

Planfeststellungsverfahren zur Stilllegung des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben

Verfahrensunterlage

Titel: Ableitung von Sorptionsdaten aus experimentellen Untersuchungen
Schachanlage Konrad

Autor: Tittel, G., Hollmann, A., StierFriedland, G. & Warnecke, E.

Erscheinungsjahr: 1986

Unterlagen-Nr.: I 316

Revision: 00

Unterlagenteil:



Inhaltsverzeichnis

	Seite
1. Vorbemerkung	4
2. Einleitung und Problemstellung	5
3. Szenarien für Freisetzung und Ausbreitung von Radionukliden in Grubengebäude, Nebengestein, über- bzw. unterlagernden Schichten	7
3.1. Vorgänge im Grubengebäude	7
3.2. Ausbreitung in Nebengestein und über- bzw. unterlagernden Schichten	8
4. Experimentelle Untersuchungen der Sorptions-eigenschaften von Gesteinen aus dem Bereich der Schachanlage Konrad	10
4.1. Untersuchte Gesteins- und Wasserproben	10
4.2. Durchführung der Experimente	15
4.2.1. Experimentiertechniken	15
4.2.2. Untersuchte Parameter	19
4.2.3. Probenvorbehandlung	20
4.2.4. Untersuchte Radionuklide	23
5. Sorptionsdaten für Ausbreitungsrechnungen	23
5.1. Sorption im Grubengebäude	24
5.1.1. Randbedingungen	24
5.1.2. Sorptionsdaten	34
5.2. Sorption im Malm (Oxford und Kimmeridge)	37
5.2.1. Randbedingungen für das Oxford	37
5.2.2. Sorptionsdaten für das Oxford	38
5.2.3. Randbedingungen für das Kimmeridge	40
5.2.4. Sorptionsdaten für das Kimmeridge	40
5.3. Sorption im Dogger	42
5.3.1. Sorptionsdaten für den Cornbrash	42
5.3.2. Sorptionsdaten für das Bajocium	43
5.4. Sorption in den überlagernden Schichten	45

	Seite
5.4.1. Sorptionsdaten für die Unterkreide	45
5.4.2. Sorptionsdaten für die Oberkreide	48
6. Zusammenfassung	50
7. Literaturverzeichnis	51

ERA
Morsleben

1. Vorbemerkung

Nach den von der Reaktorsicherheitskommission empfohlenen und vom Bundesminister des Innern veröffentlichten "Sicherheitskriterien für die Endlagerung radioaktiver Abfälle" /1/ muß die Sicherheit eines Endlagers durch standortspezifische Sicherheitsanalysen für Betriebs- und Nachbetriebsphase nachgewiesen werden. Dabei sind mögliche Transportvorgänge von Radionukliden aus dem Endlagerbereich in die Biosphäre über den Wasserpfad zu berücksichtigen.

In einem umfangreichen Programm wurden die Sorptionseigenschaften standortspezifischer Sedimente für relevante Radionuklide ermittelt, um die Durchführung der Sicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase der Schachanlage Konrad auf eine ausreichende experimentelle Basis zu stellen. Die Untersuchungen wurden von folgenden Arbeitsgruppen durchgeführt:

- Prof. Brühl, Institut für Angewandte Geologie, FU Berlin
- Prof. Moser, Institut für Radiohydrometrie, GSF München
- Prof. Meier, Staatliches Forschungsinstitut für Geochemie, Bamberg
- Dr. Kim, Institut für Radiochemie, TU München

Im vorliegenden Bericht wird die Ableitung von Sorptionsdaten relevanter Radionuklide, die mit den Experimentatoren abgestimmt wurde, aus den experimentell bestimmten Sorptions-/Desorptionskoeffizienten beschrieben.

2. Einleitung und Problemstellung

Die rechnerische Modellierung nicht vollständig ausschließbarer Transportvorgänge von Radionukliden in die Biosphäre bildet einen Bestandteil der Sicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase des geplanten Endlagers Konrad. Hierbei wird die Barrierewirkung der Schichten des Einlagerungshorizontes (nachfolgend kurz "Nebengestein" genannt) sowie der den Einlagerungshorizont über- und unterlagernden Schichten durch elementspezifische Retardationsfaktoren charakterisiert, die ein Maß für die Verzögerung der Radionuklidenausbreitung infolge von Sorptionsvorgängen darstellen. Der Retardationsfaktor ist eine Funktion der charakteristischen Gesteinsparameter Porosität und Dichte sowie des Verteilungskoeffizienten K_D für das betrachtete Sediment-Grundwasser-System /2/. Dieser K_D -Wert wurde aus experimentell bestimmten Sorptions- und Desorptionsdaten abgeleitet.

Neben Sorptionsvorgängen tragen Ausfällreaktionen als Folge einer Überschreitung von Löslichkeitsgrenzen zur Verzögerung eines Radionuklids gegenüber dem Transportmedium Wasser bei. Dieser Effekt ist hauptsächlich bei der Modellierung der Vorgänge im Grubengebäude zu beachten.

Da das Sorptionsverhalten von Radionukliden von den physikalisch-chemischen Eigenschaften des jeweiligen Systems Grundwasser-Sediment abhängt, müssen die entsprechenden Randbedingungen genau genug bekannt sein. Diese Randbedingungen ergeben sich im wesentlichen aus den Ergebnissen des Standorterkundungsprogramms sowie aus den endlagerspezifischen Freisetzungsszenarien.

Die Experimente zur Bestimmung der Sorptionseigenschaften von Konrad-Sedimenten wurden so umfassend angelegt, daß die Sorptionsdaten für die möglichen Ausbreitungspfade und die damit verknüpften Randbedingungen durch Interpolation und Extrapolation der Daten abgedeckt werden konnten.

In den nachfolgenden Kapiteln wird die Ableitung der Verteilungskoeffizienten beschrieben, die im Rahmen der Sicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase des Endlagers Konrad für Modellrechnungen zur Radionuklidausbreitung herangezogen worden sind. Da hierbei wesentlich die der Modellierung zugrunde gelegten Ausbreitungsszenarien eingehen, werden nachstehend auch kurz die aus einer Modellierung der Grundwasserbewegung abgeleiteten möglichen Ausbreitungspfade beschrieben.

ERA
Morsleben

3. Szenarien für Freisetzung und Ausbreitung von Radionukliden in Grubengebäude, Nebengestein und über- bzw. unterlagernden Schichten

Die Modellierung der Grundwasserbewegung, und davon ausgehend der Radionuklidausbreitung, sind detailliert in /3/ beschrieben, so daß hier nur auf die für die Ableitung von Sorptionsdaten relevanten Aspekte eingegangen wird.

3.1. Vorgänge im Grubengebäude

Bei der Modellierung der Vorgänge im Grubengebäude wird angenommen, daß zu Beginn der Nachbetriebsphase die Mobilisierung von Radionukliden aus den Abfallbinden und die Freisetzung von Radionukliden aus dem Grubengebäude in die Formationen des Lockgebirges einsetzt.

Die Ausbreitung der gelösten Radionuklide wird durch eine Vielzahl physikalischer und chemischer Prozesse beeinflusst. Von den für eine Rückhaltung in Frage kommenden Mechanismen sind - neben der Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls - zu betrachten:

Sorptionsvorgänge:

Diese führen zu einer Konzentrationsverringerung der Radionuklide in der wässrigen Phase durch Adsorption der Radionuklide an den Feststoffen des Grubengebäudes. Hierfür kommen physikalische, chemische und elektrische Sorption in Frage /4/.

Fällungsreaktionen

Überschreitet die Konzentration der Radionuklide im Grubengebäude bestimmte, von den chemischen Randbedingungen abhängige Grenzwerte, kommt es durch die Bildung von Niederschlägen zu einer Retardation dieser Nuklide. Neben Sorptionsdaten waren daher auch Angaben über die Löslich-

keiten der bei den Modellrechnungen betrachteten chemischen Elemente bereitzustellen.

Die im chemischen Milieu des Grubengebäudes nach Auflösung der Abfallgebinde zu erwartende Sorption von Radionukliden an Korrosionsprodukten der Behälter- und Fixierungsmaterialien wie Hydroxiden oder Silikaten wird vernachlässigt, ebenso wie eine Mitfällung von Radionukliden bei der Bildung dieser schwerlöslichen Verbindungen.

3.2. Ausbreitung in Nebengestein und über- bzw. unterlagernden Schichten

Nach der Auffüllung der Resthohlräume im Grubengebäude beginnt die Freisetzung der kontaminierten Grubenwässer in die Formationen des Deckgebirges. Aus der Modellierung der großräumigen Grundwasserbewegung ergeben sich drei mögliche Wege für den weiteren Transport von Radionukliden bis in die Biosphäre. Diese werden in drei entsprechenden, nachstehend kurz skizzierten Szenarien analysiert /3/.

- Szenarium: "Ausbreitung durch die Unterkreide-Tone"

Hierbei wird davon ausgegangen, daß die kontaminierten Wässer nach ihrem Austritt aus dem Grubengebäude die stratigraphischen Einheiten Oxford, Kimmeridge, Unterkreide, Oberkreide und Quartär durchströmen.

- Szenarium: "Ausbreitung durch das Oxford"

Es wird der Transport der Radionuklide durch das Oxford nach Norden bis in den Raum Gifhorn/Calberlah betrachtet, wo über den Kimmeridge der Übertritt ins Quartär erfolgt.

- Szenarium: "Ausbreitung durch den Cornbrash"

Bei diesem Szenarium wird von einem Übergang eines Teils

der kontaminierten Grubenwässer aus dem Endlagerbereich in die unterlagernden Dogger-Tone ausgegangen. Die weitere Ausbreitung erfolgt über Cornbrash und Oxford nach Norden bis in den Raum Gifhorn/Calberlah wo über Kimmeridge und Quartär der Kontakt mit der Biosphäre erfolgt.

In einem umfangreichen experimentellen Programm wurden die Sorptionseigenschaften der o. a. Formationen untersucht und als elementspezifische K_D -Werte für die Modellrechnungen bereitgestellt.

