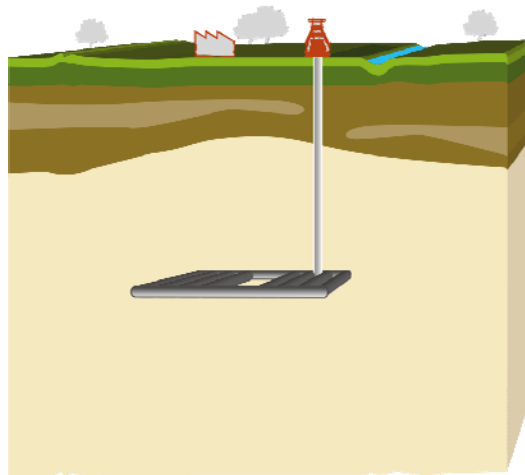


Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle in Deutschland

Anhang Natürliche Analoga

Die Rolle Natürlicher Analoga bei der Sicherheitsbewertung von Endlagern



30.09.2008

Bearbeiter:

Brasser, T.

Bletz, B.

Noseck, U.

Schmidt, G.

**Braunschweig / Darmstadt
September 2008**

**Anhang zu GRS-247
ISBN 978-3-939355-22-9**

Das diesem Bericht zugrunde liegende FE-Vorhaben wurde im Auftrag des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie unter den Kennzeichen 02E9783 und 02E9793 durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt bei den Autoren.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Aufgaben, Nutzen und Grenzen von Natürlichen Analoga	5
2.1	Übersicht	5
2.2	Anwendungsgebiete für Natürliche Analoga	9
2.3	Bisherige Verwendung von Analogastudien in Langzeitsicherheitsanalysen und -nachweisen	14
2.4	Grenzen natürlicher Analoga	18
3	Stabilität und Isolationspotenzial geologischer Formationen über lange Zeiträume.....	21
3.1	Salzgestein.....	21
3.2	Tongestein	28
3.3	Festgestein.....	39
4	Belastungsgrenzen / Selbstheilungseffekte	45
4.1	Salzgestein.....	45
4.2	Tongestein	51
4.3	Festgestein.....	56
5	Materialverhalten.....	59
5.1	Glas	59
5.2	Uranmatrix.....	64
5.3	Metalle.....	66
5.4	Zement	71
5.5	Sonstige	72
6	Literatur.....	75
7	Weiterführende Literatur	87

1 Einleitung

Aufgrund der Langlebigkeit vieler Radionuklide in den radioaktiven Abfällen sind Langzeitsicherheitsnachweise für Endlager über außergewöhnlich lange Zeiträume - bis zu Millionen von Jahren - zu führen. Derartig lange Zeiträume lassen sich nicht in Labor-experimenten nachbilden. Die Konsequenzen von Prozessen, die über so lange Zeiträume stattgefunden haben, können aber in der Natur beobachtet werden. Wenn die in solchen natürlichen Systemen abgelaufenen Prozesse denen in einem Endlagersystem zu erwartenden ähnlich sind, spricht man von so genannten Natürlichen Analoga.

Entsprechend wurde vom deutschen Expertenkreis des Projektträgers Forschungszentrum Karlsruhe, Bereich Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE) folgende Definition formuliert: *„Natürliche Analoga sind Systeme in der Natur, in denen physikalische und chemische Prozesse ablaufen, wie sie ähnlich in Endlagersystemen (Nahfeld, Fernfeld, Biosphäre) in geologischen oder historischen Zeiträumen zu erwarten sind.“* Dieser Begriff wurde in dem Europäischen Projekt „Network to review natural analogue studies and their applications to repository safety assessment and public communication – NAnet“ /MIL 06/ noch etwas weiter gefasst: *„Analogastudien sind Untersuchungen von natürlichen, anthropogenen, archäologischen oder industriellen Systemen, die einen gewissen Grad an Ähnlichkeit mit einem Endlager für radioaktive Abfälle oder seiner Umgebung haben.“* D. h., es werden heute vermehrt auch Systeme herangezogen, die erst wenige Jahrzehnte bis wenige Jahrtausende alt sind. Da viele dieser Systeme nicht natürlichen Ursprungs sind, wird heute vermehrt der Begriff „Analog“ als Oberbegriff verwendet.

Allerdings entspricht kein Natürliches Analogon in allen Aspekten exakt einem Endlager, es gibt also keine ein gesamtes Endlagersystem abdeckenden Analoga. Trotzdem gibt es viele Analoga, die große Ähnlichkeiten mit einzelnen Komponenten eines Endlagersystems oder mit Prozessen, die dessen Langzeitentwicklung erheblich bestimmen, aufweisen. Die Untersuchung geeigneter analoger Systeme kann deshalb dazu beitragen, das Verständnis von Prozessen, speziell solcher, die über lange Zeiträume in komplexen natürlichen Systemen ablaufen, zu erhöhen und damit auch zur Verbesserung bzw. Weiterentwicklung von Modellvorstellungen für Langzeitsicherheitsanalysen beitragen. Nachfolgend werden zuerst die möglichen Anwendungsgebiete für Natürliche Analoga wie auch deren Grenzen aufgezeigt. In den darauf folgenden Kapiteln werden Beispiele von Analoga zu wichtigen Eigenschaften von typischen Endlagersystemen und Prozessen vorgestellt.

2 Aufgaben, Nutzen und Grenzen von Natürlichen Analoga

2.1 Übersicht

In den Nachweis der Langzeitsicherheit von Endlagern für radioaktive Abfälle (auch von Untertagedeponien für chemisch toxische Abfälle) gehen begründete Vorhersagen über die Langzeitentwicklung verschiedener Barrieren ein, von denen zur Einhaltung der Schutzziele Kredit genommen wird. Dazu gehören beispielsweise:

- Die geologische Langzeitentwicklung des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs,
- das Langzeitverhalten geotechnischer Verschlüsse,
- die Haltbarkeit von Gebinden und deren Werkstoffen,
- die Wirksamkeit hydraulischer Stauschichten sowie
- die Rückhaltung von Radionukliden in Gesteinsschichten.

Zum Nachweis der Wirksamkeit dieser Barrieren, von einzelnen Komponenten bzw. zur Modellierung des Gesamtsystems Endlager werden Rechenprogramme eingesetzt, in denen alle in einem Endlagersystem stattfindenden relevanten Prozesse implementiert sein müssen. Die Modelle wie auch die Parameter werden in der Regel aus Labor- bzw. Feldexperimenten abgeleitet.

Intentionen bei der Befassung mit Natürlichen Analoga

Die Relevanz von Natürlichen Analoga für die Endlagerung radioaktiver Abfälle ergibt sich hauptsächlich aufgrund der langen Zeiträume, die in Langzeitsicherheitsnachweisen für ein Endlager betrachtet werden müssen. Zeiträume von 1 Million Jahren liegen außerhalb der experimentellen Zugänglichkeit und auch außerhalb der menschlichen Erfahrung.

Natürliche Analoga können insbesondere auf Grundlage eines mit ihnen entwickelten Verständnisses von Entwicklungen in der historischen und geologischen Vergangenheit Hinweise auf zukünftige Entwicklungen eines Endlagersystems bzw. von Teilen ei-

nes solchen Systems geben („Die Vergangenheit ist der Schlüssel für die Zukunft“¹). Die aktuellste Übersichtsarbeit zur Bedeutung und Anwendung von Natürlichen Analoga bietet /MIL 06/, auf die im Folgenden in starkem Maße Bezug genommen wird, ohne dass in jedem Einzelfall eine gesonderte Zitierung erfolgt.

