) zu t = 15'000 Jahre

Die statistischen Verteilungen der mit GASGEN ermittelten Gasbildungsraten wurden für einige Zeitpunkte und Einlagerungsbereiche ermittelt und ausgewertet. Sie zeigen eine ausgeprägt hohe Gewichtung bei hohen Gasbildungsraten, wenn sie auf einer logarithmischen Skala aufgetragen werden, und eine Konzentration bei kleinen Raten auf einer linearen Skala. Als Funktion für die Wahrscheinlichkeitsverteilung vermögen sowohl die abgeschnittene log-normale Verteilung als auch die Dreiecksverteilung die Histogramme mit ausreichender Qualität wiederzugeben, die Dreiecksverteilung allerdings nur mit einer sehr unkonventionellen Wahl des Referenzwertes. Als Wahrscheinlichkeitsverteilung wird deshalb die abgeschnittene log-normale Verteilung gewählt.

Der Maximal- und Minimalwert sind derart festzulegen, dass 95 % der Gasbildungsraten dazwischen liegen. Der Maximalwert sollte damit der 97,5%-Perzentile, der Minimalwert der 2,5%-Perzentile entsprechen. Eine direkte Ermittlung dieser Perzentilwerte aus den GASGEN-Ergebnissen ist allerdings statistisch weniger stabil als jene der 5%- und der 95%-Perzentilen. Der Maximal- und der Minimalwert des Parameters x werden deshalb aus den beiden letztgenannten Perzentilwerten wie folgt berechnet:

$$\ln x_{\min} = \ln x_{05\%} - 0.116 \cdot (\ln x_{95\%} - \ln x_{05\%})$$

$$\ln x_{\max} = \ln x_{95\%} + 0.016 \cdot (\ln x_{95\%} - \ln x_{05\%})$$

Diese Beziehungen sind korrekt, falls die Lognormalverteilung ihr Maximum auf der logarithmischen Skala bei $\ln x_{05\%}$ hat und eine Streuung von $a = 1/2 \cdot (\ln x_{95\%} - \ln x_{05\%})$ aufweist. Dies ist in den untersuchten Histogrammen näherungsweise der Fall.

Als Referenzwert wird der 50%-Perzentüwert gewählt.

Bei den Gesamtgasmenen $V_{g,STP,tot}$ werden im Minimum die 2.5%-Perzentile, als Referenzwert die 50%-Perzentile der GASGEN-Berechnungen (beide zum Zeitpunkt $t = 1 \cdot 10^6$ Jahre) und als Maximalwert die stöchiometrische Summe aller potentiell zu bildenden Gase ohne Berücksichtigung gasreduzierender Prozesse (mit Ausnahme der Bindung von CO_2 als Carbonat) zum Ansatz gebracht. Diese Bandbreite schließt konservativ alle potentiellen Gasbildungsprozesse auf ihrer maximalen Seite ein.

Eine Übersicht über die feldspezifischen charakteristischen Parameter (in der Dimension der Volumina [STP]) gibt Tabelle 12.

		Minimum	Referenzwert	Maximum
West-Südfeld	$Q_{g,i2,tot}$ [m ³ /a]	5,09E+00	7 36E+03	1.70E+04
	$Q_{g,i4,tot}$ [m ³ /a]	3.63E+00	1 09E+02	3.57E+02
	$V_{g,STP,tot}$ [m ³]	5.24E+06	1 37E+07	2.28E+07
Westfeld	$Q_{g,i2,tot}$ [m ³ /a]	5.54E+02	7 41E+03	1.65E+04
	$Q_{g,i4,tot}$ [m ³ /a]	3,94E+00	9 24E+01	2.99E+02
	$V_{g,STP,tot}$ [m ³]	6,10E+06	9 55E+06	2.12E+07
Südfeld	$Q_{g,i2,tot}$ [m ³ /a]	8.68E+01	1 02E+03	2.00E+03
	$Q_{g,i4,tot}$ [m ³ /a]	6.58E-02	2 24E+00	1.78E+01
	$V_{g,STP,tot}$ [m ³]	3.85E+05	6 54E+05	1.57E+06
Ostfeld	$Q_{g,i2,tot}$ [m ³ /a]	1.19E+02	2 50E+03	6.49E+03
	$Q_{g,i4,tot}$ [m ³ /a]	8,18E-01	2 04E+01	7.03E+01
	$V_{g,sTP,tot}$ [m ³]	1.67E+06	2 96E+06	4,72E*06
Nordfeld	$Q_{g,i2,tot}$ [m ³ /a]	2,31E*01	3 63E4-02	7,21 E+02
	$Q_{g,i4,tot}$ [m ³ /a]	1.26E-01	2 75E+00	1.01E+01
	$V_{g,sTP,tot}$ [m ³]	2.33E+05	3 00E+05	1.07E+06
Sohlenbohrloch	$Q_{g,i2,tot}$ [m ³ /a]	1,24E-02	2,72E	6.48E-01
	$Q_{g,i4,tot}$ [m ³ /a]	1.93E-04	6.14E-03	2,21 E-02
	$V_{g,STP,tot}$ [m ³]	2,51 E+02	7.48E+02	1,09E+03
Zentralteil	$Q_{g,i2,tot}$ [m ³ /a]	1,49E+00	1,01E*02	2.79E4-02
	$Q_{g,i4,tot}$ [m ³ /a]	6.93E-04	6.73E-02	1.91E+00
	$V_{g,STP,tot}$ [m ³]	4.35E+04	6.10E-J-04	8.26E+04
Restgrube	$Q_{g,i2,tot}$ [m ³ /a]	5,51 E+01	2,23E+03 • UO	5.19E+03
	$Q_{g,i4,tot}$ [m ³ /a]	1.20E+00	6,45E+00	Wi ö w C ' U 1
	$V_{g,sTP,tot}$ [m ³]	6.34E+05	1.35E+06	2,21 E*06

Tabelle 12: Charakteristische Parameter der Einlagerungsbereiche ($Q_{g,i2,tot}$ und $Q_{g,i4,tot}$ in m³/a; $V_{g,STP,tot}$ in m³ STP)

Die Abbildungen 14 und 15 geben beispielhaft potentielle Ergebnisse der Parametrisierung für das bereits oben dargestellte West-Südfeld wieder.