ERA
Morsleben

4. Experimentelle Untersuchungen der Sorptionseigenschaften von Gesteinen aus dem Bereich der Schachtanlage Konrad

4.1. Untersuchte Gesteins- und Wasserproben

In Tab. 1 sind die stratigraphischen Einheiten zusammengefaßt, die für die Ausbreitung von Radionukliden entlang der drei oben beschriebenen Pfade zu betrachten sind /5/. Ebenfalls angegeben ist die petrographische Bezeichnung der verwendeten Gesteine sowie das zugehörige Wasser. Weiterhin gibt die Tabelle einen Überblick über Art und Anzahl der Proben, die aus der jeweiligen stratigraphischen Einheit für Sorptionsexperimente gewonnen wurden. Das Probenmaterial wurde aus Steinbrüchen und übertägigen Erkundungsbohrungen entnommen. Proben des Kimmeridge und des Einlagerungshorizonts wurden im Grubengebäude erbohrt. Ergänzt und abgesichert wurden die mit diesen Gesteinen erhaltenen Untersuchungsergebnisse durch Experimente mit Probenmaterial aus der Tiefbohrung Konrad 101, die die Gewinnung von frischem, Sedimentgestein ermöglichte. Um eine nachträgliche Oxidation zu verhindern, wurden diese Proben unter Inertgas aufbewahrt. Die Gesteine wurden durch mineralogische und sediment-petrographische Untersuchungen charakterisiert.

Zu jedem Gestein wurde nach Möglichkeit das für den jeweiligen Horizont charakteristische Grundwasser aus Brunnen bzw. aus Bohrungen in der Grube selbst gewonnen. Ansonsten wurden Wässer mit analogen chemisch-physikalischen Eigenschaften herangezogen.

Eine Ausnahme bildete der Cenoman aus der Tiefbohrung Konrad 101. Für diese zur Oberkreide gehörende Formation wurde bei den Sorptionsuntersuchungen ein Modellwasser verwendet, dessen chemische Zusammensetzung aus der Analyse des vorgefundenen Porenwassers abgeleitet wurde.

Stratigraphische Einheit			Lithologie	für die Experimente verwendetes Grundwasser	Teufe der entnommenen Proben	Probenzahl		
Quartär			Sand	Süßwasser	60 m	1		
			Sand und Ton	Süßwasser	60 m	1		
Kreide	Oberkreide	Turon	Kalkstein	Süßwasser	oberflächennah (Steinbruch)	2		
					110 m	1		
		Cenoman	Kalkstein		Salzwasser	oberflächennah (Steinbruch)	2	
						Modellwasser	200 m	1
	Unterkreide	Alb	Tonstein		Salzwasser	310 m, 420 m	2	
			Sandstein		Salzwasser	460 m	1	
			Tonmergelstein		Salzwasser	570 m	1	
	Jura	Malm	Kimmeridge	Kalkstein		Salzwasser	aus Schichtanlage Konrad	1
Eisenerz					Salzwasser	aus Schichtanlage Konrad	3	
Kalkstein					Salzwasser	aus Schichtanlage Konrad	2	
Dogger		Oxford	Tonmergelstein		Salzwasser	aus Schichtanlage Konrad	1	
			Bathonium	Kalksandstein		Salzwasser	890 m	2
			Bajocium	Tonstein		Salzwasser	940 m	1

Tab. 1: Herkunft der Proben für Sorptionsexperimente

Im Bereich der Schachtanlage Konrad liegt die Grenze zwischen Süß- und Salzwässern bei einer Teufe von etwa 170 m. Daher wurden die Experimente mit den unter dem Turon liegenden Gesteinen mit salzhaltigen Wässern durchgeführt.

In Tab. 2 sind die wichtigsten chemisch-physikalischen Eigenschaften der verwendeten Grundwässer zusammengefaßt. Tab. 3 zeigt die experimentell untersuchten Sediment-Grundwasser-Systeme.

Bereits an dieser Stelle soll darauf hingewiesen werden, daß im allgemeinen die Chemie der Wässer einen bestimmten Einfluß auf das Sorptionsverhalten der untersuchten Radionuklide ausübt, während sich die Art des eingesetzten Gesteins als von geringerer Bedeutung erwiesen hat.

	Quartär	Söhlde	Hils	Strecke 670	Ort 300
Teufe [m]	21.8-25.8 und 28-46	28	480	1244	1000
Leitfähigkeit [$\mu\text{S}/\text{cm}$]	1175	675	162 000	192 000	168 000
pH	6.97	7.2	6.1	6.0	5.99
Eh [mV]	-64	358	95	195	-
CO ₂ frei	20	18	120	265	130
Li ⁺	0.048	0.02	1.1	1.2	3.37
Na ⁺	73	32	54 100	62 000	61 778
K ⁺	9	4.1	118	214	286
Cs ⁺	0.004	0.005	0.01	0.005	
Mg ⁺	26.9	15	1356	2720	2280
Ca ⁺	186	130	5050	13200	11349
Sr ⁺	1.7	4.9	568	438	487
Ba ⁺	0.11	0.015	0.88	0.053	0.8
Fe ^{2+/3+}	0.2	0.2	21.7	57	74
Al ³⁺	0.015	0.007	0.038	0.021	3.2
NH ₄ ⁺	0.06	0.02	51	62	51.2
Mn ²⁺	0.13	0.004	4.3	1.7	-
F ⁻	1.8	3	50.5	353	331
Cl ⁻	94.3	57	95 970	125 000	117 327
Br ⁻	20.05	20.05	206	840	653
I ⁻	0.1	0.002	9	25.3	63.5
HCO ₃ ⁻	260	299	100	70	60.4
SO ₄ ²⁻	377	129	316	767	600
PO ₄ ³⁻	0.06	0.21	nicht nach- weisbar	0.13	-
BO ₃ ³⁻	5.1	0.87	10	100	53.4
NO ₃ ³⁻	7.1	3.45	-	-	-
SiO ₂	27	17.4	4.5	12.8	5.5

Tab. 2: Analysenergebnisse (Hauptbestandteile in mg/l)
der verwendeten Wasser

Gestein	für Experimente verwendetes Wasser
<u>Proben aus Bohrung</u>	
Quartär (sandig)	Quartär 1)
Quartär (bindig)	Quartär 1)
<u>Proben aus Tagesaufschlüssen</u>	
Mittelturon (heller Turonpläner, "Lamarcki-Pläner")	Söhlde 2)
Unterturon (roter Turonpläner, "Rotpläner")	Söhlde 2)
Obercenoman (heller Cenomanpläner, "rhoto-magense-Schichten")	Söhlde 2)
Unter-/Mittelcenoman	Söhlde 2)
<u>Proben aus Grubengebäude Konrad</u>	
Kimmeridge	Hils 3) und Str. 670 4)
Kimmeridge, Basis ("Kalksandsteinlager")	Ort 300 5)
Oberoxford, Mittlerer Korallenoolith ("Erzlager", hangender Teil)	Hils 3) und Str. 670 4)
Oberoxford, Mittlerer Korallenoolith ("Erzlager", liegender Teil)	Hils 3) und Str. 670 4)
Mitteloxford, Unterer Korallenoolith ("Erzkalk")	Hils 3) und Str. 670 4)
Mitteloxford, Unterer Korallenoolith ("Trümmerkalke")	Hils 3) und Str. 670 4)
<u>Proben aus der Tiefbohrung Konrad 101</u>	
Mittelturon (Weißpläner)	Söhlde 2)
Mittelcenoman	Modellwasser
Oberalb (Mergeltonstein)	Hils 3)
Unteralb (Tonstein)	Hils 3)
Unteralb, Hilssandstein (Feinsandstein)	Hils 3)
Oberhauterive, Mergeltonstein	Ort 300 5)
Bathonium, ("Cornbrash", unterer Teil)	Ort 300 5)
Bathonium, ("Cornbrash", oberer Teil)	Ort 300 5)
Oberbajocium, (Tonstein)	Ort 300 5)

- 1) Wasser aus Pegelbohrung ins Quartär
- 2) Wasser aus der Oberkreide, aus einem Brunnen im Steinbruch Söhlde
- 3) Wasser aus dem Hilssandstein im Schacht Konrad 2
- 4) Wasser aus dem Korallenoolith im Grubengebäude, Strecke 670
- 5) Wasser aus dem Korallenoolith im Grubengebäude, Ort 300

Tab. 3: Untersuchte Gesteins-Wasser-Systeme

4.2. Durchführung der Experimente

4.2.1. Experimentiertechniken

Die Bestimmung der Sorptionseigenschaften von Gesteinen aus dem Bereich der Schachanlage Konrad wurde z. T. unter Inertgas durchgeführt. Dabei wurden drei sich ergänzende Experimentiertechniken eingesetzt:

- Schüttelversuche

Hierbei wird die Verteilung von Radionukliden zwischen einem Sedimentgestein und der zugehörigen wäßrigen Lösung bei einem bestimmten Verhältnis der Masse des Festkörpers zu Volumen der Lösung ermittelt. Die Durchmischung beider Phasen erfolgte durch schonendes Schütteln. Die Experimente wurden bis zur Verteilungskonstanz der Radionuklide geführt und anschließend wurde ein Desorptionsexperiment durchgeführt. Im allgemeinen wurden mindestens 2 Einzelversuche pro Experiment ausgeführt. Der Einfluß von relevanten Parametern auf das Sorptionsverhalten von Radionukliden kann dabei in vergleichsweise kurzen Zeiträumen bestimmt werden. Diese Experimente liefern direkt die Sorptions- und Desorptionswerte (R_S - und R_D -Werte).