Das Studium von natürlichen Analoga stellt seit mehr als 30 Jahren ein wichtiges Forschungsgebiet im Zusammenhang mit der Endlagerung radioaktiver Abfälle dar. Innerhalb dieser Zeit wurden zahlreiche Studien durchgeführt, welche die Untersuchung unterschiedlicher Standorte und Phänomene wie Uranerzlagerstätten, natürliche Kernreaktoren, natürliche Metallagerstätten, Spurenelemente in Meeres- und See-Sedimenten, versteinertes Holz sowie archäologische Artefakte zum Inhalt hatten. Hinsichtlich ihrer Struktur und Zielsetzung lassen sich die Arbeiten in zwei Arten von Studien unterteilen:

1. Großräumig angelegte, multidisziplinäre Studien - häufig zu Uranlagerstätten -, die über etliche Jahre durchgeführt wurden und die Charakterisierung von Radionuklidtransport- und -rückhalteprozessen in einem umfassenden Sinne zum Inhalt haben,
2. kleinräumige Kurzzeitstudien als klar fokussierte mechanistische bzw. Prozess-Studien, die zum Ziel haben, einzelne Materialien oder Prozesse zu untersuchen, häufig anhand von archäologischen Funden bzw. Artefakten.

In den vergangenen Jahrzehnten haben sich der wissenschaftliche Anspruch und die Vorgehensweise zur Verwendung von Informationen aus Analogastudien geändert. Ursprünglich war die Hauptintention, numerische Daten wie Korrosionsraten oder Sorptionskoeffizienten direkt aus Analogastudien zu erhalten und in Modellen für die Langzeitsicherheitsanalyse einzusetzen. Diese Vorgehensweise war aber nur selten erfolgreich, da es sich als sehr schwierig erwiesen hat, aus komplexen natürlichen Systemen, in denen die Randbedingungen nicht kontrolliert und oft nur ungenau bekannt sind, sichere und fundierte Daten abzuleiten.

Seit einigen Jahren wird mit Analogastudien ein breiterer Ansatz verfolgt. Ihre Rolle wird heute primär darin gesehen, qualitative Informationen zur Verwendung oder Absicherung von konzeptuellen Modellen zu liefern, in dem sie u. a. dazu beitragen, rele-

¹ Umkehrung des von dem britischen Geologen Sir Charles Lyell in der ersten Hälfte des 19. Jahrhunderts postulierten Aktualismusprinzips

vante Prozesse in natürlichen Systemen zu identifizieren, und zeigen, wie und auf welcher zeitlichen und räumlichen Skala diese Prozesse ablaufen und ob bzw. wie sie gekoppelt sind.

Rolle von Natürlichen Analoga im Safety Case

Diese Entwicklung steht im Einklang mit der generellen Entwicklung zur Führung eines Langzeitsicherheitsnachweises für Endlager für radioaktive Abfälle. Früher basierten Langzeitsicherheitsnachweise hauptsächlich auf der quantitativen Beschreibung der Entwicklung des Endlagersystems und einem Vergleich der berechneten Konsequenzen mit den vorgegebenen Schutzziele. Dieser Ansatz hat nur bedingte Überzeugungskraft, da er zugrunde liegende wichtige Argumentationslinien nicht mehr erkennbar werden lässt (z. B. den gesamten geologischen Nachweisgang, die Vollständigkeitsprüfung für alle Eigenschaften und Prozesse, die Herleitung und Begründung des konzeptuellen Modells, usw.) und keine Möglichkeit mehr bietet, den Grad an Zuverlässigkeit der getroffenen „Dosisvorhersage“ zu beurteilen. In den letzten Jahren geht die Tendenz dahin, einen Safety Case zu erstellen, in dem diese zusätzlichen Argumente und Informationen aufgenommen werden, welche die Ergebnisse der quantitativen numerischen Modellrechnungen unterstützen und die Argumentation vervollständigen /NEA 04/. In diesem Zusammenhang spielen Natürliche Analoga eine wichtige Rolle, weil sie zusätzlich zu den im Langzeitsicherheitsnachweis angewendeten Methoden und Argumentationen auch solche Erfahrungen und Argumente mit einbeziehen, die Rückschlüsse auf den Stand und die Reife des wissenschaftlichen Verständnisses für komplexe natürliche Systeme erkennen lassen.

Anforderungen an die Eignung Natürlicher Analoga

Um einen möglichst großen Nutzen aus Studien natürlicher Analoga für Prozesse in Endlagersystemen ziehen zu können, wurden bereits in /CHA 84/ folgende Richtlinien erarbeitet, die bei der Auswahl geeigneter Standorte geprüft werden sollten:

- Die involvierten Prozesse sollten klar definiert sein. Der Effekt anderer beteiligter Prozesse sollte quantifizierbar sein und sein Einfluss auf den zu untersuchenden Prozess bestimmbar sein.
- Die chemische Analogie sollte möglichst gut sein. Wenn die chemischen Bedingungen nicht denen im Endlagersystem entsprechen, sollten die dadurch bedingten Einschränkungen des Analogons vollständig verstanden sein.

- Die Größe der involvierten physikalisch-chemischen Parameter sollte messbar sein und nicht wesentlich von den im Endlager erwarteten Bedingungen abweichen.
- Die Grenzen des Systems sollten identifizierbar sein. Insbesondere sollte die an dem Prozess beteiligte Materialmenge ermittelt werden können.
- Die Zeitskala des Prozesses muss messbar sein, da dies der wichtigste Faktor bei Analogastudien ist.

Dieser Leitfaden gilt auch heute noch, obwohl es sich als schwierig erwiesen hat, Systeme zu finden, die alle Anforderungen in gleichem Maße erfüllen. Es ist zusätzlich möglich, Kriterien anzugeben, die ein Analogon stärken bzw. schwächen können, und deshalb bei der Anwendung eines Analogons berücksichtigt werden sollten (Tab. 1).

Tab. 1 Zu berücksichtigende Faktoren und Kriterien bei der Verwendung von natürlichen Analoga /MIL 06/

Faktoren, die ein Analogon stärken	Faktoren, die ein Analogon schwächen
Relevanz für das zu betrachtende System	Ignorierung offensichtlicher Ungleichheiten zwischen Analogon und betrachtetem System
Große Anzahl an Übereinstimmungen zwischen Analogon und dem zu betrachtenden System	Große Anzahl an Unterschieden zwischen Analogon und betrachtetem System
Große Anzahl von Beispielen für ein bestimmtes Analogon	Ignorierung von Gegenbeispielen für ein Analogon
Unterschiedliche Analoga zu einem System	
Leichte Verständlichkeit des Analogons	
Gezielter Einsatz des Analogons, keine Überbetonung	
Verwendung des Analogons in Kombination mit Labor- und In-situ-Experimenten	

In der Konsequenz bedeutet dies, dass bei der Beschreibung und Bewertung von Analoga sorgfältig die jeweiligen Grenzen der Analogie und mögliche Gegenbeispiele berücksichtigt werden müssen.