Aus dem obigen Gleichungssystem werden beispielsweise für den Referenzfall (50%- Perzentile der GASGEN-Berechnungen) mit den Wertetripeln

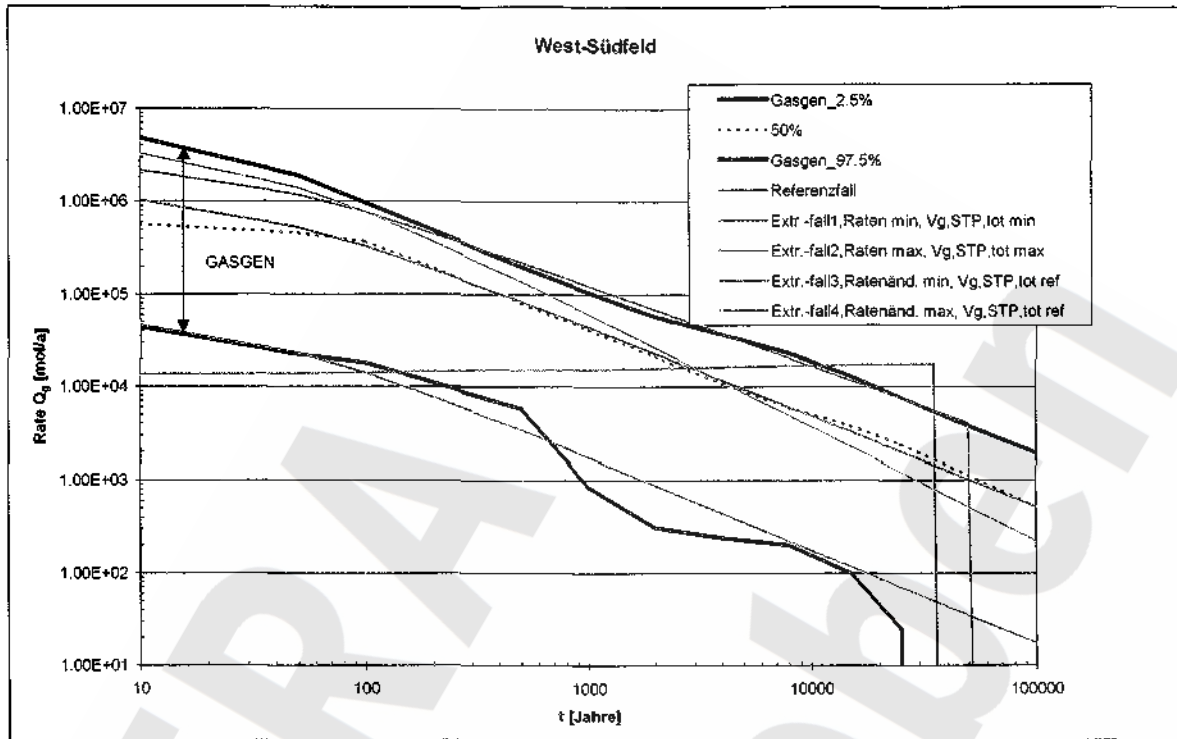
$$\begin{aligned} Q_{g,ie2,tot} &= 3,28 \cdot 10^5 \text{ mol/a (entspricht } 7,36 \cdot 10^3 \text{ m}^3_{STP}/\text{a),} \\ Q_{g,ie4,tot} &= 4,86 \cdot 10^3 \text{ mol/a (entspricht } 1,09 \cdot 10^2 \text{ m}^3_{STP}/\text{a) und} \\ V_{g,STP,tot} &= 6,12 \cdot 10^8 \text{ mol (entspricht } 1,37 \cdot 10^7 \text{ m}^3_{STP}) \end{aligned}$$

die Parameter

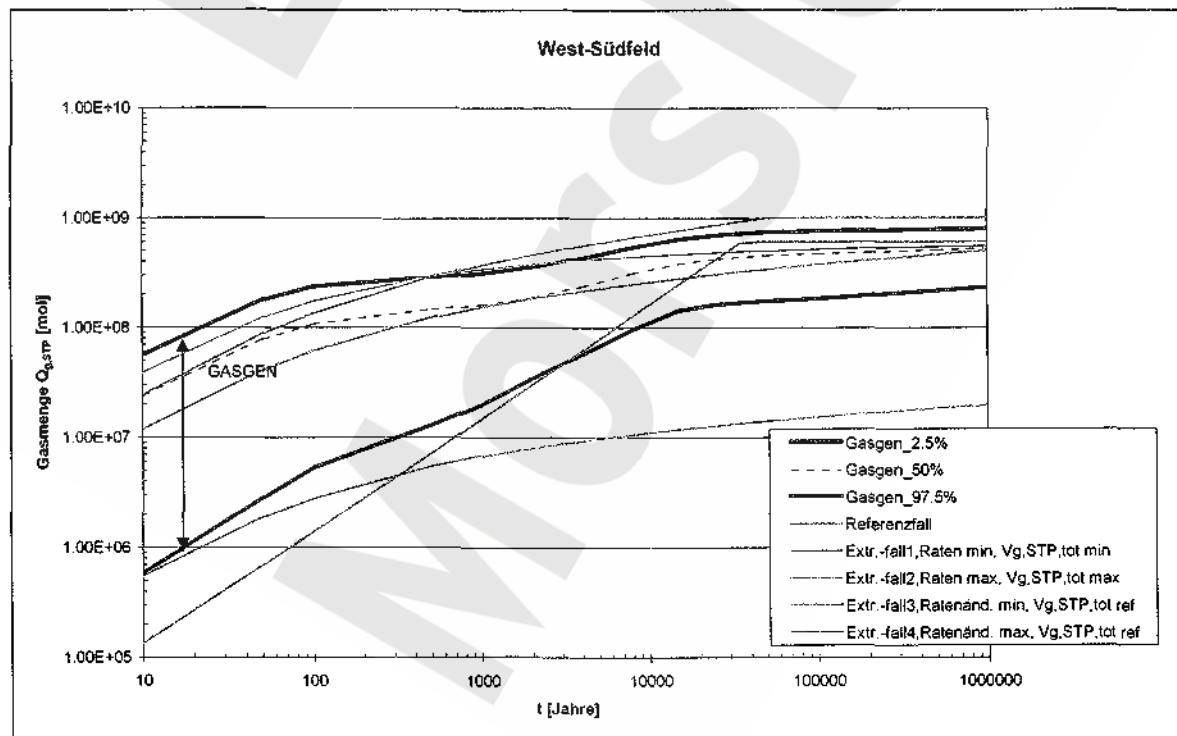
$$\begin{aligned} a_{re,} &= 3,68 \cdot 10^7 \\ n_{ref} &= -0,97 \text{ und} \\ T_{g,ref} &= 6,9 \cdot 10^6 \text{ Jahre berechnet.} \end{aligned}$$

Die in den Abb. 14 und 15 neben dem Referenzfall dargestellten Extrembeispiele resultieren aus folgenden Parametervariationen:

- « minimale Raten und minimales Endvolumen,
- maximale Raten und maximales Endvolumen,
- minimale Ratenänderung zwischen frühen und späten Zeiten (geringe Rate bei $t = 100$ Jahren und hohe Rate bei $t = 10'000$ Jahren); Gesamtgasmenge des Referenzfalls,
- maximale Ratenänderung zwischen frühen und späten Zeiten (hohe Rate bei $t = 100$ Jahren und geringe Rate bei $t = 10'000$ Jahren); Gesamtgasmenge des Referenzfalls.