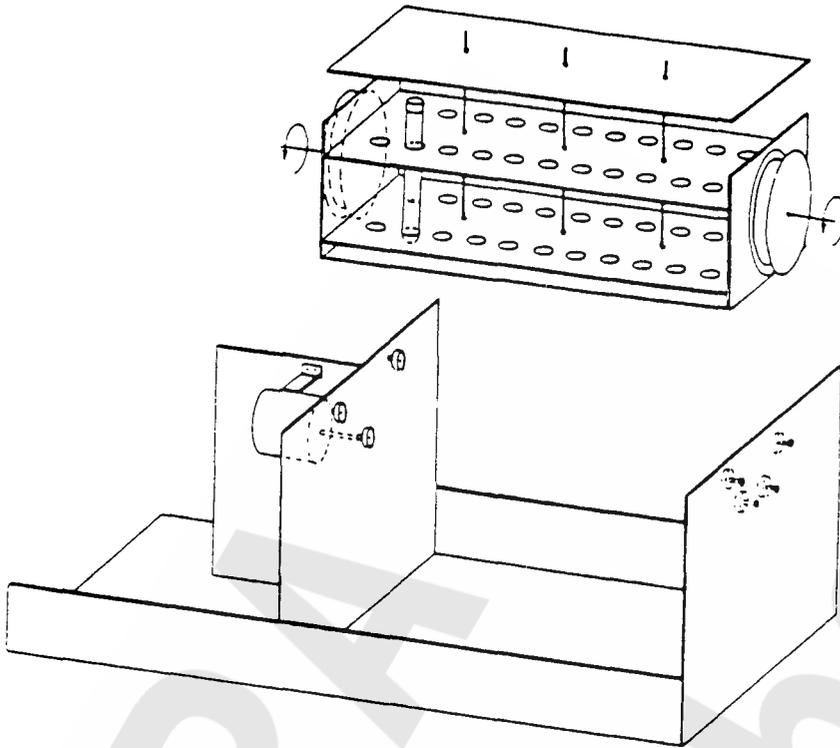
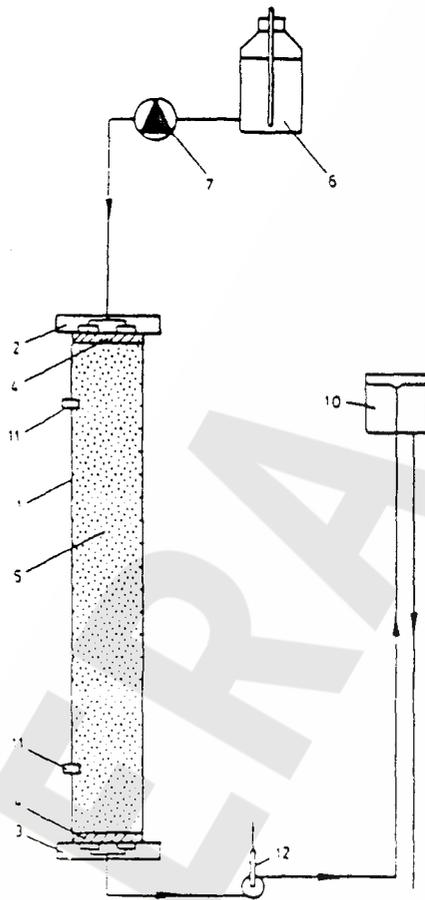


Abb. 1: Schematische Darstellung der Rotationsschüttelmaschine

- Säulenversuche

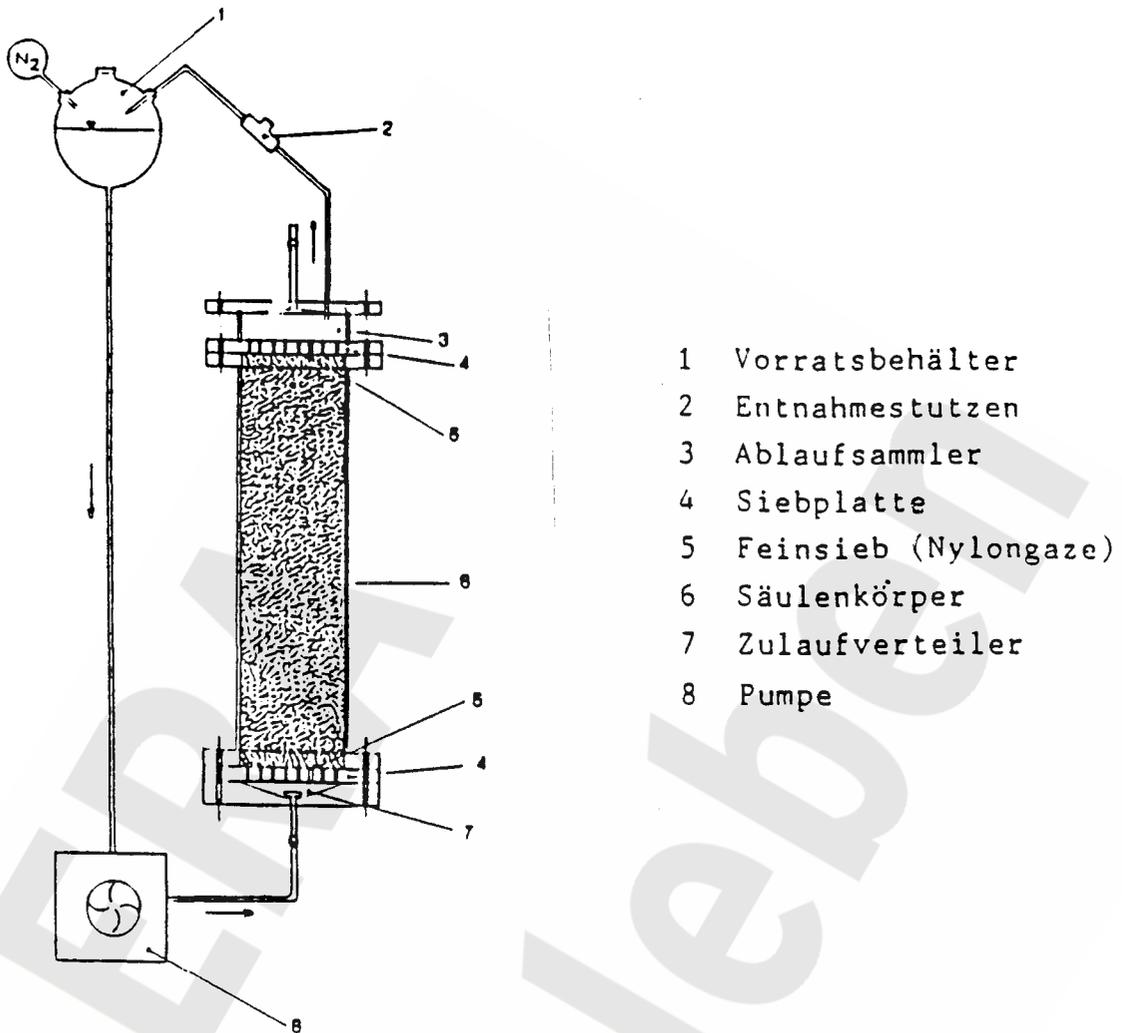
Es werden unterschieden:

- . Durchlaufexperimente, in den hier angesprochenen Versuchen mit pulsformiger Aufgabe der Radionuklide. Bei diesen Experimenten wird aus gemessenen Retardationen der Radionuklide der elementspezifische Verteilungskoeffizient berechnet. Die Versuchsanordnung ist in Abb. 2 schematisch dargestellt.
- . Umlaufsäulenexperimente mit zirkulierendem, die Radionuklide enthaltendem Grundwasser (Abb. 3). Hierbei werden direkt R_S - bzw. R_D -Werte erhalten.



- 1 = Plexiglassäule
- 2 = Zulaufverteiler
- 3 = Ablaufsammler
- 4 = Kiesklebefilter
- 5 = zu untersuchendes Material
- 6 = Mariottesche Flasche
- 7 = Schlauchpumpe
- 10 = Niveaugefäß
- 11 = Manometeranschluß
- 12 = Redoxelektrode.

Abb. 2: Schematische Darstellung der verwendeten Durchlaufsäulenordnung



- 1 Vorratsbehälter
- 2 Entnahmestutzen
- 3 Ablaufsammler
- 4 Siebplatte
- 5 Feinsieb (Nylongaze)
- 6 Säulenkörper
- 7 Zulaufverteiler
- 8 Pumpe

Abb. 3: Schematische Darstellung der verwendeten Umlaufsäulenordnung

- Diffusionsversuche

Diese wurden an bindigen Sedimenten mit in der Regel niedriger hydraulischer Leitfähigkeit durchgeführt. Hier kann von Diffusion als Hauptmechanismus für den Radionuklidtransport ausgegangen werden. Dabei wurde eine plane Sedimentprobe so in ein Gefäß eingebaut, daß auf der einen Seite der Probe eine inaktive und auf der anderen eine aktive Lösung vorgegeben werden konnte. Der Durchtritt der Radionuklide in die inaktive Lösung wurde verfolgt. Die Abb. 4 zeigt die Versuchsanordnung.

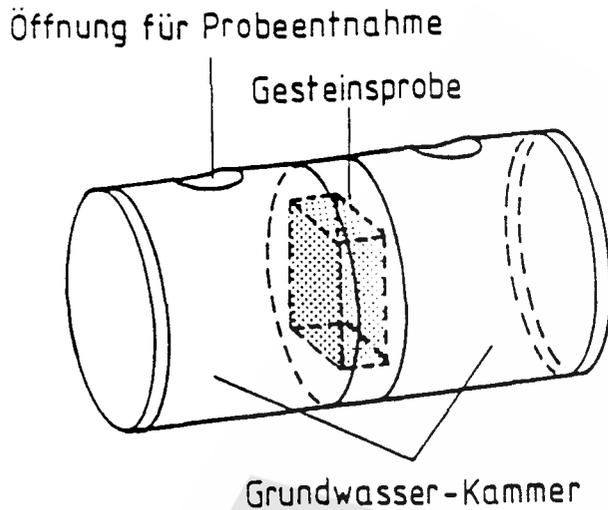


Abb. 4: Schematische Darstellung der Diffusionsanordnung

4.2.2. Untersuchte Parameter

Das Sorptionsverhalten von Radionukliden wird von den physikalisch-chemischen Eigenschaften des jeweiligen Systems Grundwasser-Sediment bestimmt. Deshalb müssen die Versuchsbedingungen den natürlichen geologischen und hydrogeologischen Verhältnissen soweit wie möglich entsprechen. Darüber hinaus ist es notwendig, die das Sorptionsverhalten von Radionukliden bestimmenden Parameter zu identifizieren und ihren Einfluß auf die Sorptionsdaten zu quantifizieren, um für einzelne Radionuklide ggf. eine Interpolation der Daten bzw. eine Extrapolation, falls die Daten nicht direkt im Experiment ermittelt werden können, durchführen zu können.

- aerobe/anaerobe Bedingungen
- Redoxpotential
- pH-Wert
- Korngröße der Sedimente

- Verhältnis Volumen des Sorptionsmediums/Masse des Sorbens
- Einfluß von natürlichen und technischen Komplexbildnern (Carbonat, Huminstoffe, EDTA, Tenside, Citrat)
- Kolloidbildung
- Konzentration der Radionuklide
- Löslichkeit der Elemente
- Experimentierzeit
- Temperatureinfluß
- Radiolyse
- Abhängigkeit vom Gehalt relevanter Grundwasserbestandteile.

In umfangreichen Experimenten mit der Schütteltechnik wurde durch eine gezielte Variation der als wesentlich identifizierten Parameter ihr Einfluß auf das Sorptions-/Desorptionsverhalten der Radionuklide untersucht. Die Ergebnisse bilden die Basis für die in den Modellrechnungen verwendeten K_D -Werte.