2.2 Anwendungsgebiete für Natürliche Analoga

Das Interesse speziell hinsichtlich der Anwendung von Analogastudien in einer Langzeitsicherheitsanalyse bzw. einem Safety Case ist in den letzten Jahren gewachsen. In verschiedenen Ländern (siehe z. B. /GRU 04/, /JIM 04/, /MIL 03/) sowie auf internationaler Ebene /MIL 00/, /MIL 06/ wurden beispielsweise Review-Studien durchgeführt, in deren Rahmen auch unterschiedliche Anwendungsmöglichkeiten für Natürliche Analoga abgeleitet worden sind. Die wichtigsten Anwendungsgebiete werden im Folgenden erörtert /MAR 97b/, /MCK 89/, /MCK 96/, /MIL 94/.

Analogie der Isolation in natürlichen Uranerzlagern und einem Endlager

Ein wichtiger Aspekt von Analogastudien ist das Aufzeigen und die Illustration der Langzeitisolation von Uranerzen in natürlicher Umgebung und damit die Demonstration der prinzipiellen Machbarkeit der Endlagerung in tiefen geologischen Formationen. Die in fast allen Ländern mit Kernenergienutzung gewählte Option einer Endlagerung hochaktiver Abfälle in tiefen geologischen Formationen basiert u. a. auch auf Analogastudien. In verschiedensten Regionen der Erde hat sich gezeigt, dass eine stabile geologische Umgebung und bestimmte geochemische Verhältnisse Uranerzkörper auf natürliche Weise über Millionen von Jahren von der Oberfläche isoliert haben. Bei der Endlagerung wird, stark vereinfacht ausgedrückt, der uranhaltige abgebrannte Brennstoff in eine ähnliche geologische Umgebung zurück verbracht, aus der das Uran ursprünglich gefördert wurde. Trotz der Unterschiede (z. B. ist abgebrannter Brennstoff nicht identisch mit Uranerz und die Mineralzusammensetzung der das Uranerz umgebenden Tonsedimente gegenüber den in vielen Endlagerkonzepten vorgesehenen Bentonitpuffern unterscheidet sich) können natürliche Uranlagerstätten zur Vertrauenswürdigkeit und zur Illustration der Vorteile einer Endlagerung in tiefen geologischen Formationen beitragen.

Ein sehr gutes Beispiel dafür ist das Analogon Cigar Lake, das eine große Ähnlichkeit zu Endlagerkonzepten in einer Granitformation aufweist. Diese Ähnlichkeit ist am Beispiel des kanadischen Endlagerkonzepts in einer Granitformation in Abb. 1 dargestellt.

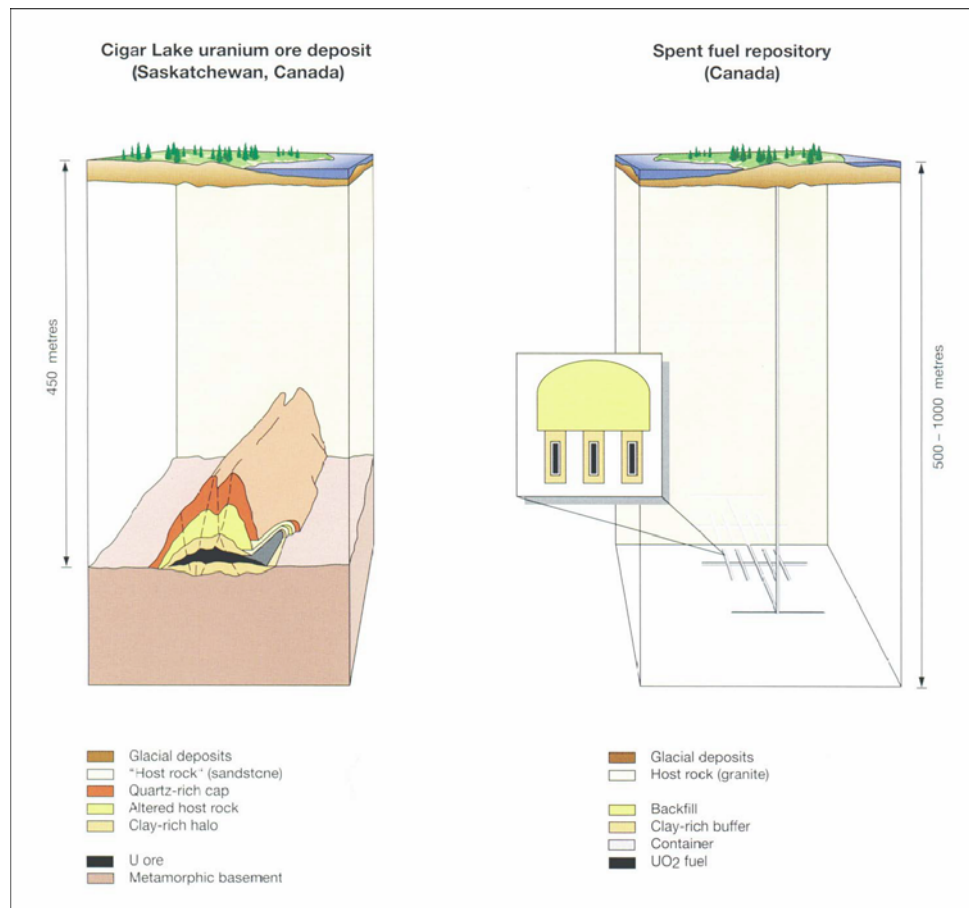


Abb. 1 Vergleich der Struktur des Analogasystems Cigar Lake (links) und der Struktur eines Endlagersystems (rechts) /CRA 94/

Die Abbildung zeigt die große Ähnlichkeit zwischen dem natürlichen Analogon Cigar Lake und einem Endlager wie auch Unterschiede in einzelnen Aspekten.

FEP-Screening und Szenarienentwicklung

Wichtiger Bestandteil einer Langzeitsicherheitsanalyse ist die Zusammenstellung von Zuständen (Features), Eigenschaften (Events) und Prozessen (Processes) (FEP), die bei der zukünftigen Entwicklung eines Endlagersystems von Bedeutung sein können und auf deren Basis Szenarien entwickelt werden. Sowohl zur Identifizierung fehlender wie auch zur Bewertung einzelner FEP, d. h., ob sie in der Natur eine wichtige Rolle spielen oder nicht, können Natürliche Analoga beitragen.

In diesem Zusammenhang können Natürliche Analoga beispielsweise Informationen über geologische oder klimatische Entwicklungen liefern, die für Endlagersysteme rele-

vant sind. Sie können aufzeigen, welche physikalischen und chemischen Prozesse mit diesen Entwicklungen einhergehen und welche Auswirkungen sie haben /IAE 99a/.

So haben z. B. Untersuchungen zur Bildung neotektonischer Störungen in Skandinavien gezeigt, dass periodische isostatische Bewegungen jeweils im Anschluss an Eiszeiten zur Bildung von Störungszonen im Granit führen können. Dieser Prozess wird deshalb bei der Erstellung von Eiszeit-Szenarien berücksichtigt. Eine genauere Untersuchung der Störungszonen zeigte, dass es hauptsächlich zur Reaktivierung präquartärer Störungszonen kommt. Die Ausbildung neuer Klüfte bleibt auf Distanzen von nur wenigen Metern beschränkt. Aus diesem Grund wird der Prozess der Ausbildung neuer Klüfte letztlich als weniger wichtig bewertet /MIL 06/.