Figur 14 Potentielle Raten der Gesamtgasbildung (West-Südfeld)



Figur 15 Potentielle Gesamtgas Mengen (West-Südfeld)

8 Referenzen

- Blanke & Walter (2001): Gasbildende Stoffe im Grubengebäude Bartensieben - Ergebnisbericht.- 15.05.2001, DBE mbH, Peine/Deutschland
- Czurda, K. A. & Knecht, J. (1998): Flugasche-Zeolithe (FAZ) als Molekularsieb-Additiv zu Dichtwandmassen und Injektionssuspensionen.- in: Czurda, K., & Hötzl, H. (Hrsg.): Natürliche und anthropogene Umweltgefährdungen - Forschungsergebnisse aus dem Lehrstuhl für Angewandte Geologie.- Sehr. Angew. Geol. Karlsruhe, 50, I-VI
- DBE (2001): Hohlraumangaben Endlager Morsleben, Rev. 05, Stand 15.10.2000 Dok.-Nr. 9M/21232121/GB/BZ/0003/05, und ERAM-Hohlrauminformationssystem (ERAM HIS). Deutsche Gesellschaft zum Bau und Betrieb von Endlagern für Abfallstoffe mbH (DBE), Peine, 2001
- Kienzier, B. & Vejmelka, P. (1998): Geochemische Modellierung der Korrosion von zementierten Abfallprodukten in Salzlösungen.- Wissenschaftliche Berichte FZKA 6046, Forschungszentrum Karlsruhe
- Kugel, K. (2000): Entsorgung radioaktiver Abfälle im Endlager Morsleben - Zwischengelagerte radioaktive Abfälle. Interner ET-Bericht ET-IB-112, Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter
- Kugel, K. & Noack, W. (2000): Stoffliche Bestandteile der radioaktiven Abfälle im Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM).- Interner ET-Bericht ET-IB-115-REV-1, Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter
- Lange, L.C., Hills, C.D. & Poole, A.B. (1997): Effect of carbonation on properties of blended and non-blended cement solidified waste forms.- Journal of Hazardous Materials 52, 1-15
- Noack, W. (2000), Gasbildung im Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben. Interner ET-Bericht ET-IB-113, Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter
- Suter, D., Blaser, P., Brandl, H. & Fritz, M. (1999): Gasentwicklung im Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) durch mikrobielle Aktivitäten und radiolytische Prozesse. Colenco-Bericht 4149/28, Colenco Power Engineering AG, Baden/Schweiz
- Vejmelka, P (1999): Nuklidmigration im Deckgebirge des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM).- Institut für Nukleare Entsorgungstechnik, FZK-INE 20/98, Karlsruhe

Anhang A

Tabelle A1: Berechnung der Sulfatmengen und Wassermengen für die Einlagerungsgrubenbaue (unter der Annahme, dass der Gesamthohlraum mit IP21-Lösung gefüllt ist). Die Dichte des Salzbetons beträgt 1995 kg/m^3 und die Dichte der IP21-Lösung 1292 kg/m^3 . Sie enthält $0,656 \text{ kg H}_2\text{O/kg}$ und $0,178 \text{ mol SO}_4^{2-}/\text{kg H}_2\text{O}$.

Einlage- rungsgru- benbau EH	Aufgef. Vo- lumen [m ³]	Komp. Versatz im EH [m ³]	Nicht komp. Versatz (= Salzbeton) [m ³]	unverf. Hohlraum [m ³]	Porosität komp. Versatz (Zement / BFA)	Porosität Salzbeton	max. Lö- sungs- volumen [m ³]	Sulfat in Ref. EH [mol]	Wasser in Ref. EH [mol]
SF	135'344	121'834	6'755	6'755	0,402	0,2	57'083	8,60E+06	2,68E+09
WF	50'582	43'693	5'574	1'315	0,556	0,2	26'723	4,03E+06	1,26E+09
WSF	185'926	165'527	12'329	8'070	0,443	0,2	83'864	1,26E+07	3,94E+09
OF	50'078	15'469	34'609	0	0,448	0,2	13'852	2,09E+06	6,51E+08
NF	2'080	1'701	0	379	0,653	0,2	1'490	2,24E+05	7,00E+07
ZT	66'238	37'517	25'427	3'294	0,402	0,2	23'461	3,53E+06	1,10E+09
RF	20	0	20	0	0,4	0,2	4	6,03E+02	1,88E+05
RG	3'933'917	387'087	2'769'016	777'814	0,4	0,2	1'486'452	2,24E+08	6,98E+10

Tabelle A2: Berechnung der Sulfatmengen und Wassermengen für die restlichen Einlagerungsbereiche (unter der Annahme, dass der Gesamthohlraum mit IP21-Lösung gefüllt ist). Die Dichte des Salzbetons beträgt 1995 kg/m^3 und die Dichte der IP21-Lösung 1292 kg/m^3 . Sie enthält $0,656 \text{ kg H}_2\text{O/kg}$ und $0,178 \text{ mol SO}_4^{2-}/\text{kg H}_2\text{O}$.

Restl. Einlage- rungsgruben- bau REB	Aufgef. Volumen [m ³]	Komp. Versatz im REB [m ³]	Nicht komp. Versatz (= Salzbeton) [m ³]	unverf. Hohlraum [m ³]	Porosität komp. Versatz (Zement / BFA)	Porosität Salzbeton	max. Lö- sungs- volumen [m ³]	Sulfat in Ref. REB [mol]	Wasser in Ref. REB [mol]
SF	1'097'358	322'288	461'401	313'669	0,402	0,2	535'509	8,07E+07	2,52E+10
WF	29'419	12'924	8'579	7'916	0,556	0,2	16'818	2,53E+06	7,90E+08
WSF	1'126'777	335'212	469'980	321'585	0,443	0,2	564'080	8,50E+07	2,65E+10
OF	252'978	37'700	186'154	29'124	0,448	0,2	83'244	1,25E+07	3,91E+09
NF	0	0	0	0	0,653	0,2	0	0,00E+00	0,00E+00
ZT	0	0	0	0	0,402	0,2	0	0,00E+00	0,00E+00
RF	0	0	0	0	0,4	0,2	0	0,00E+00	0,00E+00
RG	0	0	0	0	0,4	0,2	0	0,00E+00	0,00E+00

Tabelle A3: Berechnung der Sulfatmengen und Wassermengen für die Gesamteinlagerungsbereiche (unter der Annahme, dass der Gesamthohlraum mit IP21-Lösung gefüllt ist). Die Dichte des Salzbetons beträgt 1995 kg/m^3 und die Dichte der IP21-Lösung 1292 kg/m^3 . Sie enthält $0,656 \text{ kg H}_2\text{O/kg}$ und $0,178 \text{ mol SO}_4^{2-}/\text{kg H}_2\text{O}$.