4.2.3. Probenvorbehandlung

Für Säulen- und Schüttelversuche wurden die Festgesteine zerkleinert und durch Siebung in die drei Korngrößenfraktionen 6 mm bis 20 mm, 2 mm bis 6 mm und 0.2 mm bis 2 mm aufgetrennt. Eine vierte Fraktion mit einem Durchmesser <0.2 mm wurde für die Äquilibrierung des Grundwassers mit dem Sediment, die vor den eigentlichen Versuchen erfolgte, eingesetzt. Für Diffusionsexperimente wurden größere, kompakte Stücke parallel zur natürlichen Schichtung (so weit durch Augenschein erkennbar) in Platten für die Diffusionskammern zugeschnitten.

Experimente zur Ermittlung der Abhängigkeit der Sorptionsdaten von der Korngröße zeigten bei Gesteinen aus den über- und unterlagernden Schichten der Schachanlage Konrad nur einen geringen Einfluß dieses Parameters, so daß hauptsächlich die mittlere Kornfraktion mit 2 mm bis 6 mm

Korndurchmesser für die Versuche verwendet wurde. Die Zulässigkeit dieser Vorgehensweise läßt sich anhand von BET-Messungen der Kornoberflächen belegen, deren Ergebnisse in Tab. 4 dargestellt sind.

Probe	Kornfraktion					
	0.2-2 mm		2-6 mm		6-20 mm	
	O(ber) (cm ² /g)	O(gem) (cm ² /g)	O(ber) (cm ² /g)	O(gem) (cm ² /g)	O(ber) (cm ² /g)	O(gem) (cm ² /g)
LP	622	80000	488	89000	157	55000
RP	464	135000	183	132000	66	154000
RhS	346	66000	221	53000	104	56000
Ce	354	143000	274	137000	103	127000
HE	231	180000	125	155000	71	173000
LE	200	158000	83	183000	56	159000
Ki	136	158000	56	157000	27	156000
Ek	142	79000	57	85000	23	38000
Fts	224	198000	103	199000	61	200000
Tk	335	329000	117	294000	65	256000

Tab. 4: Vergleich der aus Siebkurven berechneten Oberflächen O(ber) und der nach dem BET-Verfahren gemessenen Oberflächen O(gem) für die Proben der Kornfraktionen 0.2-2 mm, 2 - 6 mm und 6-20 mm. LP: "Lamarcki-Pläner", RP: "Rotpläner", RhS: "Rhotomagense-Schichten", Ce: Unter-/Mittelcenoman, HE: "Erzlager", Hangender Teil, LE: "Erzlager", Liegender Teil, Ki: Kimmeridge, Ek: "Erzkalk", Fts: "Fladentonstein", Tk: "Trümmerkalke".

Die Daten der Tab. 4 zeigen für die drei Kornfraktionen nur sehr geringe Unterschiede in den spezifischen Oberflächen, so daß von einer Beteiligung von inneren Oberflächen bei Sorptionsvorgängen ausgegangen werden kann. Der mehrere Größenordnungen umfassende Unterschied zwischen den gemessenen und den berechneten geometrischen Oberflächen weist ebenfalls in diese Richtung.

Da Sediment- und Grundwasserproben separat gewonnen wurden, wurde vor Beginn der Verteilungs-Experimente die bereits angesprochene Äquilibrierung von Gestein und Wasser durchgeführt. Dadurch wurde sichergestellt, daß der Zustand der Komponenten während der Versuche weitgehend erhalten blieb und eine Beeinflussung durch sich ändernde Versuchsrandbedingungen infolge von Reaktionen zwischen Gestein und Wasser auszuschließen war.

Bei der Äquilibrierung wurde im wesentlichen nach folgendem Schema verfahren:

1. Die Gesteine wurden mit den zugehörigen Grundwasserproben über einen Mindestzeitraum von 4 Wochen gelagert. Anschließend wurde durch ein 0,45 µm Filter filtriert (äquilibriertes Grundwasser) bzw. das Grundwasser abzentrifugiert.
2. Nach Zugabe des gelösten Nuklids bzw. im Fall der Aktiniden des Oxids oder Hydroxids und Überprüfung bzw. Einstellung des Ausgangs-pH-Werts wurden vorher äquilibrierte Grundwasserproben über mindestens 4 Wochen gelagert, um zu gewährleisten, daß eine stabile Lösung vorliegt. Die Filtration durch ein 0,45 µm Filter lieferte die äquilibrierte Nuklidlösung.
3. Die Gesteine wurden mit äquilibriertem Wasser über einen Zeitraum von mindestens 14 Tagen gelagert. Nach Abtrennung des Wassers konnten die Gesteinsproben für Sorptionsexperimente eingesetzt werden.

4. Die Sorptions- und Desorptionsexperimente wurden mit äquilibrierten Nuklid-Grundwasserlösungen (Pkt. 2) und Sedimentproben (Pkt. 3) durchgeführt.

4.2.4. Untersuchte Radionuklide

In die Untersuchungen wurden folgende Elemente einbezogen:

Technetium (Tc), Selen (Se), Zirkon (Zr), Niob (Nb), Jod (J), Cäsium (Cs), Strontium (Sr), Kohlenstoff (C), Uran (U), Radium (Ra), Thorium (Th), Blei (Pb), Nickel (Ni), Molybdän (Mo), Actinium (Ac), Protactinium (Pa), Americium (Am), Plutonium (Pu) und Neptunium (Np).

Die zwischen PTB, Experimentatoren und Modellrechnern gestimmte Auswahl umfaßt die radiologisch relevanten und vom Aktivitätsinhalt des Endlagers und Halbwertszeit in Betracht zu ziehende Aktivierungs- und Spaltprodukte, Aktiniden und Glieder von Zerfallsketten. Dabei wurden auch die Erfahrungen aus den Sorptionsuntersuchungen mit Material aus dem Deckgebirge des Salzstocks Gorleben und die Ergebnisse von Freisetzungsrechnungen aus einem Modellendlager /6/ berücksichtigt.

5. Sorptionsdaten für Ausbreitungsrechnungen

Das bei den Modellrechnungen zugrunde gelegte K_D -Konzept /3/ geht von einem thermodynamischen Gleichgewichtszustand und damit von einer Reversibilität der Radionuklidverteilung zwischen wäßriger und fester Phase aus.

Die K_D -Werte ergeben sich aus experimentell bestimmten Sorptions(R_S)- und Desorptionskoeffizienten unter Berücksichtigung der jeweils herrschenden Randbedingungen. Im Idealfall des vollständig reversiblen Gleichgewichts zwischen Sorptions- und Desorptionsvorgängen gilt:

$$R_S = R_D = K_D.$$

Bei der Ableitung von Sorptionsdaten für die Modellrechnungen zur Radionuklidausbreitung wurden die Sorptionskoeffizienten (R_S -Werte) der Schüttelversuche zugrunde gelegt. Mit dieser Technik wurden die umfangreichen Parametervariationen durchgeführt, die die Inter- und Extrapolation der gemessenen Sorptionsdaten auf die chemisch-physikalischen Randbedingungen im Grubengebäude und Deckgebirge ermöglichten.

Die in vielen Experimenten beobachteten hohen Desorptionskoeffizienten, die auf eine zumindestens teilweise Festlegung von Radionukliden hindeuten, wurden entsprechend dem in den Rechnungen zugrunde gelegten K_D -Konzept, das von vollständiger Reversibilität ausgeht, nicht berücksichtigt.

Die aus Säulenversuchen abgeleiteten sowie die aus den Diffusionsexperimenten berechneten /7/ K_D -Werte liegen in der gleichen Größenordnung wie die R_S -Werte der statischen Experimente.

5.1. Sorption im Grubengebäude

5.1.1. Randbedingungen

Bei den in Kap. 2 beschriebenen möglichen Ausbreitungspfaden wird angenommen, daß zu Beginn der Nachbetriebsphase die Resthohlräume im Grubengebäude wassergefüllt sind und die Mobilisierung der Radionuklide aus den Abfallgebinden einsetzt. Die aufgefüllten Resthohlräume werden als Modellvolumen behandelt, das die durch Auflösung der Abfallgebände freigesetzten Radionuklide und Abfallprodukt- bzw. Matrixbestandteile in homogener Verteilung enthält. Daraus leiten sich Randbedingungen ab, die bei der Festlegung der Sorptionsdaten zu berücksichtigen waren und daher nachfolgend zusammengefaßt werden.

Festlegung der für das Grubengebäude heranzuziehenden
Oxford-Proben

Die im Modellvolumen gelösten Radionuklide können vom Gestein der Auflockerungszone, dem eingebrachten Versatzmaterial und den Behälter- oder Matrixbestandteilen Eisen und Beton bzw. ihren Korrosionsprodukten sorbiert werden. Die Sorptionseigenschaften von Beton und Eisen oder ihrer Korrosionsprodukte wurden nicht untersucht, die Adsorption von Radionukliden an diesen Materialien wird daher vernachlässigt.

Einlagerungshorizont ist der eisenerzhaltige Korallenoolith, so daß die Sorptionseigenschaften von Auflockerungszone und Versatzmaterial durch die K_D -Werte dieser zum Oxford gehörenden Formation beschrieben werden können.

Der K_D -Wert des Korallenooliths wird entsprechend seiner lithologischen Ausbildung aus den experimentell bestimmten R_S -Werten der beiden Erzlagen (Proben "Erzlager", hangender und liegender Teil des Lagers) und des Oxford-Tonmergelsteins (Probe "Fladentonstein") nach folgender, von der BGR vorgeschlagenen Methode berechnet:

$$K_D = (R_1 + R_2) \cdot 0,25 + R_3 \cdot 0,5$$

K_D : Nuklidspezifischer Verteilungskoeffizient für das Grubengebäude

R_1 : Nuklidspezifischer Sorptionskoeffizient "Erzlager", hangender Teil

R_2 : Nuklidspezifischer Sorptionskoeffizient "Erzlager", liegender Teil

R_3 : Nuklidspezifischer Sorptionskoeffizient "Fladentonstein"

Zunächst werden die Meßwerte der beiden Erzproben arithmetisch gemittelt, da beide aus dem gleichen stratigraphischen Horizont stammen. Dieser Mittelwert und der Meßwert der Tonmergelsteinprobe werden dann gleichgewichtig gemittelt.

telt.