Dieses Analogon zeigt, dass die Grenzen zwischen den Methoden der geologischen Nachweisführung mittels Untersuchungen und Natürlichen Analoga fließend ist. Untersucht wird hier das Alter von Störungen mit dem Ziel, aus der Beobachtung und Aufklärung bisheriger geologischer Veränderungen auf die künftig zu erwartende Entwicklung zu schließen. Dieses Analogon ist auch ein Beispiel dafür, dass viele neuere Studien auf Einzelaspekte oder Prozesse begrenzt sind. Eine Generalisierung wie im Falle des Vergleichs zwischen einer Uranerzlagerstätte und einem Endlager im Granit ist hier nicht beabsichtigt.

Im Langzeitsicherheitsnachweis werden derartige Untersuchungen ergänzenden Charakter haben und zusammen mit weiteren standortspezifischen Untersuchungsergebnissen eine abgesicherte Gesamtaussage über die Wirtsgesteinseigenschaften ergeben. Die Untersuchungsergebnisse gehen damit in die Szenarienentwicklung ein und sichern diese ab.

Entwicklung konzeptueller Modelle

Informationen aus Analogastudien können bei der Entwicklung konzeptueller Modelle eingesetzt werden. Sie können dazu beitragen, zu ermitteln:

- Welche Prozesse explizit in numerischen Modellen berücksichtigt werden sollten, d. h. welche Prozesse in Analogasystemen auftreten, welche dieser Prozesse dominieren und welche von untergeordneter Bedeutung sind,
- auf welcher räumlichen und zeitlichen Skala die Prozesse stattfinden, auf die das Modell angewandt werden soll,

- welche Wechselwirkungen zwischen einzelnen Prozessen zu berücksichtigen sind, z. B. zwischen thermischen, chemischen und mechanischen Prozessen,
- über welchen Bereich das Modell anwendbar ist, z. B. für welche Eh- und pH-Bedingungen das Modell gilt.

Ein sehr gutes Beispiel ist das Analogon Maqarin in Jordanien, einer natürlichen Quelle mit oberflächlich austretenden hochalkalischen Grundwässern. Die Untersuchungen haben die Identifizierung und genaue Charakterisierung von Sekundärmineralen ermöglicht, die sich aufgrund von Wechselwirkungen der Wässer mit dem Gestein gebildet haben. Die Analogie besteht darin, dass sich in Endlagern, in denen Betonbauwerke verwendet werden, bei Kontakt von Wässern mit Beton/Zement ähnlich hochalkalische Lösungen bilden. Die Vorgänge bei der Mineralauflösung, bei Neu- und Umbildungsprozessen und bei der Ausbreitung solcher Lösungen in einem Endlager unterliegen ähnlichen Gesetzmäßigkeiten. Das Analogon hat grundlegend zur Entwicklung und Begrenzung eines konzeptuellen Modells der Wechselwirkung alkalischer Lösungen im Nahfeld von Endlagern beigetragen. Das Vertrauen in ein solches Modell wird dadurch erhöht, dass auf diese Weise seine Realitätsnähe demonstriert werden kann.

Überprüfung / Qualifizierung von Modellen

Natürliche Analoga bieten ferner die Möglichkeit, Modelle und Datenbasen, die in Langzeitsicherheitsanalysen eingesetzt werden, zu testen. Dabei wird überprüft, ob Modelle der Langzeitsicherheitsanalyse diejenigen Prozesse, die in natürlichen Systemen stattgefunden haben, korrekt beschreiben können. Ein Problem dabei ist, dass bei einem Analogasystem der heutige (End-)Zustand gut charakterisiert ist, die Anfangs- und Randbedingungen aber oft nicht bekannt oder mit großen Unsicherheiten behaftet sind.

Aufgrund solcher Schwierigkeiten sind Tests numerischer Modelle bislang überwiegend hinsichtlich des geochemischen Verhaltens von Radionukliden in natürlichen Systemen durchgeführt worden. In diesen Systemen ist die Zeitskala nicht von Bedeutung und die heutigen Randbedingungen sind gut bekannt. Speziationscodes und Datenbanken wurden u. a. in den Studien El Berrocal, Maqarin, Osamu Utsumi, Cigar Lake und Palmottu /BLO 00/ getestet.

Dies erfolgte in so genannten „Blind Predictive Modeling“ (BPM) Studien. Bei dieser Vorgehensweise werden dem Modellierer für endlagerrelevante Systeme die Gesteins-

zusammensetzung und die wichtigsten Eigenschaften des Grundwassers mitgeteilt (analog den Informationen, die der Modellierer auch nach einer Standortcharakterisierung zur Verfügung hat). Mit diesen Daten werden von den Modellierern die Speziation und die Konzentration einzelner Spurenelemente in den Grundwasser- und Gesteinsystemen vorhergesagt. Gleichzeitig werden, unabhängig davon, Speziation und Konzentration in den Analogasystemen gemessen und anschließend mit den Modellvorhersagen verglichen. Dies hat zur Identifizierung wichtiger Schwachstellen der konzeptuellen und numerischen Modelle zur Beschreibung der Speziation sowie der thermodynamischen Datenbanken geführt und zu deren Verbesserung beigetragen /BRU 01/.

Ein weiteres Beispiel ist die Verwendung von Profilen natürlicher Isotope in Tongesteinen, die zeigen, dass der Stofftransport in diesen Formationen über lange Zeiträume durch Diffusion dominiert war. Die Ausbreitung der natürlichen Tracer kann bei Kenntnis darüber, wann sich die heutigen hydraulischen Verhältnisse am Standort eingestellt haben, mit den Diffusionsmodellen, die in Langzeitsicherheitsanalysen verwendet werden, nachvollzogen werden. Dies ist ein wichtiger Qualifikationsschritt, der das Vertrauen in das Transportmodell erhöht.

Daten für Langzeitsicherheitsanalysen

Im Hinblick auf die in Langzeitsicherheitsanalysen verwendeten numerischen Modelle können Analogastudien im Prinzip dazu beitragen, „Best Estimate Werte“, konservative Werte bzw. Bandbreiten für Eingangsparameter festzulegen. Entgegen dieser ursprünglichen Intention ist es heute allerdings weitgehend akzeptiert, dass Analogastudien nur in seltenen Fällen quantitative Informationen zur direkten Verwendung in Sicherheitsanalysen liefern. Es gibt nur wenige Beispiele, bei denen dies tatsächlich erfolgt ist, z. B.

- Eindringtiefen für die Matrixdiffusion in geklüfteten kristallinen Gesteinen, die im Felslabor Grimsel ermittelt wurden, sind in der Schweizer Sicherheitsanalyse Kristallin-I verwendet worden /NAG 94/.
- Korrosionsraten von gediegenem Kupfer, die am Standort Hyrkkölä gemessen wurden, wurden in der finnischen Sicherheitsanalyse TILA-99 verwendet /VIE 99/.

Die Problematik bei der direkten Ableitung von Daten aus Analogastudien ist auf die Komplexität der natürlichen Systeme zurückzuführen. Dadurch sind Daten aus Analogastudien häufig mit großen Unsicherheiten behaftet. Entsprechend werden die meis-

ten Eingangsdaten für numerische Modelle aus Labor- und/oder In-situ-Experimenten gewonnen, die unter definierten Bedingungen durchgeführt wurden.