Einlage- bereich EB	Aufgef. Volumen [m ³]	Komp. Versatz im EB [m ³]	Nicht komp. Versatz (= Salzbeton) [m ³]	unverf. Hohl- raum [m ³]	Porosität komp. Versatz (Zement / BFA)	Porosität Salzbeton	max. Lö- sungs- volumen [m ³]	Sulfat in Ref. EB [mol]	Wasser in Ref. EB [mol]
SF	1'232'701	444'122	468'156	320'423	0,402	0,2	592'591	8,93E+07	2,78E+10
WF	80'001	56'617	14'153	9'231	0,556	0,2	43'541	6,56E+06	2,04E+09
WSF	1'312'702	500'739	482'309	329'654	0,443	0,2	647'943	9,76E+07	3,04E+10
OF ²	134'404	28'036	96'660	9'708	0,448	0,2	41'600	6,27E+06	1,95E+09
NF	2'080	1'701	0	379	0,653	0,2	1'490	2,24E+05	7,00E+07
ZT	66'238	37'517	25'427	3'294	0,402	0,2	23'461	3,53E+06	1,10E+09
RF	20	0	20	0	0,4	0,2	4	6,03E+02	1,88E+05
RG	3'933'917	387'087	2'769'016	777'814	0,4	0,2	1'486'452	2,24E+08	6,98E+10
OF ges	303'056	53'169	220'763	29'124	0,448	0,2	97'096	1,46E+07	4,56E+09

² Für das OF wird hier – analog zum Referenzfall im Nachweis der Langzeitsicherheit – 1/3 des Maximalvolumens des gesamten Einlagerungsbereichs angesetzt

Material	Südfeld	Westfeld	W/S-Feld	Ostfeld	Nordfeld	Zentralteil	Sohlenbohrloch	Restgrube
Salzbeton (Mg) †	9,34E+05	2,82E+04	9,62E+05	1,93E+05	0,00E+00	5,07E+04	3,99E+01	5,52E+06
Min	1,42E+05	8,12E+03	8,98E+05	4,18E+04	0,00E+00	4,88E+04	2,00E+01	1,17E+06
Max	9,94E+05	3,20E+04	1,03E+06	4,81E+05	0,00E+00	5,26E+04	9,98E+01	6,70E+06
Salze (Mg) ^{KN}	987	219	1206	116	18	2	0	0
Anteil NaNO ₃	987	219	1206	116	18	2	0	0

‡: Referenzwert Einlagerungsbereich Ostfeld gem. Datenbank

†: Unter Annahme einer Dichte von 1'995 kg/m³

Die Ausgangsdaten für die Inventars für das "Radiumfass" (Tabelle A7) wurden auf der Grundlage von Kugel (2000) abgeleitet. Es wurden Ra-Strahlenquellen in 8 Spezialcontainern in einem 200 l Fass eingelagert. Dieses ist in einem 280 l Fass eingebracht, das wiederum in einem Betonbehälter Typ II steht. Das Radiumfass soll in einem vollständig mit Salzbeton verfülltem Sohlenbohrloch im OF eingebracht werden. Dessen Hohlräumvolumen soll 20 m³ (10 - 50 m³) betragen (DBE 2001).

Betonbehälter:	1,7 Mg	Zement
	0,07 Mg	Stahllarmierung
280 l Fass:	0,05 – 0,085 Mg	Stahl (Wert in Summe enthalten)
200 l Fass:	0,04 – 0,055 Mg	Stahl (Wert in Summe enthalten)
	0,02 Mg	Polyethen = Innenfass (vorhanden ?)
Spezialcontainer (8 Stück):	Keine getrennte Gewichtsangabe, daher Gesamtmenge für Spezialcontainer + Fässer (0,3 Mg) verwendet (Einzelangaben für Fässer deswegen vernachlässigt,)	
Kunsthharze in Abfällen:	Keine Gewichts- oder Mengenangabe, aber vorhanden, Dafür wurde ein 200 l Innenfass angerechnet, das üblicherweise in 200-l-Fässern vorhanden ist.	

Tabelle A7: Mengen an eingelagerten, nicht radioaktiven Abfällen im Einlagerungsbereich Sohlenbohrloch nach Kugel (2000).

Anhang B

Für die Modellierung der Gasbildung ist es notwendig, die verfügbare Menge an Calcium zu kennen, welches mit dem CO_2 aus der mikrobiellen Gasbildung zu Calcit reagieren kann. Für die bisher durchgeführten Berechnungen wurden hierzu annäherungsweise Mengen bestimmt (vgl. Suter et al. 1999). Für die neuen Berechnungen zur Gasbildung im ERAM werden in diesem Anhang neue, detailliertere Bestimmungen des verfügbaren Calciums durchgeführt.

Es werden drei Quellen für verfügbares Ca angenommen: Braunkohlefilterasche (BFA) als eingebrachter "Altversatz", Salzbeton (M3) als Hohlraumverfüllung und sonstige Abfälle nach Kugel und Noack 2000.

Kriterien für Verfügbarkeit

Im Zement ist das Calcium vornehmlich in Portlandit oder CSH-Phasen, aber auch anderen calciumhaltigen Verbindungen gebunden. Der Portlandit reagiert direkt mit dem CO_2 unter Bildung von Calcit und Wasser. Für die CSH-Phasen wird ebenfalls eine Reaktion des darin gebundenen Calciums mit CO_2 beschrieben (Lange et al. 1997). Bei dieser Reaktion wird der CSH-Phase zunehmend Calcium entzogen, welches als Calcit ausfällt, während das verbleibende SiO_2 eine Si-Gel-Phase bildet. Auch für andere calciumhaltige Phasen des abgebundenen Zements werden Carbonatisierungsreaktionen beschrieben. Bei Phasen, die neben dem Calcium auch Carbonat- oder Sulfatgruppen enthalten, kann davon ausgegangen werden, dass die äquivalente Menge Calcium nicht mehr für die Reaktion mit CO_2 zur Verfügung steht.