V/M-Verhältnis

Aus dem Modellvolumen ergibt sich unter Berücksichtigung der für eine Sorption insgesamt zur Verfügung stehenden Sorbensmasse, die sich aus der Masse des Versatzmaterials, der Zementmasse aus den Abfallgebinden und der Gesteinsmasse der Auflockerungszone zusammensetzt ein Verhältnis von Lösungsvolumen zu Sorbensmasse (V/M-Verhältnis) von $0,2 \text{ cm}^3/\text{g}$ /3/. Bei solch geringen, unter natürlichen Bedingungen aber häufiger zu beobachtenden V/M-Verhältnissen sind Sorptionsdaten in experimentellen Untersuchungen praktisch nicht mehr zu ermitteln. Daher mußte aus den experimentellen Untersuchungen der V/M-Abhängigkeit der Sorption auf V/M-Werte extrapoliert werden. Das resultiert für die R_S -Werte des Se ein Korrekturfaktor von 0,4 und für R_S -Werte des U ein Korrekturfaktor von 0,8. Von einer Zunahme der R_S -Werte mit abzunehmendem V/M-Verhältnis, wie sie beispielsweise beim Tc gemessen wurde, wurde kein Kredit genommen. In solchen Fällen wurde von den Meßwerten für das niedrigste, im Experiment eingestellte V/M-Verhältnis ausgegangen.

Beim Pa führt die V/M-Abhängigkeit nicht zu R_S -Werten kleiner 1000. Nb wird aufgrund chemischer Ähnlichkeiten analog dem Pa, Zr entsprechend dem Th betrachtet. Für C, einem unter dem Aspekt der Langzeitsicherheit weniger bedeutenden Element, wurde der Meßwert ohne Korrektur zugrunde gelegt.

pH-Wert

Durch den Kontakt der Grubenwässer mit den Beton- oder Zementbestandteilen aus Abfallgebinden kommt es zu einer Erhöhung des pH-Wertes im Modellvolumen. Experimente über einen Zeitraum von 24 Wochen an zementierten Abfallsimulanten mit Formationswasser aus der Schachtanlage Konrad und in Gegenwart von oolithischem Eisenerz zur Simulation des Versatzmaterials ergaben, daß bis zu einem Zementanteil von 50 % pH-Werte zwischen 11 und 12 im Grubengebäude zu erwarten sind. Bei diesen pH-Werten ist mit einer Ausfällung schwerlöslicher Hydroxide, insbesondere des Eisens zu rechnen. Da jedoch eine damit verbundene erhöhte Rückhaltung von Radionukliden konservativ vernachlässigt wird, war zu prüfen, inwieweit das Sorptionsverhalten der Radionuklide durch höhere pH-Werte beeinflusst wird.

Die Experimente zur pH-Abhängigkeit der Sorptions-/Desorptionskoeffizienten führten im allgemeinen nicht zu quantitativen Aussagen für die o. a. hohen pH-Werte, da sich bei Langzeitversuchen aufgrund der Pufferwirkung der Gesteine der für das jeweilige System charakteristische Gleichgewichts-pH wieder einstellt. Dagegen läßt sich aus den Versuchen, die von einem maximalen pH-Wert von 9 ausgingen, unter Berücksichtigung von Literaturdaten (z. B. in /8/) und chemischer Analogien folgender Einfluß der pH-Bedingungen im Grubengebäude auf die Sorptionsdaten radiologisch relevanter Radionuklide ableiten:

- Neptunium bildet in stark alkalischen Medien (z. B. 4 m NaOH) anionische Hydroxo-Komplexe. Der im Grubengebäude auftretende maximale pH-Wert von 12 entspricht dagegen nur einer 10^{-2} molaren Natron- oder Kalilauge, so daß nur in geringem Maße mit dem Vorhandensein von Hydroxo-Komplexen gerechnet werden muß. Darüber hinaus wurde von TUM bei Experimenten mit Zementprodukten und Versatzmaterial in Kontakt mit Konrad-Tiefenwässern festgestellt, daß die Erhöhung des pH-Wertes mit einer starken Ernie-

drigung des Redoxpotentials verbunden ist /9/. Diese sollte zu einer stärkeren Beteiligung von reduzierten Formen des Neptuniums und damit zu einer Erhöhung der Sorptionskoeffizienten führen. Dies wird durch bei diesen Randbedingungen durchgeführte Sorptionsversuche der TU München bestätigt /10/. Daher werden die gemessenen R_S -Werte des Np für die im Grubengebäude zu betrachtenden Gesteine wie oben beschrieben gemittelt.

- Unter reduzierenden Bedingungen ergaben sich für Technetium ebenfalls erhöhte R_S -Werte, so daß auch in diesem Fall vom Vorhandensein reduzierter Formen ausgegangen werden kann. Trotzdem wurden für Tc die niedrigen R_S -Werte der natürlichen Systeme übernommen.
- Das Sorptionsverhalten des Cäsiums in natürlichen Sediment-Grundwasser-Systemen wird im wesentlichen durch Ionenaustauschreaktionen bestimmt und ist daher nicht direkt vom pH-Wert abhängig. Für die vergleichsweise niedrigen R_S -Werte des Cs an den Formationen des Oxfords ist die hohe Na^+ -Ionenkonzentration der entsprechenden salinen Formationswässer verantwortlich. Demgegenüber spielt die mit der Erhöhung des pH-Wertes verbundene Erhöhung des Gehalts an Natriumionen nur eine untergeordnete Rolle.
- Für Jod und Strontium wird konservativ von einem R_S -Wert von 0 ausgegangen. Eine pH-Abhängigkeit wird daher nicht betrachtet.
- Die Sorption des Radiums wird nicht vom pH-Wert beeinflusst.
- Wie Sorptionsexperimente in salinem Hilswasser gezeigt haben, ist nur eine geringfügige pH-Abhängigkeit der R_S -Werte des Urans festzustellen. Auf jeden Fall wird ein pH-Effekt von der starken Konzentrationsabhängigkeit der Sorption des Urans überdeckt. Diese wurde bei der Ab-

leitung der Daten für Grubengebäude und Deckgebirge berücksichtigt.

- Für Thorium wurde in salinem Hilswasser eine leichte Zunahme des R_S -Wertes bei $\text{pH} = 9$ beobachtet. Es ist zu erwarten, daß sich an diesem Verhalten auch bei höheren pH -Werten wenig ändert, da die Chemie des Thoriums in alkalischem Medium durch Hydrolyse und Bildung schwerlöslicher, polynuklearer Oxydhydrate bestimmt wird. Ferner ist in Gegenwart von Komplexbildnern wie EDTA eine pH -Abhängigkeit der Th-Sorption von untergeordneter Bedeutung.
- Ähnliches gilt auch für die anderen hier betrachteten Aktinidenelemente Plutonium, Americium und Curium. Die Migrationsuntersuchungen von Pu und Am haben gezeigt, daß die Anwesenheit von Komplexbildnern wie EDTA eindeutig das Sorptionsverhalten dieser Elemente bestimmt. Der Einfluß des pH -Wertes ist dagegen zu vernachlässigen.
- Auch bei den 2-wertigen Ionen des Bleis und Nickels wird das Sorptionsverhalten wesentlich stärker durch Komplexbildner bestimmt als durch die Alkalität der Lösung.

Zusammenfassend ist festzustellen, daß der aus Modellannahmen abgeleitete hohe pH -Wert im Grubengebäude im Vergleich zu anderen chemischen Randbedingungen von geringerer Bedeutung für das Sorptionsverhalten der zu betrachtenden Radionuklide ist.

EDTA-Konzentration

In kerntechnischen Anlagen werden u. a. zu Dekontaminationszwecken Komplexbildner und waschaktive Substanzen eingesetzt, die somit auch als Bestandteil konditionierter Abfälle, insbesondere konditionierter Verdampferkonzentrate auftreten können. Da die Chemie eines Teils der einzulagernden Radionuklide stark von Komplexierungsreak-

tionen bestimmt wird, wurde der Einfluß der Komplexbildner Ethylendiamintetraacetat (EDTA), Zitronensäure und der waschaktiven Substanz Lineares Alkylbenzolsulfonat (LAS) auf die Sorptions-/Desorptionskoeffizienten untersucht.

Wie Tab. 5 am Beispiel des leicht komplexierbaren Plutoniums zeigt, übt der Chelatbildner EDTA den stärksten Einfluß auf das Sorptionsverhalten dieses Elements aus. Für die Modellrechnungen wurden daher für die Elemente Zr, Pu, Am, Cm, Pb, Ni und Ac die bei einer EDTA-Konzentration von 10^{-3} mol/l ermittelten R_S -Werte zugrunde gelegt. Diese maximale EDTA-Konzentration wurde konservativ aus Angaben der Kernkraftwerksbetreiber über den jährlichen Verbrauch von Dekontaminationsmitteln in DWR- und SWR-Anlagen abgeschätzt. Daraus errechnet sich mit der Annahme, daß 60 % der Kernkraftwerksbetriebsabfälle und 70 % der Abfälle aus Wiederaufarbeitungsanlagen, die als abdeckend für alle nicht aus KKW stammenden Abfälle anzusehen sind, EDTA enthalten und unter Zugrundelegung eines Resthohlraumvolumens von ca. 750 000 m³ die obengenannte EDTA-Konzentration im Grubengebäude.

Konzentration des Komplex- bildners (mol/l)	Sorptionskoeffizient R_S (cm ³ /g)					
	Citrat ¹		EDTA ¹			LAS ²
	10 Wo	31 Wo	10 Wo	31 Wo	50 Wo	6 Wo
10 ⁻³	3080	8760	458	810	2400	3290
10 ⁻⁴	5940	11900	2120	6490	22600	3220
10 ⁻⁵	6690	13300	3870	7650	27000	3670
10 ⁻⁶	4880	9920	5680	10800	27000	3620

Tab. 5: Sorptionsexperimente mit ²³⁸Pu, der Feinfraktion Kimmeridge und Str.670-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildner-Konzentrationen (V/M = 3.2; T = 23 ± 2°C); Filtration über 450 nm

1) Ausgangskonzentration ²³⁸Pu = 1.74 x 10⁻⁸ mol/l;

2) Ausgangskonzentration ²³⁸Pu = 9.05 x 10⁻⁹ mol/l.