Trotzdem spielen Analoga eine fundamentale Rolle bei der Überprüfung und Absicherung von Grenzen bzw. Bandbreiten für einzelne Parameter. Wenn gezeigt werden kann, dass Daten, die aus komplexen natürlichen Systemen erhalten wurden, in der gleichen Größenordnung liegen, wie Daten aus Laborexperimenten, die z. T. unter vereinfachten Bedingungen durchgeführt werden, wird über zusätzliche und mittels anderer Methoden gewonnene Kenntnisse ein höheres Vertrauen in die verwendeten Parameter erreicht. Beispielsweise werden in der Opalinuston-Studie aus Experimenten ermittelte Daten zur Korrosion der Stahlbehälter durch Raten untermauert, die an zahlreichen archäologischen Eisen- und Stahlproben in der Natur abgeleitet wurden /NAG 02/. In diesem Fall stärkt auch die große Anzahl an Analogsystemen zu diesem Prozess die Bedeutung des Analogons (vgl. Tab. 1).

2.3 Bisherige Verwendung von Analogastudien in Langzeitsicherheitsanalysen und -nachweisen

In viele Langzeitsicherheitsanalysen bzw. Safety Cases sind bereits Informationen aus Analogastudien eingeflossen. Es ist allerdings anzumerken, dass Informationen aus Analogastudien häufig nicht umfassend in Berichten über die Langzeitsicherheitsanalyse dokumentiert sind. In Tab. 2 ist aufgeführt, zu welchen Themen Ergebnisse aus Analogastudien bisher bei der Entwicklung von konzeptuellen Modellen, bei der Bereitstellung von Daten sowie bei der Modellüberprüfung in einzelnen Studien beigetragen haben /NOS 00/.

Die Vielzahl der dargestellten Beispiele zeigt, dass Natürliche Analoga eher bei der Entwicklung von konzeptuellen Modellen und bei der Absicherung oder Ergänzung von Daten, in geringerem Umfang bei der Überprüfung von Modellen eine Rolle spielen. Allen Beispielen ist gemeinsam, dass die Analoga stets ergänzend herangezogen werden, kein Analogon nimmt für sich allein eine tragende Rolle bei der Sicherheitsanalyse ein.

Tab. 2 Beispiele für die Verwendung von Informationen aus Analogastudien in Sicherheitsanalysen und Safety Cases (in Anlehnung an /GRU 04/)

Safety Case / Sicherheitsanalyse	Entwicklung konzeptueller Modelle	Daten-Bereitstellung	Modellüberprüfung
KBS-3 (Schweiden, 1983) /SKB 83/	- Radiolytische Oxidation von abgebranntem Brennstoff anhand von Beobachtungen in Oklo	- Maximale Raten für Lochfraßkorrosion bei Kupfer - Bentonitstabilität bei $T < 100^\circ \text{C}$	
Projekt Gewähr (Schweiz, 1985) /NAG 85/	- Stabilität von Borsilikatglas - Stabilität von Beton und Mörtel - Stabilität von Bitumen - Radionuklidmobilisierung anhand von Beobachtungen in Oklo	- Langzeitkorrosionsraten von Stahl - Beschränkung der Illitisation von Bentonit	
SKB-91 (Schweiden, 1991) /SKB 92/	- Langzeitstabilität von Bentonit anhand von Beobachtungen in Gotland - Absicherung des Redoxfrontmodells durch Beobachtungen aus Poços de Caldas - Berücksichtigung von Matrixdiffusion	- Eingeschränkte Bedeutung des Kolloidtransports anhand von Daten aus Poços de Caldas - Untermauerung konservativer Abschätzungen zur radiolytischen Oxidation aus Information von Cigar Lake	- Radionuklidlöslichkeiten, Modellüberprüfung und Vergleich mit den an den Standorten Poços de Caldas und Cigar Lake beobachteten Löslichkeiten
TVO (Finnland, 1991) /VIE 92/	- Verwendung paläo-hydrogeologischer Daten bei der Entwicklung von Eiszeit-Szenarien - Absicherung von Korrosionsprozessen durch Beobachtungen aus Kupferlagerstätten und der Kanone von Kronan - Verwendung von Informationen aus Poços de Caldas und Palmottu zur Entwicklung von Modellen zum Verhalten von Kolloiden und Mikroben	- Matrixdiffusionsprofile aus verschiedenen Analogastudien	- Überprüfung der Korrosionsmodelle für abgebrannten Brennstoff anhand von Informationen aus Cigar Lake
Kristallin-I (Schweiz, 1994) /NAG 94/	- Unterstützung bei der Szenarienentwicklung	- Randbedingung für die Entwicklung von Redoxfronten durch Informationen aus Poços de Caldas - Eindringtiefe für Matrixdiffusion	- Überprüfung von Radionuklidlöslichkeiten, Modellen und Vergleich mit beobachteten Löslichkeiten in Poços de Caldas, Oman und Maqarin - Testen von Modellen zur Redoxfrontentwicklung

Safety Case / Sicherheitsanalyse	Entwicklung konzeptueller Modelle	Daten-Bereitstellung	Modellüberprüfung
AECL EIS (Kanada, 1994) /AEC 94/	- Unterstützung bei der Entwicklung von konzeptuellen Modellen für die Korrosion von abgebranntem Brennstoff und Kupfer, für das Verhalten von Ton-Puffern und für die Radionuklidrückhaltung (speziell der Rolle von Kolloiden und Organika)	- Geochemische Prozesse und Parameterwerte für Redoxbedingungen und UO_2-Stabilität (z. B. Bandbreiten für Radiolyse-Parameter), Cu Korrosion, Bentonit-IIIit Umwandlung und Radionuklid-Rückhaltung (z. B. Bandbreiten für Matrixdiffusion)	- Testen von Modellen und Datenbanken für die Radionuklidlöslichkeit, Kolloid- und Komplexbildung mit organischen Stoffen, sowie Cu-Korrosion, aus Beobachtungen von Cigar Lake, dem Kanadischen Schild und der Kanone von Kronan
NRC IPA (USA, 1995) /NRC 95/	- Entwicklung von Szenarien für gestörte Entwicklungen (Vulkanismus) - Absicherung des konzeptuellen Modells für den Quellterm aus Peña Blanca - Relative Bedeutung von Meso-Mikroklüften für den Radionuklidtransport in Peña Blanca - Absicherung der Modelle für den Transport in der Gasphase aus Valles Caldera - Absicherung von konzeptuellen Modellen für den Transport in Klüften	- Identifikation von sekundären Mineralphasen am Standort Peña Blanca, die bei der Langzeitmobilisierung relevant sind sowie Zeiträume ihres Auftretens	- Testen von Modellen für den Elementtransport in ungesättigten Medien in Akrotiri
TILA-99 (Finnland, 1999) /VIE 99/		- Abstützen konservativer Annahmen für die Auflösung von abgebranntem Brennstoff aus Beobachtungen von Cigar Lake; - Behälterlebensdauer abgestützt durch Korrosionsraten aus natürlichen Cu-Vorkommen in Hyrkölä	
SR-97 (Schweden, 1999) /SKB 99/	- Verwendung von Permafrostdaten bei der Entwicklung von Szenarien für Eiszeiten - Verwendung von post-glazialen tektonischen Daten bei der Entwicklung von Szenarien für Eiszeiten	- Bentonitstabilität in Abhängigkeit von Temperatur und Kalium-Angebot. - Ton als Barriere für mikrobielle Aktivität (z. B. aus Dunarobba) - Gastransport in Schiefer - unbedeutende Kolloid-Konzentrationen in Endlagerteufen	- Untermauerung von Modellen für die radiolytische Oxidation von UO_2 - Modellüberprüfung unter Verwendung von Matrixdiffusionsdaten aus Palmottu und Cigar Lake - Überprüfung von Modellen zur Aus-