Caiciumanteil in der Braunkohlefilterasche

Als Basis wurden die Angaben zur Zusammensetzung der Braunkohlefilterasche nach Velmelka (1999) verwendet. Nach der Analyse sind 4,97 mol Calcium pro kg Braunkohlefilterasche vorhanden. Es wird angenommen, dass aller anorganische Kohlenstoff (0,04 mol) mit Calcium gebunden ist (z.B. als Calcit). Daher wird die entsprechende Menge von der Calciummenge abgerechnet. Der dort als "organisch" angegebene Kohlenstoff (vermutlich Graphit) wird als inert angesehen.

Auch der Schwefel ist (vornehmlich als Anhydrit oder hydratisiert als Gips) mit Calcium gebunden. Der geringe Anteil sulfidisch gebundenen Schwefels (0,05 Gew.-%) kann vernachlässigt werden. Die Calciummenge wird auch um die Menge an Schwefel reduziert, so dass letztendlich 3,79 mol pro kg Braunkohlefilterasche verbleiben. Es wird angenommen, dass diese Menge vollständig für die Reaktion mit CO_2 zur Verfügung steht.

Element	Gew.-%	Molmasse	mol/kg
Al	6,86	26 98	2 54
v B	19,93	40 08	4 97
Fe	4,84	55 85	0 87
K	0,29	39 10	0 07
Mg	1,39	24 31	0 57
Mn	0,12	54 94	0 02
Na	0,16	22 99	0 07
Si	10,8	28 09	3 85
Ti	0,53	47 88	0 11
c	3,66	0 07	1 14
	0,05	12 01	0 04
C org	v, v&*	12 01	0 43
Summe	49,15	.	14 69

Tabelle B1: Zusammensetzung der Braunkohlefilterasche nach Vejmelka (1999)

Calciumanteil im Salzbeton

Als Salzbeton für die Hohlraumverfüllung ist die Mischung M3 vorgesehen. Sie besteht pro Kubikmeter aus 197 kg Hochofenzement, 459 kg Steinkohlefilterasche, 1087 kg Salz und 252 kg Wasser. Analysen für die vorgesehenen Materialien lagen nicht vor, daher wurden Analysen anderer, jedoch ähnlicher Materialien verwendet. Für die Salzzusammensetzung wurde die Analyse aus Vejmelka (1999), für die Zementzusammensetzung die Angaben von Kienzier & Vejmelka (1998) für Portlandzement und für die Steinkohleflugasche der Mittelwert von zwei Analysen aus deutschen Kraftwerken (Czurda & Knecht 1989) verwendet (Tabellen 2 bis 4). Da für die Steinkohlefilterasche kein Wert für Schwefel angegeben ist, wurde ein Schwefelgehalt von 1,0Gew.-% SO_3 angenommen (d.h. etwas geringer als in Braunkohlefilterasche).

Die nach den Mengenanteilen der Einzelkomponenten gewichtete, rechnerische Zusammensetzung des Salzbetons ist Tabelle B5 dargestellt. Analog zur Braunkohlefilterasche wurde die Bindung von Calcium durch anorganischen Kohlenstoff sowie durch Schwefel unterstellt. Somit verbleiben 1,09 mol Calcium pro kg Salzbeton für die Reaktion mit CO_2 .

Element	Gew.-%	Moimasse	mol/kg
Cn	0,96	40,08	0,24
Cl	57,4	35,45	16,19
Fe	0,02	55,85	0,00
K	0,16	39,10	0,04
Mg	0,09	24,31	0,04
Na	39,6	$\frac{23}{2} = 11,5$	17,23
o	1,34	32,07	0,42
	0,02	12,01	0,02
C org	0,02	12,01	0,02
Summe	99,61	.	34,19

Tabelle B2: Zusammensetzung von "Morsleben-Salz" nach Vejmelka (1999)

Oxid	Gew.-%	Molmasse	mol/kg
Al ₂ O ₃	9	101,96	0,88
CaO	51	56,08	9,09
Fe ₂ O ₃	1,5	159,69	0,09
MgO	2,5	40,30	0,62
Mn₂O₃	0,5	157,88	0,03
SiO ₂	27	60,09	4,49
SO ₃	$\frac{80}{100} = 0,8$	80,07	0,31
TiO ₂	0,45	79,88	0,06
Summe	94,45	-	10,99

Tabelle B3: Zusammensetzung von Hochofenzement nach Kienzier & Vejmelka (1998)

Oxid	Gew.-%	Molmasse	mol/kg
Al ₂ O ₃	27,30	101,96	2,68
CaO	53,39	56,08	9,52
Fe ₂ O ₃	8,43	159,69	0,53
MgO	1,87	40,30	0,46
Na ₂ O	0,56	61,98	0,09
SiO ₂	49,10	60,09	8,17
P ₂ O ₅	0,49	141,94	0,03
Summe	97,42	-	12,92

Tabelle B4: Zusammensetzung von Steinkohleflugasche nach Czurda & Knecht (1998), Mittelwert aus Angaben für das Großkraftwerk Mannheim (GKM) und das Heizkraftwerk Völklingen (HKV)

Oxid	Gew.-%	Molmasse	mol/kg
Al ₂ O ₃	8,21	101,96	0,80
CaO	8,02	56,08	1,43
NaCl	59,01	58,44	10,10
Fe ₂ O ₃	2,41	159,69	0,15
K ₂ O	1,02	94,20	0,11
MgO	0,87	40,30	0,22
MnO	0,08	70,94	0,01
Na ₂ O	8,11	61,98	0,35
SiO ₂	15,98	60,09	2,66
SO ₃	2,63	80,07	0,33
TiO ₂	0,37	79,88	0,05
UO ₂	0,05	44,01	0,01
Summe	100,80	-	16,22

Tabelle B5: Berechnete Zusammensetzung des Salzbetons (ohne Anteile an organischem Kohlenstoff aus dem "Morsleben-Salz")

Calciumanteil in sonstigen Abfällen

Kugel und Noack (2000) geben in ihrem Bericht über die stofflichen Bestandteile der radioaktiven Abfälle die Mengen für Bauschutt, Mischabfälle sowie Sekundärabfälle aus Verbrennungen und Schmelzen an. Hierunter verstehen sie ein (vor allem quantitativ) nicht näher bestimmtes Gemisch aus Beton, Isoliermaterialien (Mineralwolle, Glaswolle, Isoliermatten, asbesthaltige Stoffe), Filteraschen, Sand und anderen - z.T. nicht silikatischen - Materialien. Die von Kugel und Noack (2000) abgeschätzten Anteile an silikatischem Material enthalten ebenfalls Calcium, das für die Reaktion mit CO₂ zur Verfügung stehen kann (insbesondere der Beton). Für diese Abfälle wird in Anlehnung an Suter et al. (1999) und unter Vergleich mit dem Wert für den Salzbeton eine Menge von 1 mol Calcium pro kg Abfall angenommen.