Von den untersuchten Elementen zeigen Zr, Pu (für Am und Cm wird analoges Verhalten angenommen), Pb, Ni, Th und Ac eine z. T. deutliche Abhängigkeit der Sorption von der EDTA-Konzentration, während für die anderen Nuklide in den untersuchten Systemen praktisch kein Einfluß des EDTA-Gehalts festgestellt wurde. Bei der Festlegung der Sorptionsdaten für 10^{-3} mol/l EDTA wurde folgendermaßen vorgegangen:

- Für Zr wurden die in EDTA-haltigem Formationswasser des Korallenooliths gemessenen Sorptionskoeffizienten der beiden Erzlagen und der Oxford-Probe "Fladentonstein" wie beschrieben gemittelt.
- Für Th wurden die R_G -Werte des Zirkons übernommen. Diese Vorgehensweise ist aufgrund der chemischen Ähnlichkeit der beiden vierwertigen Elemente gerechtfertigt, was durch einen Vergleich mit Th-Meßdaten zum EDTA-Einfluß in salinen Grundwässern des Standortes Gorleben bestätigt wird.
- Als K_D -Wert der Nuklide Pu, Am und Cm wurde der im System Kimmeridge/Formationswasser des Korallenooliths der nach einer Kontaktzeit von 10 Wochen gemessene Sorptionskoeffizient des Pu übernommen. Komplexbildungsreaktionen in wäßrigen Medien werden hauptsächlich von den Eigenschaften der Lösung beeinflusst, so daß eine Übertragbarkeit von Meßwerten auf andere Formationen wie im Fall des Pu dann gegeben ist, wenn für die Versuche das gleiche Grundwasser verwendet wurde.

In diesem Zusammenhang soll noch darauf hingewiesen werden, daß beim Pu mit zunehmender Versuchsdauer eine Zunahme der R_G -Werte beobachtet wurde, wie die Werte der Tab. 6 zeigen. Dieser Effekt wurde aber bei der Zusammenstellung der K_D -Werte nicht berücksichtigt.

- Für Pb lagen keine Meßwerte zur EDTA-Abhängigkeit an Oxford-Gesteinen und salinen Wässern vor. Daher wurde aus den Daten für den der Oberkreide zuzuordnenden Turon und das zugehörige Formationswasser ein K_D -Wert für Blei von 0,6 abgeschätzt. Dieser Wert entspricht auch dem in einem salinen Grundwasser aus dem Raum Gorleben gemessenen Sorptionskoeffizienten für eine EDTA-Konzentration von 10^{-2} mol/l und ist somit als konservativ anzusehen.
- Im Fall des Ni lagen Meßwerte für die zum Oxford gehörende Probe "Trümmerkalke" vor, wobei das saline Formationswasser des Korallenooliths verwendet wurde. Diese gemessene EDTA-Abhängigkeit wurde auf die Gesteine des Grubengebäudes übertragen, wobei die für die Modellierung vorgegebenen K_D -Werte aus den R_S -Werten der natürlichen Systeme ohne EDTA ($R_S = 99$ für "Heersumer Schichten", $R_S = 3,9$ für z. B. "Oxford-Tonmergelstein") abgeleitet wurden. Dabei wurde das Verhältnis des adsorbierten Anteils im natürlichen System zum adsorbierten Anteil im EDTA-haltigen System angesetzt. Mit diesem Verhältnis wurde dann für die Gesteine des Grubengebäudes aus dem experimentell bestimmten adsorbierten Anteil ohne EDTA die adsorbierte Menge bei 10^{-3} mol/l EDTA bestimmt.
- Für Ac wurden die an Gesteinen der Oberkreide mit Formationswasser des Korallenooliths gemessenen R_S -Werte übernommen. Auf eine Korrektur der R_S -Werte für die natürlichen Systeme, wie sie beim Ni beschrieben wurde, wurde verzichtet, da dies zu höheren K_D -Werten geführt hätte.

Konzentration

Ein weiterer, die Freisetzung von Radionukliden aus dem Grubengebäude beeinflussender Parameter ist die sich im Modellvolumen einstellende Konzentration der chemischen Elemente, da R_S - und R_D -Werte mit zunehmender Konzentra-

tion abnehmen können.

Die maximalen Elementkonzentrationen wurden von der GSF im Rahmen der Modellierung der Vorgänge im Grubengebäude berechnet /3/. Die Werte wurden für eine Durchströmungsrate des Grubengebäudes von $1000 \text{ m}^3/\text{a}$ und einem Lösungsvolumen von $739\,000 \text{ m}^3$ ermittelt.

Bei den untersuchten Elementen ist nur für das Uran eine Korrektur für die hohen Konzentrationen im Grubengebäude erforderlich. Dabei wird die System Oxford-Tonmergestein/Korallenoolith-Wasser experimentell bestimmte Abhängigkeit des Uran- R_G -Wertes von der Elementkonzentration zugrunde gelegt.

Ein geringer Konzentrationseffekt beim Ni wird wegen der dominierenden EDTA-Abhängigkeit der Sorptionsdaten dieses Elements nicht betrachtet.

5.1.2. Sorptionsdaten

Löslichkeiten

In Tab. 6 sind die von der GSF berechneten maximalen Elementkonzentrationen im Grubengebäude den von den Experimentatoren abgeleiteten Löslichkeitsgrenzen für die jeweiligen Radionuklide gegenübergestellt.

Die Werte wurden aus direkten Bestimmungen von Löslichkeiten in Konrad-Wässern (Np, Pu, Am) übernommen bzw. aus den Sorptionsexperimenten unter Heranziehung von Literaturdaten abgeleitet (übrige Elemente).

Element	Element-Konzentration (Mol/l)	Löslichkeitsgrenze (Mol/l)	Element	Element-Konzentration (Mol/l)	Löslichkeitsgrenze (Mol/l)
Tc	5,7 E - 7	7 E - 4	Pu	5,3 E - 6	2 E - 7
Se	8,4 E - 9	1 E - 2	Am/Cm	3,1 E - 8	7 E - 7
Zr	8,0 E - 7	5 E - 7	Pb	2,3 E - 8	1 E - 4
Nb	3,9 E - 11	5 E - 7	U	3,1 E - 3	1 E - 4
Cs	1,2 E - 6	1 E - 2	Ra	2,3 E - 11	1 E - 3
J	5,3 E - 5	E - 2/E - 4	Ni	3,1 E - 4	1 E - 3
C	4,8 E - 8	1 E - 4	Th	3,3 E - 4	1 E - 7
Sr	2,6 E - 7	1 E - 2	Pa	5,7 E - 11	1 E - 5
Np	3,9 E - 8	3 E - 5	Ac	3,7 E - 14	1 E - 5

Tab. 6: Elementkonzentrationen im Grubengebäude und Löslichkeitsgrenzen

Die angegebenen Löslichkeitsgrenzen berücksichtigen nicht die im pH-Bereich 10-12 stattfindende Ausfällung schwerlöslicher Hydroxide und liegen somit auf der sicheren Seite. In diesem Zusammenhang ist auch darauf hinzuweisen, daß in den von der GSF berechneten maximalen Elementkonzentrationen in den Formationswässern enthaltene als Träger wirkende inaktive Isotope der Formationswässer nicht berücksichtigt wurden, die ebenfalls zu einer Konzentrationsverringerng von Radionukliden durch Fällungsreaktionen beitragen können.

Die in Tab. 6 beim Jod aufgeführte Löslichkeit von 10^{-4} mol/l wird für die Löslichkeit von Silberjodid angesetzt. Damit werden Ergebnisse der TH Darmstadt berücksichtigt /11/, die eine erhöhte Löslichkeit von AgJ infolge einer Bildung von löslichen AgJ-Chloro-Komplexen und eine radiolytische Bildung von Jod aus Silberjodid in salinen Medien

beobachteten.

Die Daten der Tab. 6 zeigen, daß nur bei den Elementen Uran und Thorium Löslichkeitsgrenzen erreicht werden können.

K_D-Werte

In Tab. 7 sind die in den Modellrechnungen für das Grubengebäude verwendeten K_D-Werte zusammengefaßt. Diese wurden für die Elemente Se, Pu, Am, Cm, Pb, U, Ni, Th und Ac - wie in den vorhergehenden Kapiteln beschrieben - aus experimentell bestimmten Abhängigkeiten des Sorptionsverhaltens von dem Volumen/Masse-Verhältnis und der EDTA- bzw. Elementkonzentration abgeleitet wurde.

Element	K _D -Wert (ml/g)	Element	K _D -Wert (ml/g)
Tc	0,4	Pu	500
Se	0,1	Am/Cm	500
Zr	200	Pb	0,6
Nb	1000	U	8
Cs	30	Ra	1,7
J	0	Ni	0,9
C	2	Th	200
Sr	0	Pa	1000
Np	70	Ac	30

Tab. 7: K_D-Werte für das Grubengebäude (EDTA-Konzentration: 10⁻³ mol/l, pH ≤ 12, V/M = 0,2)

Die z. T. relativ niedrigen bzw. erniedrigten K_D -Werte für die Elemente Zr, Pu, Am, Pb, Ni, Th und Ac zeigen deutlich den oben diskutierten starken Einfluß der hohen EDTA-Konzentration auf die Sorption dieser Elemente, während sich in dem niedrigen K_D -Wert des Urans die gemessene starke Konzentrationsabhängigkeit der Sorption dieses Elements ausdrückt.

5.2. Sorption im Malm (Oxford und Kimmeridge)

Nachfolgend werden die Sorptionsdaten behandelt, die in den Modellrechnungen für die in Kap. 2.2 beschriebenen möglichen Ausbreitungspfade über Oxford und Kimmeridge verwendet wurden.

5.2.1. Randbedingungen für das Oxford

Da nach Angaben der BGR das Oxford außerhalb des Endlagerbereichs hauptsächlich durch Kalk- und Tonmergelstein repräsentiert wird, wurde der K_D -Wert für das Oxford aus den Sorptionskoeffizienten der entsprechenden Oxford-Proben "Erzkalk" und "(Fladentonstein)" nach folgender Methode gemittelt:

$$K_D = R_1 \cdot 1/3 + R_2 \cdot 2/3$$

K_D : Nuklidspezifischer Verteilungskoeffizient für das Oxford

R_1 : Nuklidspezifischer Sorptionskoeffizient "Erzkalk"

R_2 : Nuklidspezifischer Sorptionskoeffizient "Fladentonstein"

1/3 bzw. 2/3: Wichtungsfaktoren entsprechend der Mächtigkeit der Schichten

Die Berechnung der K_D -Werte erfolgte unter den Annahmen

1. gleicher Randbedingungen wie im Grubengebäude, d. h. keine Änderung von pH-Wert, EDTA- und Elementkonzentrationen

trationen

2. für Verdünnungen in bezug auf pH-Wert, Element- und EDTA-Konzentration um die Faktoren 10 und 100.