Safety Case / Sicherheitsanalyse	Entwicklung konzeptueller Modelle	Daten-Bereitstellung	Modellüberprüfung
		- Eindringteufen meteorischer oxidierender Wässer - Für abschätzende Rechnungen, die langfristig reduzierende Bedingungen in Endlagerteufe erwarten lassen - Keine Hinweise aus mineralogischen Beobachtungen für die Oxidation von Fe (II) zur Stützung der Annahme von reduzierenden Bedingungen	- breitung von Redoxfronten aus Beobachtungen in Poços de Caldas - Entwicklung und Prüfung von Modellen zur Mischung unterschiedlicher Grundwässer (Palmottu und Oklo)
SFR (Schweiden, 1998) /SME 98/	- Argumente für die Langzeitstabilität von Betonbarrieren aus Beobachtungen von Scawt Hill, Maqarin und antiken Betonbauwerken - Szenario zur Ausbreitung einer alkalischen Front aus Beobachtungen von Maqarin	- Hydrogeochemische Prozesse und Parameter für die Freisetzung von Hydroxiden; Bildung von CSH- und CASH-Phasen; Zeolithphasen; - pH-Erniedrigung durch Reaktionen mit Silikatmineralen	- „Blind Predictive Testing“ von thermodynamischen Datenbasen in Oman und Maqarin
H-12 (Japan, 2000) /JNC 00/	- Mineralveränderungen in Puffermaterialien aufgrund erhöhter Temperaturen spielen unter Endlagerbedingungen keine Rolle	- Demonstration konservativer Korrosionsraten für Stahlbehälter aus Analogastudien an archäologischen Eisen- und Stahlproben - Demonstration konservativer Glasauflösungsraten durch Beobachtungen an vulkanischen Gläsern	
Opalinuston (Schweiz, 2002) /NAG 02/	- Entstehung und Wechselwirkung alkalischer Wässer mit der Tonsteinformation aus Beobachtungen von Maqarin: Identifikation relevanter Mineralphasen; Beeinflusste Zone mit Mineralumwandlungen in wenig durchlässigem Gestein nur 2-20 mm in einigen 10.000 Jahren - Keine nachteiligen Effekte von erhöhten Temperaturen (<130°C) auf Tonstein und Bentonit aus Analoga an natürlichen Bentoniten - Plastizität und Quellfähigkeit	- Bestätigung von Größenordnungen für Löslichkeiten relevanter Elemente aus Beobachtungen von Maqarin und Cigar Lake. Löslichkeit von Actiniden ist bestimmt durch amorphe Oxidphasen - Bestätigung von Korrosionsraten für Stahlbehälter aus Analogastudien an archäologischen Eisen- und Stahlproben	

Safety Case / Sicherheitsanalyse	Entwicklung konzeptueller Modelle	Daten-Bereitstellung	Modellüberprüfung
	von Bentonit bleibt auch nach chemischen Veränderungen erhalten aus Beobachtungen an Kinekulle-Bentonit - Geringe Bedeutung radiolytischer Oxidation aus Beobachtungen von Cigar Lake, Oklo und anderen U-Lagerstätten	- Geringe Auflösungs-raten der UO_2 -Matrix gestützt durch Langzeitstabilität von UO_2 in Cigar Lake	

2.4 Grenzen natürlicher Analoga

Die Grenzen natürlicher Analoga sind in den vorangegangenen Abschnitten bereits angesprochen worden. Generell liegen die Probleme in der häufig ungenauen Kenntnis von Anfangs- und Randbedingungen sowie in der Komplexität und oft großen Heterogenität von natürlichen Systemen, die selten die Ableitung quantitativer Informationen gestatten.

Die Beurteilung, ob ein Analogon geeignet ist, hängt allerdings stark von seiner Anwendung ab. Diese ist wiederum bestimmt durch den Status, der in einem Safety Case erreicht ist. In einem frühen Stadium, z. B. bei der Szenarienentwicklung, sind qualitative Informationen meist von größerer Bedeutung als in einem späten Stadium, in dem numerische Modelle entwickelt und Eingangsparameter ermittelt werden. Dies ist schematisch in Abb. 2 dargestellt. Entsprechend ist ein Analogon, aus dem ausschließlich qualitative Informationen gezogen werden, für die Beschreibung von Prozessen und besonders für die Ableitung von Daten ungeeignet. Für die Szenarienentwicklung kann ein solches Analogon aber wichtig sein.

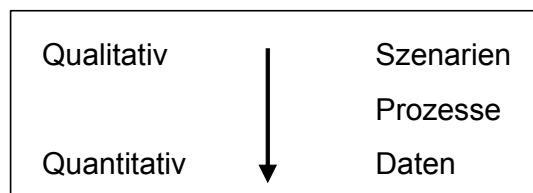


Abb. 2 Bedeutung qualitativer und quantitativer Informationen für einen Safety Case

Der Grad an Ähnlichkeit des betrachteten Analogons mit dem betrachteten Teilsystem oder Prozess in einem Endlager ist wohl das wichtigste Kriterium bei der Bewertung der Brauchbarkeit eines Analogons oder seiner Aussage- bzw. „Beweiskraft“. Eine vollständige Übereinstimmung zwischen Analogon und betrachtetem System im Endlager ist allerdings nie gegeben. Wesentliche Unterschiede können auftreten:

- in den untersuchten Materialien: ein archäologischer Eisennagel verhält sich anders als Stahl, der heute in einem Endlager verwendet wird; abgebrannter Brennstoff enthält im Unterschied zu natürlich vorkommendem Uraninit ein weites Spektrum von Aktiniden, Spalt- und Aktivierungsprodukten,
- in den geochemischen Bedingungen: an einem Natürliche Analoga-Standort können z. B. stärker oxidierende Bedingungen als im betrachteten Endlagersystem herrschen, was erheblichen Einfluss auf die Bildung von Mineralphasen und auf das Migrationsverhalten redoxsensitiver Elemente hat.

Hinzu kommt, dass schon bei der Beurteilung der Übereinstimmung zwischen Analogon und Endlagersystem Unsicherheiten bestehen. Bei einem Analogon kann ausschließlich der Endzustand beobachtet und genau charakterisiert werden, bezüglich seiner Entstehung und seiner Entwicklung über die Zeit bleiben aber signifikante Unsicherheiten /IAE 99b/.

Weitere Einschränkungen können bei Studien zur Uranmigration auftreten. Häufig werden an diesbezüglichen Standorten hohe, d. h. abbauwürdige Urangehalte oder auch andere Materialien wie Braunkohle angetroffen. Durch Abbautätigkeiten können aber insbesondere die Grundwasserverhältnisse (z. B. Fließbedingungen, Redoxbedingungen) signifikant verändert und damit der Nutzen des Analogons erheblich reduziert werden (z. B. /SCH 06/).