Zusammenfassung

Aus den obigen Ausführungen resultieren die Faktoren für die Bestimmung des "verfügbaren" Calciums in den Abfall- und Versatzmengen.

8,8 mol Ca / kg Hochofenzement

3,8 mol Ca / kg Braunkohlefilterasche

1,1 mol Ca / kg Salzbeton

1,0 mol Ca / kg Bauschutt etc.

Sollten Analysen des tatsächlich zum Einsatz kommenden Salzbetons oder der eingebrachten Braunkohlefilterasche (stark) von den Werten in den Tabellen B2 und B5 abweichen, so sind diese Faktoren entsprechend anzupassen.

Tabelle A4: Berechnung der Verfügbarkeit von reaktivem Calcium und Sulfat für die Regelparameter in GASGEN; Berechnungsgrundlagen siehe Anhang B

Material	Südfeld	Westfeld	West- /Südfeld	Ostfeld	Nordfeld	Zentralteil	Sohlen- bohrloch	Restgrube
Silikate (Mg)	156,5	6927,0	7083,5	4116,5	142,7	17,0	1,7	0,0
BFA (Mg)	2,00E+04	1,38E+04	3,38E+04	0,00E+00	0,00E+00	1,50E+02	0,00E+00	0,00E+00
Zement aus Abfall (Mg)	6,89E+02	3,96E+03	4,65E+03	4,17E+02	3,29E+02	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Salzbeton EB (m³)	4,68E+05	1,42E+04	4,82E+05	2,21E+05	0,00E+00	2,54E+04	2,00E+01	2,77E+06
Salzbeton REB (m³)	4,61E+05	8,58E+03	4,70E+05	1,86E+05	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Salzbeton EB (Mg)	9,34E+05	2,82E+04	9,62E+05	4,40E+05	0,00E+00	5,07E+04	3,99E+01	5,52E+06
Salzbeton REB (Mg)	9,20E+05	1,71E+04	9,38E+05	3,71E+05	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Portlandit EB (mol)	1,11E+09	1,25E+08	1,24E+09	4,92E+08	3,04E+06	5,64E+07	4,56E+04	6,08E+09
Portlandit REB (mol)	1,01E+09	1,88E+07	1,03E+09	4,09E+08	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Portlandit REB/EB (%)	91,3	15,0	83,5	83,0	0,0	0,0	0,0	0,0
Sulfat EB	8,93E+07	6,56E+06	9,76E+07	1,46E+07	2,24E+05	3,53E+06	6,03E+02	2,24E+08
Sulfat REB	8,07E+07	2,53E+06	8,50E+07	1,25E+07	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Sulfat REB/EB (%)	90,3	38,6	87,1	85,6	0,0	0,0	0,0	0,0

: Salzbeton im Ostfeld gem. (DBE 2001); für das Ostfeld wird hier der gesamte Einlagerungsbereich zu Grunde gelegt

Tabelle A5: Berechnung der Gasmengen (H₂), bei der – bezogen auf den Gesamthohlraum – Partialdrücke von 10 bzw. 10'000 Pa auftreten würden; diese regeln als Parameter in GASGEN die Inhibition durch H₂

Material	Einheit	Südfeld	Westfeld	West- /Südfeld	Ostfeld	Nordfeld	Zentralteil	Sohlen- bohrloch	Restgrube
Hohlraum-Volumen EH	[m ³]	5,71E+04	2,67E+04	8,38E+04	1,39E+04	1,49E+03	2,35E+04	4,00E+00	1,49E+06
Hohlraum-Volumen REB	[m ³]	5,36E+05	1,68E+04	5,52E+05	8,32E+04	0	0	0	0
Hohlraum-Volumen EB	[m ³]	5,93E+05	4,35E+04	6,36E+05	9,71E+04	1,49E+03	2,35E+04	4,00E+00	1,49E+06
H ₂ bei 10 Pa EH	[mol]	2,55E+02	1,19E+02	3,74E+02	6,18E+01	6,65E+00	1,05E+02	1,79E-02	6,64E+03
H ₂ bei 10 Pa REB	[mol]	2,39E+03	7,51E+01	2,47E+03	3,72E+02	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
H ₂ bei 10 Pa EB	[mol]	2,65E+03	1,94E+02	2,84E+03	4,33E+02	6,65E+00	1,05E+02	1,79E-02	6,64E+03
H ₂ bei 10'000 Pa EH	[mol]	2,55E+05	1,19E+05	3,74E+05	6,18E+04	6,65E+03	1,05E+05	1,79E+01	6,64E+06
H ₂ bei 10'000Pa REB	[mol]	2,39E+06	7,51E+04	2,47E+06	3,72E+05	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
H ₂ bei 10'000 Pa EB	[mol]	2,65E+06	1,94E+05	2,84E+06	4,33E+05	6,65E+03	1,05E+05	1,79E+01	6,64E+06

Tabelle A6: Verwendete Inventardaten aus Kugel und Noack (2000) = KN und Blanke & Walter (2001) = BW und HIS (DBE 2001) = H.

Material	Südfeld	Westfeld	W/S-Feld	Ostfeld	Nordfeld	Zentralteil	Sohlenbohrloch	Restgrube
zellulosehaltige Stoffe (Mg) ^{KN}	23	1383	1406	231	98	2	0	0
zellulosehaltige Stoffe (Mg) ^{BW}	237	4	241	20	0	0	0	392
Summe Zellulose	260	1387	1647	251	98	2	0	392
Kunststoffe ^{KN}	27	2420	2447	279	87	1	0,20	0
Styrol-Copolymerisate (Mg) ^{KN}	139	889	1028	291	0	0	0,00	0
organische Stoffe (Mg) ^{KN}	1	62	63	0	73	0	0,00	0
Summe Polymere	167	3371	3538	570	160	1	0,2	0
Bitumen (Mg) ^{KN}	6	77	83	0	146	0	0	0
Metall (Mg) ^{KN}	464	8093	8557	2897	311	64	0,37	0
Metall (Mg) ^{BW}	394	11	405	93	0	46	0	1445
Summe Metalle	858	8104	8962	2990	311	110	0,37	1445
Silikate (Mg) ^{KN}	156,5	6927,0	7083,5	4116,5	142,7	17,0	1,7	0,0
BFA (Mg) ^{KN}	2,00E+04	1,38E+04	3,38E+04	0,00E+00	0,00E+00	1,50E+02	0,00E+00	0,00E+00
Min ³	6,67E+03	1,00E+04	1,67E+04	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00	0,00E+00
Max ⁴	2,20E+04	1,50E+04	3,70E+04	0,00E+00	0,00E+00	1,65E+02	0,00E+00	0,00E+00
Zement aus Abfall (Mg) ^{KN}	689,3	3960,3	4649,6	416,6	329,0	0,0	0,0	0,0

Tabelle A6 (Fortsetzung): Verwendete Inventardaten aus Kugel und Noack (2000) = KN und Blanke & Walter (2001) = BW und HIS (DBE 2001) = H.