Mit diesen, von der GSF aufgrund der Modellierung der Grundwasserbewegung vorgegebenen Verdünnungsfaktoren wird eine Beimischung nicht kontaminierter Tiefenwässer längs des Migrationspfades berücksichtigt. Für das V/M-Verhältnis wurde analog dem Grubengebäude ein Wert von 0,2 zugrunde gelegt.

5.2.2. Sorptionsdaten für das Oxford

In Tab. 8 sind die K_D -Werte des Oxfords für die o. g. Randbedingungen zusammengefaßt. Bei den K_D -Werten der Spalte "keine Verdünnung" wurde die gleiche Element- und EDTA-Konzentration sowie der gleiche pH-Wert wie im Grubengebäude zugrunde gelegt, während in den Spalten "Verdünnung Faktor 10" bzw. "Verdünnung Faktor 100" von einer entsprechenden Abnahme dieser Konzentrationen ausgegangen wurde. Diese Randbedingungen beeinflussen die K_D -Werte der Elemente Zr, Pu, Am, Cm, Pb, Ni, Th, Ac (EDTA-Abhängigkeit der Sorption) und U (Konzentrationsabhängigkeit der Sorption).

Für Zr lagen Meßwerte für einen EDTA-Gehalt von 10^{-3} mol/l vor, diese werden auch für den um den Faktor 10 niedrigeren EDTA-Gehalt angesetzt, während bei einem EDTA-Gehalt von 10^{-5} mol/l (Verdünnungsfaktor 100) der EDTA-Einfluß auf die Sorption des Zr zu vernachlässigen ist. Wie schon bei den Sorptionsdaten für das Grubengebäude näher erläutert, wurden die Meßwerte des Zr für Th übernommen.

Die in Tab. 8 aufgeführten K_D -Werte für Pb und Ac wurden, wie in Kap. 5.1.1. beschrieben, aus experimentellen Daten zur EDTA-Abhängigkeit der Sorption dieser Elemente abgeleitet.

Für Ni liegen Meßwerte zur EDTA-Abhängigkeit für die Oxford-Probe "Trümmerkalke" und das saline Formationswasser des Korallenooliths vor. Diese Abhängigkeit wurde auf die hier zu betrachtenden Oxford-Gesteine übertragen.

Die Konzentrationsabhängigkeit der K_D -Werte des Urans ergibt sich aus Meßwerten für das System Oxford-Tonmergestein/Formationswasser Korallenoolith.

Element	K_D -Werte (ml/g)			Element	K_D -Werte (ml/g)		
	Verdünnung				Verdünnung		
	keine	Faktor 10	Faktor 100		keine	Faktor 10	Faktor 100
Tc	0,7	0,7	0,7	Pu	500	1000	1000
Se	0,1	0,1	0,1	Am/Cm	500	1000	1000
Zr	70	70	1000	Pb	0,6	6	40
Nb	1000	1000	1000	U	1,8	2	3
Cs	30	30	30	Ra	1,6	1,6	1,6
J	0	0	0	Ni	0,7	2	3
C	0,2	0,2	0,2	Th	70	70	1000
Sr	0	0	0	Pa	1000	1000	1000
Np	30	30	30	Ac	30	70	200

Tab. 8: K_D -Werte für das Oxford.

5.2.3. Randbedingungen für das Kimmeridge

Die untersuchten Proben des Kimmeridge stammen einmal aus dem Grubengebäude der Schachanlage, zum anderen aus der Tiefbohrung Konrad 101. In beiden Fällen wurden die Untersuchungen mit salinem Formationswasser aus dem Korallenoolith durchgeführt. Zur Festlegung der K_D -Werte für diesen Horizont wurde daher über die R_S -Werte der beiden Proben gemittelt. Die Sorptionsdaten von Tc, Zr, Nb, Sr und Pa wurden nur an Proben aus der Tiefbohrung untersucht. Für die Modellrechnungen wurden Daten bereitgestellt, die für die Randbedingungen des Grubengebäudes sowie für das Nebengestein unter Berücksichtigung von Verdünnungen um den Faktor 10 bzw. 100 gelten.

5.2.4. Sorptionsdaten für das Kimmeridge

Tab. 9 faßt die entsprechend der o. g. Randbedingungen abgeleiteten K_D -Werte zusammen.

Für Pu und daraus abgeleitet für Am und Cm führt die gemessene EDTA-Abhängigkeit nicht zu K_D -Werten unter 1000.

Für Th wurden entsprechend der bereits beschriebenen Vorgehensweise die Werte des Zr übernommen.

Für die EDTA-Abhängigkeit der Sorption von Pb in salinen Medien wurden die K_D -Werte des Oxfords herangezogen. Die K_D -Werte des Ac und des U wurden ebenfalls auf der Basis der Oxford-Daten abgeleitet.

Element	K_D -Werte (ml/g) Verdünnung			Element	K_D -Werte (ml/g) Verdünnung		
	keine	Faktor 10	Faktor 100		keine	Faktor 10	Faktor 100
Tc	0,3	0,3	0,3	Pu	1000	1000	1000
Se	0,1	0,1	0,1	Am/Cm	1000	1000	1000
Zr	50	50	1000	Pb	0,6	6	40
Nb	1000	1000	1000	U	1,6	1,9	2,6
Cs	20	20	20	Ra	4	4	4
J	0	0	0	Ni	0,6	1,8	3
C	9	9	9	Th	50	50	750
Sr	0	0	0	Pa	1000	1000	1000
Np	30	30	30	Ac	20	50	60

Tab. 9: K_D -Werte für das Kimmeridge

5.3. Sorption im Dogger

5.3.1. Sorptionsdaten für den "Cornbrash"

Für den zur stratigraphischen Einheit "Dogger" gehörenden "Cornbrash" waren entsprechend den Vorgaben der GSF nur Sorptionsdaten für einen Verdünnungsfaktor 100 für pH-Wert, Element- und EDTA-Konzentration des Grubengebäudes bereitzustellen. Für die Elemente Tc, Se, Cs, J, C, Np, Th und Pu wurden die an Cornbrash-Proben aus der Tiefbohrung Konrad 101 gemessenen R_S -Werte zugrunde gelegt, da diese gegenüber den Cornbrash-Proben aus dem Grubengebäude weniger Beeinflußt durch Oxidations- und Verwitterungsvorgänge sein sollten.

In der Tab. 10 sind die K_D -Werte für den "Cornbrash" zusammengefaßt. EDTA- und Radionuklidgehalt sowie der pH-Wert sind gegenüber den Verhältnissen im Grubengebäude um den Faktor 100 geringer und beeinflussen daher die Sorptionsdaten der Elemente nur noch wenig. Für Blei wurde der K_D -Wert der Formation Kimmeridge übernommen. Der K_D -Wert des Ni wurde aus den experimentellen Daten für die Dogger-Probe Oberbajocium abgeleitet. Der K_D -Wert des Urans berücksichtigt die Konzentrationsabhängigkeit der Sorption dieses Elements.

Element	K_D -Wert (ml/g)	Element	K_D -Wert (ml/g)
Tc	0,4	Pu	1000
Se	0,2	Am/Cm	1000
Zr	1000	Pb	40
Nb	1000	U	3
Cs	16	Ra	1,5
J	0	Ni	3
C	8	Th	900
Sr	0	Pa	700
Np	11	Ac	250

Tab. 10: K_D -Werte für den Cornbrash für eine Verdünnung von pH, EDTA- und Radionuklidkonzentration gegenüber den Verhältnissen im Grubengebäude um den Faktor 100.

5.3.2. Sorptionsdaten für das Bajocium

Für das ebenfalls zum Dogger gehörende Bajocium, das im wesentlichen durch Tonsteine gekennzeichnet ist, waren K_D -Werte für pH-Wert, EDTA- und Radionuklidkonzentration wie im Grubengebäude sowie für Verdünnungen um den Faktor 10 bzw. 100 bereitzustellen.

Für die Nuklide Tc, Zr, Nb und Sr wurden in Abstimmung mit der BGR die R_S -Werte der zum Oxford gehörenden Probe "Fladentonstein" übertragen. Die Zulässigkeit dieser Vorgehensweise wird durch die gute Übereinstimmung der unter natürlichen Bedingungen gemessenen Sorptionsdaten des Cs, Np und U für diese beiden Gesteine gestützt.

Die K_D -Werte des Zr, Th, Pb, Ni und Ac für die unterschiedlichen EDTA-Konzentrationen wurden ebenfalls von der Probe "Oxford-Tonmergelstein" übernommen. Auch die konzentrationsabhängigen K_D -Werte des U wurden ausgehend von den Werten der Oxford-Probe abgeschätzt.

In Tab. 11 sind die K_D -Werte für das Bajocium zusammengestellt.

Element	K_D -Werte (ml/g) Verdünnung			Element	K_D -Werte (ml/g) Verdünnung		
	keine	Faktor 10	Faktor 100		keine	Faktor 10	Faktor 100
Tc	0,5	0,5	0,5	Pu	700	1000	1000
Se	0,2	0,2	0,2	Am/Cm	700	1000	1000
Zr	80	80	1000	Pb	0,6	6	40
Nb	1000	1000	1000	U	2	2	3
Cs	40	40	40	Ra	2	2	2
J	0,1	0,1	0,1	Ni	0,7	2	3
C	12	12	12	Th	80	80	1000
Sr	0	0	0	Pa	1000	1000	1000
Np	50	50	50	Ac	30	70	400

Tab. 11: K_D -Werte für das Bajocium

5.4. Sorption in den überlagernden Schichten

Entsprechend den von GSF modellierten Migrationspfaden sind hier folgende stratigraphischen Einheiten zu betrachten:

- Unterkreide, charakterisiert durch zwei Proben aus dem Alb und einer Probe aus dem Hauterive
- Unterkreide, Hilssandstein
- Oberkreide, Cenoman, in Kontakt mit salinem Wasser
- Oberkreide, Turon, in Kontakt mit Süßwasser

Analog wie bei den bisher behandelten Formationen waren Sorptionsdaten sowohl für pH-Wert, EDTA- und Elementkonzentration wie für das Grubengebäude als auch für eine Verdünnung um den Faktor 10 bzw. 100 bereitzustellen.