Aufgrund der klaren Einschränkungen von Analogastudien sollten diese nicht isoliert im Rahmen eines Langzeitsicherheitsnachweises, sondern im Kontext mit Labor- und ggf. In-situ-Experimenten bzw. Modellrechnungen verwendet werden, da sie komplementär zu diesen Studien von besonderem Wert sind. Diese Komplementarität von Analogastudien und Experimenten ist schematisch in Tab. 3 dargestellt. Typische Einschränkungen, aber auch Stärken von Analogastudien auf der einen und von Feld- und Laborexperimenten auf der anderen Seite sind in dieser Tabelle aufgeführt.

Tab. 3 Vorteile und Nachteile von Analogastudien im Vergleich zu Feld- und Laborexperimenten

Analogastudien	Feld- und Laborexperimente
Lange Zeiträume, typischerweise Tausende bis Millionen von Jahren	Kurzzeitexperimente (Wochen bis maximal wenige Jahre)
Anfangs- und Randbedingungen des Analogasystems häufig nur ungenau bekannt	Gut definierte Randbedingungen, die durch den Experimentator festgelegt und gezielt variiert werden können
Materialien entsprechen oft nur näherungsweise den Materialien im Endlager-system	Verwendung solcher Materialien, die auch für das Endlager vorgesehen sind.
Komplexe Systeme, durch gekoppelte Prozesse bestimmt; realistisch aber schwer zu modellieren	Einfache Systeme, die leichter modelliert werden können, möglicherweise aber nicht realitätsnah sind
Prozesse unter natürlichen Bedingungen mit natürlichen Reaktionsraten	Beschleunigung von Reaktionen oft durch Erhöhung der Temperatur oder Verwendung aggressiver Reagenzien
Anhand von Reaktionen in Analogasystemen kann überprüft werden, ob die Kinetik über lange Zeiträume von Bedeutung ist	Auf der Zeitskala der (beschleunigten) Laborexperimente spielt die Kinetik eine größere Rolle als in realen Systemen

3 Stabilität und Isolationspotenzial geologischer Formationen über lange Zeiträume

Natürliche Analogastudien können dazu beitragen, Stabilität und Isolationspotenzial potenzieller Wirtsgesteine über lange Zeiträume zu beurteilen. Für die jeweiligen Wirtsgesteine tragen unterschiedliche Prozesse zum Isolationspotenzial bei, weshalb diese nachfolgend separat betrachtet werden.

Bei Endlagerkonzepten in Salzgestein steht ein vollständiger Einschluss der Abfälle im Vordergrund, der durch möglichst schnelles Verschließen offener Hohlräume infolge der Gebirgskonvergenz erreicht werden soll. Daher sind hier Analoga von Bedeutung, die zeigen, dass der Salzstock über geologische Zeiträume stabil ist und Prozesse wie Subrosion nicht zu einer Beeinträchtigung der Isolation führen.

Bei Endlagern in Tongesteinen ist der Kontakt mit Porenwässern, bei Granit ein Wasserzutritt zu den Endlagerbehältern bzw. den Abfällen nicht zu vermeiden. Hier spielen hinsichtlich der Isolation der Abfälle eine geringe hydraulische Leitfähigkeit der Formation und stabile geochemische Bedingungen eine wichtige Rolle. Analoga, welche diese Langzeiteigenschaften demonstrieren, werden im Abschnitt über Tone und Festgesteine aufgeführt. Häufig werden diesbezügliche Analogastudien an Standorten mit Urananreicherungen durchgeführt, da dort das Barriereverhalten des Gesteins gegenüber Radionukliden am besten gezeigt werden kann.

3.1 Salzgestein

Untersuchungen an Gaseinschlüssen in Salzgestein

Als Naturbeobachtungen, welche die Langzeitintegrität von Salzstöcken über Zeiträume von mehr als 200 Millionen Jahren demonstrieren, können Untersuchungen an Gas- und Lösungseinschlüssen in Salzstöcken herangezogen werden /HER 95/. Untersuchungen von /SIE 01/ zu Gaseinschlüssen zeigen beispielsweise, dass diese primären Ursprungs sind, also nach der Entstehung des Salzstocks nicht mehr verändert wurden (siehe auch /POT 04/, /MEN 05/).

Im Rahmen dieser Untersuchungen wurden Gaseinschlüsse in zwei verschiedenen Evaporitkörpern, in Zielitz und in Braunschweig-Lüneburg analysiert /POT 04/, /MEN 05/. Zielitz repräsentiert eine Salzformation, die in ihrer geologischen Vergan-

genheit mechanisch nicht sehr durch tektonische Aktivität beansprucht wurde, wegen das Salzvorkommen Braunschweig-Lüneburg extremer tektonischer Beanspruchung ausgesetzt war. Es wurden sowohl Gase aus Fluideinschlüssen als auch Gase auf Korngrenzen analysiert. Typische gashaltige Einschlüsse (hier ein Beispiel aus dem Salzstock Gorleben) sind in Abb. 3 dargestellt.

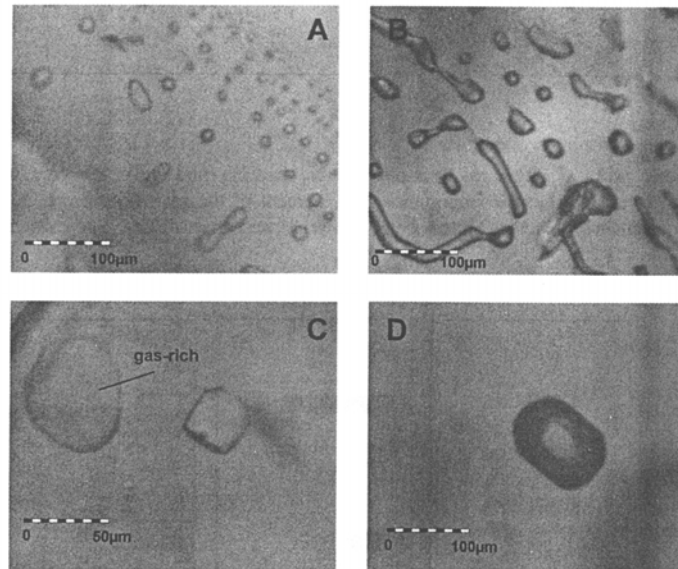


Abb. 3 Typische gasreiche Einschlüsse aus dem Salzstock Gorleben /SIE 01/

Untersucht wurden Gase aus dem Hauptsalz des Zechstein 2 von der Basis des Steinsalzes bis in das Kaliflöz. Die Gasmischungen am Standort Zielitz bestehen hauptsächlich aus den Komponenten CH_4 , H_2 , N_2 und H_2S . Die Mengenverhältnisse der einzelnen Komponenten und die $\delta^2\text{H}$ -Werte des Methans, die zwischen -370 ‰ und -240 ‰ (VSMOW) liegen, deuten darauf hin, dass Methan hauptsächlich durch Fermentation gebildet wurde.