Material	Südfeld	Westfeld	W/S-Feld	Ostfeld	Nordfeld	Zentralteil	Sohlenbohrloch	Restgrube
Salzbeton (m ³) ^H	4,68E+05	1,42E+04	4,82E+05	9,67E+04	0,00E+00	2,54E+04	2,00E+01	2,77E+06
Min	7,11E+04	4,07E+03	4,50E+05	2,10E+04	0,00E+00	2,45E+04	1,00E+01	5,87E+05
Max	4,98E+05	1,60E+04	5,14E+05	2,41E+05	0,00E+00	2,64E+04	5,00E+01	3,36E+06

³ Südfeld: 1/3 des Referenzwerts, Westfeld: nur Abbaue 1 – 3, Zentralteil: 0, West-Südfeld: Summe aus West- und Südfeld⁴ 110% des Referenzwerts

Material	Südfeld	Westfeld	WS-Feld	Ostfeld	Nordfeld	Zentralteil	Sohlenbohrloch	Restgrube
Salzbeton (Mg) †	9,34E+05	2,82E+04	9,62E+05	1,93E+05	0,00E+00	5,07E+04	3,99E+01	5,52E+06
Min	1,42E+05	8,12E+03	8,98E+05	4,18E+04	0,00E+00	4,88E+04	2,00E+01	1,17E+06
Max	9,94E+05	3,20E+04	1,03E+06	4,81E+05	0,00E+00	5,26E+04	9,98E+01	6,70E+06
Salze (Mg) ^{KN}	987	219	1206	116	18	2	0	0
Anteil NaNO ₃	987	219	1206	116	18	2	0	0

‡: Referenzwert Einlagerungsbereich Ostfeld gem. Datenbank

†: Unter Annahme einer Dichte von 1'995 kg/m³

Die Ausgangsdaten für die Inventare für das "Radiumfass" (Tabelle A7) wurden auf der Grundlage von Kugel (2000) abgeleitet. Es wurden Ra-Strahlenquellen in 8 Spezialcontainern in einem 200 l Fass eingelagert. Dieses ist in einem 280 l Fass eingebracht, das wiederum in einem Betonbehälter Typ II steht. Das Radiumfass soll in einem vollständig mit Salzbeton verfülltem Sohlenbohrloch im OF eingebracht werden. Dessen Hohlräumvolumen soll 20 m³ (10 - 50 m³) betragen (DBE 2001).

Betonbehälter:	1,7 Mg 0,07 Mg	Zement Stahlarmierung
280 l Fass:	0,05 – 0,085 Mg	Stahl (Wert in Summe enthalten)
200 l Fass:	0,04 – 0,055 Mg 0,02 Mg	Stahl (Wert in Summe enthalten) Polyethen = Innenfass (vorhanden ?)
Spezialcontainer (8 Stück):	Keine getrennte Gewichtsangabe, daher Gesamtmenge für Spezialcontainer + Fässer (0,3 Mg) verwendet (Einzelangaben für Fässer deswegen vernachlässigt,)	
Kunstharze in Abfällen:	Keine Gewichts- oder Mengenangabe, aber vorhanden, Dafür wurde ein 200 l Innenfass angerechnet, das üblicherweise in 200-l-Fässern vorhanden ist.	

Tabelle A7: Mengen an eingelagerten, nicht radioaktiven Abfällen im Einlagerungsbereich Sohlenbohrloch nach Kugel (2000).

Anhang B

Für die Modellierung der Gasbildung ist es notwendig, die verfügbare Menge an Calcium zu kennen, welches mit dem CO_2 aus der mikrobiellen Gasbildung zu Calcit reagieren kann. Für die bisher durchgeführten Berechnungen wurden hierzu annäherungsweise Mengen bestimmt (vgl. Suter et al. 1999). Für die neuen Berechnungen zur Gasbildung im ERAM werden in diesem Anhang neue, detailliertere Bestimmungen des verfügbaren Calciums durchgeführt.

Es werden drei Quellen für verfügbares Ca angenommen: Braunkohlefilterasche (BFA) als eingebrachter "Altversatz", Salzbeton (M3) als Hohlraumverfüllung und sonstige Abfälle nach Kugel und Noack 2000.

Kriterien für Verfügbarkeit

Im Zement ist das Calcium vornehmlich in Portlandit oder CSH-Phasen, aber auch anderen calciumhaltigen Verbindungen gebunden. Der Portlandit reagiert direkt mit dem CO_2 unter Bildung von Calcit und Wasser. Für die CSH-Phasen wird ebenfalls eine Reaktion des darin gebundenen Calciums mit CO_2 beschrieben (Lange et al. 1997). Bei dieser Reaktion wird der CSH-Phase zunehmend Calcium entzogen, welches als Calcit ausfällt, während das verbleibende SiO_2 eine Si-Gel-Phase bildet. Auch für andere calciumhaltige Phasen des abgebundenen Zements werden Carbonatisierungsreaktionen beschrieben. Bei Phasen, die neben dem Calcium auch Carbonat- oder Sulfatgruppen enthalten, kann davon ausgegangen werden, dass die äquivalente Menge Calcium nicht mehr für die Reaktion mit CO_2 zur Verfügung steht.

Calciumanfeil in der Braunkohlefilterasche

Als Basis wurden die Angaben zur Zusammensetzung der Braunkohlefilterasche nach Velmelka (1999) verwendet. Nach der Analyse sind 4,97 mol Calcium pro kg Braunkohlefilterasche vorhanden. Es wird angenommen, dass aller anorganische Kohlenstoff (0,04 mol) mit Calcium gebunden ist (z.B. als Calcit). Daher wird die entsprechende Menge von der Calciummenge abgerechnet. Der dort als "organisch" angegebene Kohlenstoff (vermutlich Graphit) wird als inert angesehen.