5.4.1. Sorptionsdaten für die Unterkreide

Tab. 12 zeigt die K_D -Werte, die - wie mit BGR abgestimmt - durch Mittelung der R_S -Werte für die Proben aus dem Alb und dem Hauterive erhalten wurden. Für Tc und Pa wurden die Werte des Oxford-Tonmergelsteins übernommen.

Element	K _D -Werte (ml/g)			Element	K _D -Werte (ml/g)		
	Verdünnung				Verdünnung		
	keine	Faktor 10	Faktor 100		keine	Faktor 10	Faktor 100
Tc	0,5	0,5	0,5	Pu	500	1000	1000
Se	0,5	0,5	0,5	Am/Cm	500	1000	1000
Zr	80	80	1000	Pb	0,6	6	40
Nb	1000	1000	1000	U	12	15	20
Cs	50	50	50	Ra	3	3	3
J	0	0	0	Ni	1,0	6	20
C	20	20	20	Th	80	80	1000
Sr	0,2	0,2	0,2	Pa	1000	1000	1000
Np	60	60	60	Ac	40	160	700

Tab. 12: K_D-Werte für die Unterkreide

Für Zr und Th wurden die K_D-Werte des Zr für den Oxford-Tonmergelstein übernommen. Die K_D-Werte des Ni bei Anwesenheit von EDTA wurden aus den Meßwerten für die Oxford-Probe "Trümmerkalke" in Formationswasser des Korallenooliths abgeleitet.

Beim U wird die Konzentrationsabhängigkeit aus den Meßwerten für die Unterkreideprobe "Alb" abgeleitet.

Unterkreide-Hilssandstein

In Tab. 13 sind die K_D -Werte für den Hilssandstein, der als potentieller Wasserleiter gesondert betrachtet wird, zusammengefaßt.

Für Zr, Th, Pb, Ni und U wurden die K_D -Werte wie für die Formation "Unterkreide" beschrieben ermittelt.

Element	K_D -Werte (ml/g)			Element	K_D -Werte (ml/g)		
	Verdünnung				Verdünnung		
	keine	Faktor 10	Faktor 100		keine	Faktor 10	Faktor 100
Tc	0,3	0,3	0,3	Pu	200	700	1000
Se	0,4	0,4	0,4	Am/Cm	200	700	1000
Zr	80	80	200	Pb	0,6	6	40
Nb	1000	1000	1000	U	1,2	1,3	1,4
Cs	10	10	10	Ra	1,1	1,1	1,1
J	0	0	0	Ni	0,5	1,3	1,7
C	0,9	0,9	0,9	Th	80	80	200
Sr	0	0	0	Pa	1000	1000	1000
Np	3	3	3	Ac	20	50	50

Tab. 13: K_D -Werte für den Hilssandstein

Die K_D -Werte des Ac in Anwesenheit von EDTA wurden aus den beim Kimmeridge angegebenen Werten extrapoliert. Die für Nb, Sr und Pa aufgeführten Werte wurden auf der Basis der Meßwerte für die Oxford-Probe "Fladentonstein" abgeschätzt.

5.4.2. Sorptionsdaten für die OberkreideOberkreide, Cenoman

Die in Tab. 14 zusammengefaßten K_D -Werte für dieses Sediment basieren auf Sorptionsuntersuchungen mit Probenmaterial aus der Tiefbohrung Konrad 101, die - wie in Kap. 4.1 angesprochen - mit einem schwach salinen Modellwasser durchgeführt wurden. Zur Absicherung bzw. in Fällen, in denen keine Meßwerte vorlagen, wurden die R_S -Werte von obertägig gewonnenen Proben herangezogen, die mit Süß- und stark salzhaltigem Wasser (Brunnenwasser "Söhlde", Formationswasser des Korallenooliths aus der Strecke 670) erhalten worden waren.

In Tab. 14 sind die Daten zu \dots ammengestellt.

Für Jod wurden die gemessenen R_S -Werte ohne Korrektur übernommen, da die Abhängigkeit des Sorptionskoeffizienten z. B. vom Volumen/Masse-Verhältnis für dieses Element praktisch keine Bedeutung mehr hat.

Element	K_D -Werte (ml/g)			Element	K_D -Werte (ml/g)		
	Verdünnung				Verdünnung		
	keine	Faktor 10	Faktor 100		keine	Faktor 10	Faktor 100
Tc	0	0	0	Pu	1000	1000	1000
Se	0,4	0,4	0,4	Am/Cm	1000	1000	1000
Zr	1000	1000	1000	Pb	0,9	1,6	12
Nb	1000	1000	1000	U	1,3	2	6
Cs	600	600	600	Ra	400	400	400
J	9	9	9	Ni	1,5	5	25
C	2	2	2	Th	150	200	200
Sr	30	30	30	Pa	1000	1000	1000
Np	500	500	500	Ac	190	400	600

Tab. 14: K_D -Werte für das Cenoman (Oberkreide)

Im Fall des Sr wurde der aus Säulenversuchen berechnete K_D -Wert übernommen. Diese Vorgehensweise wird durch die gute Übereinstimmung der Sorptionsdaten des Cs aus Säulen- und Batch-Versuchen gestützt.

Die EDTA-Abhängigkeit der Sorption von Pb, Ni, Pu, Ac und Th wurde aus den Meßwerten für die Oberkreide-Probe "Turon" abgeleitet.

Für Uran wurden die experimentell bestimmten R_S -Werte, für die Oberkreide-Probe "Turon" übernommen.

Oberkreide, Turon

In Tab. 15 sind die für die Modellrechnungen bereitgestellten K_D -Werte des Turons zusammengefaßt. Die Festlegung der Daten erfolgte wie oben für "Oberkreide, Cenoman" beschrieben.

Element	K_D -Werte (ml/g)			Element	K_D -Werte (ml/g)		
	Verdünnung				Verdünnung		
	keine	Faktor 10	Faktor 100		keine	Faktor 10	Faktor 100
Tc	0	0	0	Pu	1000	1000	1000
Se	0,5	0,5	0,5	Am/Cm	1000	1000	1000
Zr	1000	1000	1000	Pb	0,9	1,6	12
Nb	1000	1000	1000	U	1,3	2,4	6
Cs	600	600	600	Ra	110	110	110
J	2	2	2	Ni	1,5	5	20
C	5	5	5	Th	300	600	600
Sr	3	3	3	Pa	1000	1000	1000
Np	400	400	400	Ac	140	200	300

Tab. 15: K_D -Werte für das Turon (Oberkreide)

6. Zusammenfassung

In einem umfangreichen experimentellen Programm wurde unter möglichst realistischen Bedingungen die Verteilung relevanter Radionuklide zwischen Sedimentgesteinen und den entsprechenden Wässern aus dem Deckgebirge des geplanten Endlagers Schachanlage Konrad bestimmt. Sorptionsexperimente mit einer systematischen Variation der chemisch-physikalischen Randbedingungen führten zur Identifizierung relevanter Parameter und zur Quantifizierung ihres Einflusses auf das Sorptionsverhalten der Radionuklide. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen ermöglichen eine realistische Charakterisierung des Rückhaltevermögens der Gesteine aus den über- und unterlagernden Schichten für Radionuklide.

Die entsprechend den möglichen Ausbreitungspfaden abgeleiteten Sorptionsdaten wurden als Eingangsdaten für die rechnerische Modellierung des Transports von Radionukliden im Rahmen der Sicherheitsanalyse für die Nachbetriebsphase des geplanten Endlagers Konrad verwendet.

7. Literaturverzeichnis

- /1/ Bundesminister des Innern,
Sicherheitskriterien für die Endlagerung radioaktiver
Abfälle in einem Bergwerk. Bundesanzeiger, Jahrgang
35, Nr. 2, Januar 1983 (PTB-Info-Blatt Nr. 2/83, 8.
März 1983).
- /2/ Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung (PSE),
Modellrechnungen zur Ausbreitung von Radionukliden im
Deckgebirge, Abschlußbericht, Fachband 18, TU Berlin,
1985.
- /3/ Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung mbH
München, Institut für Tieflagerung,
Langzeitsicherheitsanalyse des Endlagers Konrad: Ra-
dionuklidenausbreitung in der Nachbetriebsphase,
LV-Nr. 2242.03, November 1986.
- /4/ R. Brdicka, Grundlagen der physikalischen Chemie, VEB
Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1968.
- /5/ E. Warnecke, G. Tittel, P. Brennecke, G. Stier-Fried-
land, A. Hollmann,
Experimental investigations of possible radionuclide
releases from the planned repositories in the Gorleben
salt dome and Konrad iron ore mine as part of the long
term safety assessment.
Siting, design and construction of underground
repositories for radioactive wastes. Proceedings of an
International Symposium, Hannover, 3. - 7. March 1986;
Wien, 1986, p. 401 - 416.
- /6/ Projekt Sicherheitsstudien Entsorgung (PSE), Ent-
wicklung eines sicherheitsanalytischen Instrumenta-
riums für das geologische Endlager für radioaktive
Abfälle in einem Salzstock. Zusammenfassender Ab-
schlußbericht, Kapitel 4; HMI Berlin, 1985.

- /7/ H. Meier et al., Zur Ableitung von K_D -Werten aus Diffusions-Versuchen.
PTB-SE-14, J. I. Kim, E. Warnecke (Herausgeber): Chemie und Migrationsverhalten Aktinoide und Spaltprodukte in natürlichen aquatischen Systemen (Vorträge des 66. PTB-Seminars), S. 218 - 227, Oktober 1986.
- /8/ Gmelin's Handbuch der anorganischen Chemie, 8. Auflage ab 1924,
Tc, Supplement Volume 2, 1983
U, Ergänzungsband C 2, 1978
Th, Ergänzungsbände C 1, 1978 und C 2, 1976
Transurane, Band 20, Teil D 1 und D 2, 1975.
- /9/ J. I. Kim et al., Redoxpotential und pH-Bestimmungen an Auslauglösungen zementierter Abfallprodukte im geologischen Milieu Konrad,
Technische Universität München, Bericht RCM 01986.
- /10/ Nuklidmigration (Np, Pu, Tc) im geologischen Milieu Konrad (Grubengebäude),
Technische Universität München, Bericht RCM 000387.
- /11/ P. Coetzee et al., Solubility of AgJ in Saturated NaCl Solution, Radiochimica Acta 37, S. 159, 1984.
K. H. Lieser et. al., Liberation of Iodine from AgJ during Radiolysis, Radiochimica Acta 38, S. 33, 1985.