Auch der Schwefel ist (vornehmlich als Anhydrit oder hydratisiert als Gips) mit Calcium gebunden. Der geringe Anteil sulfidisch gebundenen Schwefels (0,05 Gew.-%) kann vernachlässigt werden. Die Calciummenge wird auch um die Menge an Schwefel reduziert, so dass letztendlich 3,79 mol pro kg Braunkohlefilterasche verbleiben. Es wird angenommen, dass diese Menge vollständig für die Reaktion mit CO_2 zur Verfügung steht.

Element	Gew.-%	Molmasse	mol/kg
Al	6,86	26 98	2 54
Ca	19,93	40 08	4 97
F [⊙]	4,84	55 85	0 87
K	0,29	39 10	0 07
Mg	1,39	24 31	0 57
Mn	0,12	54 94	0 02
Na	0,16	22 ä w	0 07
Si	10,8	28 09	3 85
Ti	0,53	47 88	0 11
S	3,66	od. 07	1 14
C	0,05	12 01	0 04
C org	0,52	12 01	0 43
Summe	49,15	.	14 69

Tabelle B1: Zusammensetzung der Braunkohlefilterasche nach Vejmelka (1999)

Calciymanfeil im Salzbeton

Als Salzbeton für die Hohlraumverfüllung ist die Mischung M3 vorgesehen. Sie besteht pro Kubikmeter aus 197 kg Hochofenzement, 459 kg Steinkohlefilterasche, 1087 kg Salz und 252 kg Wasser. Analysen für die vorgesehenen Materialien lagen nicht vor, daher wurden Analysen anderer, jedoch ähnlicher Materialien verwendet. Für die Salzzusammensetzung wurde die Analyse aus Vejmelka (1999), für die Zementzusammensetzung die Angaben von Kienzier & Vejmelka (1998) für Portlandzement und für die Steinkohleflugasche der Mittelwert von zwei Analysen aus deutschen Kraftwerken (Czurda & Knecht 1989) verwendet (Tabellen 2 bis 4). Da für die Steinkohlefilterasche kein Wert für Schwefel angegeben ist, wurde ein Schwefelgehalt von 1,0Gew.-% S₀₃ angenommen (d.h. etwas geringer als in Braunkohlefilterasche).

Die nach den Mengenanteilen der Einzelkomponenten gewichtete, rechnerische Zusammensetzung des Salzbetons ist Tabelle B5 dargestellt. Analog zur Braunkohlefilterasche wurde die Bindung von Calcium durch anorganischen Kohlenstoff sowie durch Schwefel unterstellt. Somit verbleiben 1,09 mol Calcium pro kg Salzbeton für die Reaktion mit CO₂.

Element	Gew.-%	Moimasse	moi/kg
Ca	0,96	40,08	0,24
Ci	57,4	35,45	16,19
Fe	0,02	55,85	0,00
K	0,16	39,10	0,04
Mg	0,09	24,31	0,04
Na	39,6	22,99	17,23
S	1,34	32,07	0,42
	0,02	12,01	0,02
C org	0,02	12,01	0,02
Summe	99,61	-	34,19

Tabelle B2: Zusammensetzung von "Morsleben-Salz" nach Vejmelka (1999)

Oxid	Gew.-%	Molmasse	mol/kg
Al ₂ O ₃	9	101,96	0,88
CaO	51	56,08	9,09
F [∧] O ₃	1,5	159,69	0,09
MgO	2,5	40,30	0,62
Mn ₂ O ₃	0,5	157,88	0,03
SiO ₂	27	60,09	4,49
SO ₃	2,5	80,07	0,31
TiO ₂	0,45	79,88	0,06
Summe	94,45	-	15,59

Tabelle B3: Zusammensetzung von Hochofenzement nach Kienzier & Vejmelka

Oxid	Gew.-%	Molmasse	mol/kg
Al ₂ O ₃	27 30	101 96	2 68
CaO	5 39	56 08	0 96
Fe ₂ O ₃	8 43	159 69	0 53
MgO	1 87	40 30	0 46
Na ₂ O	0 56	61 98	0 09
SiO ₂	49 10	60 09	8 17
P ₂ O ₅	0 49	141 94	0 03
Summe	97 42	-	12 92

Tabelle B4: Zusammensetzung von Steinkohleflugasche nach Czurda & Knecht (1998), Mittelwert aus Angaben für das Großkraftwerk Mannheim (GKM) und das Heizkraftwerk Völklingen (HKV)

Oxid	Gew.-%	Molmasse	mol/kg
Al ₂ O ₃	8,21	101,96	0,80
CaO	8,02	56,08	1,43
NaCl	59,01	58,44	10,10
Fe ₂ O ₃	2,41	159,69	0,15
K ₂ O	1,02	94,20	0,11
MgO	0,87	40,30	0,22
MnO	0,08	70,94	0,01
Na ₂ O	2,15	61,98	0,35
SiO ₂	15,98	60,09	2,66
SO₃	2,63	80,07	0,33
TiO ₂	0,37	79,88	0,05
CO ₂	0,05	44,01	0,01
Summe	100,80	-	16,22

Tabelle B5: Berechnete Zusammensetzung des Salzbetons (ohne Anteile an organischem Kohlenstoff aus dem "Morsleben-Salz")

Calciumanteil in sonstigen Abfällen

Kugel und Noack (2000) geben in ihrem Bericht über die stofflichen Bestandteile der radioaktiven Abfälle die Mengen für Bauschutt, Mischabfälle sowie Sekundärabfälle aus Verbrennungen und Schmelzen an. Hierunter verstehen sie ein (vor allem quantitativ) nicht näher bestimmtes Gemisch aus Beton, Isoliermaterialien (Mineralwolle, Glaswolle, Isoliermatten, asbesthaltige Stoffe), Filteraschen, Sand und anderen - z.T. nicht silikatischen - Materialien. Die von Kugel und Noack (2000) abgeschätzten Anteile an silikatischem Material enthalten ebenfalls Calcium, das für die Reaktion mit CO₂ zur Verfügung stehen kann (insbesondere der Beton). Für diese Abfälle wird in Anlehnung an Suter et al. (1999) und unter Vergleich mit dem Wert für den Salzbeton eine Menge von 1 mol Calcium pro kg Abfall angenommen.

Zusammenfassung

Aus den obigen Ausführungen resultieren die Faktoren für die Bestimmung des "verfügbaren" Calciums in den Abfall- und Versatzmengen.

8,8 mol Ca / kg Hochofenzement

3,8 mol Ca / kg Braunkohlefilterasche

1,1 mol Ca / kg Salzbeton

1,0 mol Ca / kg Bauschutt etc.

Sollten Analysen des tatsächlich zum Einsatz kommenden Salzbetons oder der eingebrachten Braunkohlefilterasche (stark) von den Werten in den Tabellen B2 und B5 abweichen, so sind diese Faktoren entsprechend anzupassen.