Das Profil von $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ ist charakterisiert durch Werte zwischen -45 ‰ und -50 ‰ (VPDB) im unteren Bereich der Salzsequenz und ungewöhnlich hohe Werte von bis zu +21 ‰ in den Kaliumsalzen im oberen Bereich des Salzstocks. Diese hohe Anreicherung von ^{13}C in CH_4 kann nur durch einen zusätzlichen Fraktionierungsmechanismus entstanden sein. Zur Erklärung des Profils wurde ein Modell entwickelt, das von einem Evaporationsbecken ausgeht, in dem CO_2 vor Beginn der Evaporation und Salzausscheidung aus dem System entgast war (ein System, wie es wahrscheinlich zum Zeitpunkt der Bildung des Evaporitkörpers existierte). Unter der Annahme, dass der restliche gelöste anorganische Kohlenstoff im Sediment zu CH_4 konvertiert wurde, kann die

berechnete Kurve bei Verwendung von Fraktionierungsfaktoren für die Fermentation den Verlauf der in der Evaporitsequenz gemessenen CH_4 -Werte von -45‰ zu Beginn des Evaporationsprozesses und $>+20\text{‰}$ bei einer Evaporation von 95% beschreiben. Dieses Resultat ist in Abb. 4 dargestellt.

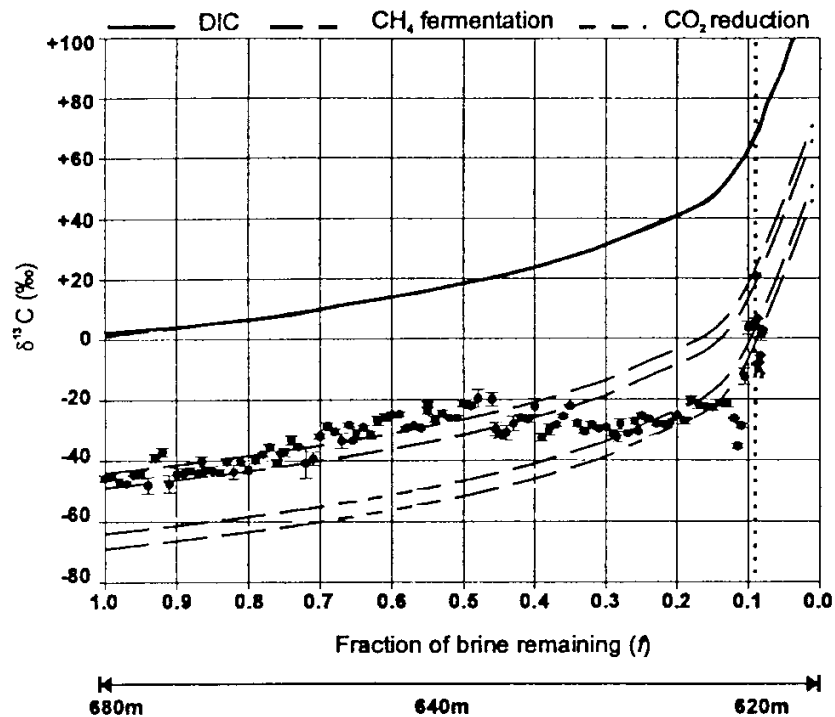


Abb. 4 Berechnete $\delta^{13}\text{C}$ -Werte für gelösten anorganischen Kohlenstoff (DIC) und CH_4 für das Modell eines fortschreitend verdampfenden Evaporationsbeckens /POT 04/

Diese Ergebnisse sind ein starkes Indiz dafür, dass die Gase primären Ursprungs sind, sich also bereits während der Entstehung der Salzformation gebildet haben und seit dem Zechstein nicht mehr nennenswert migriert sind. Damit wird die Aussage gestützt, dass der innere Bereich des Salzstocks nicht mit externen Lösungen in Wechselwirkung getreten ist. Ferner kann daraus abgeleitet werden, dass der Salzstock selbst für Gase eine effiziente Barriere darstellt.

In der Braunschweig-Lüneburg Formation konnten nahezu keine Gaseinschlüsse detektiert werden und auch die Gasgehalte auf Korngrenzen sind sehr gering /MEN 05/. Die Autoren ziehen daraus den Schluss, dass das Gas durch mechanische Umkristallisation, hervorgerufen durch tektonische Beanspruchung, entfernt worden ist. Eine wichtige Voraussetzung für die Integrität des Salzgesteins, zumindest für das Fehlen einer Gasmigration, ist also eine geringe tektonische Beanspruchung der Formation.

Untersuchungen zu Hebungen des Salzstockes und Subrosion

Weitere Prozesse, welche die Barriereintegrität von Salzstöcken beeinträchtigen können, sind Hebungen des Salzstocks und Subrosion. Zu beiden Prozessen können Erkenntnisse aus Untersuchungen des Salzstocks Gorleben (sog. „Selbstanaloga“) gewonnen werden /JAR 94/.

Informationen über halokinetische Prozesse können aus der geologischen Entwicklungsgeschichte des Salzstocks abgeleitet werden. Die Entwicklung des Salzstocks Gorleben von der Zechstein-Epoche bis heute ist schematisch in Abb. 5 dargestellt.

Salz kann sich aufgrund seines plastischen Verhaltens und Unterschieden in der Dichte zwischen Salz und den überlagernden Gesteinen in höhere Schichten der Kruste bewegen. Diese Aufwärtsbewegung des Salzes wird Diapirismus genannt. Diapirismus kann zu einer Hebung des Salzstocks führen. Ein solcher Hebungsprozess kann eine Abnahme der Mächtigkeit des Deckgebirges zur Folge haben, außerdem den Subrosionsprozess (s. u.) beschleunigen und damit die Barriereeigenschaften des Endlagersystems beeinträchtigen.

Zur Ermittlung der Aufstiegsraten wurde eine quantitative Analyse der Entwicklung des Salzstocks in verschiedenen geologischen Epochen durchgeführt. Auf der Basis von Tiefenlinien-, Mächtigkeits- und Strukturkarten wurden epirogene, tektonische und halokinetische Bewegungen rekonstruiert. Da das Volumen der sekundären Randsenke von der epirogenen Absenkung und dem Salzabfluss im Untergrund abhängt, ist es möglich, die Salzbewegung durch eine Randsenkenanalyse zu quantifizieren /ZIR 91/.

Der Diapirismus begann in der geologischen Zeitepoche Malm - Unterkreide. Die Gesamtmenge Salz, die seit dieser Zeit in den Salzstock transportiert wurde, beträgt etwa 280 km^3 , was 53 % der ursprünglich 1400 m mächtigen Salzschiefer des Zechsteins entspricht. Wie in Abb. 6 gezeigt ist, variierten die Aufstiegsraten des Salzstocks zwischen 0,08 mm/a während der Oberkreide bis ca. 0,02 mm/a während des Quartärs. Die Hauptunsicherheit besteht in der Ungenauigkeit der Zeiträume der geologischen Epochen. Dies ist in Abb. 6 demonstriert, in welcher die Hebungsraten auf Basis der beiden verschiedenen Zeittafeln von /HAR 90/ und /ODI 85/ ermittelt wurde. Es wirkt sich besonders für kurze geologische Epochen wie das Obere Oligozän aus, wo die unterschiedlichen Zeiträume in beiden Skalen zu Hebungsraten führen, die sich um einen Faktor 2 unterscheiden.

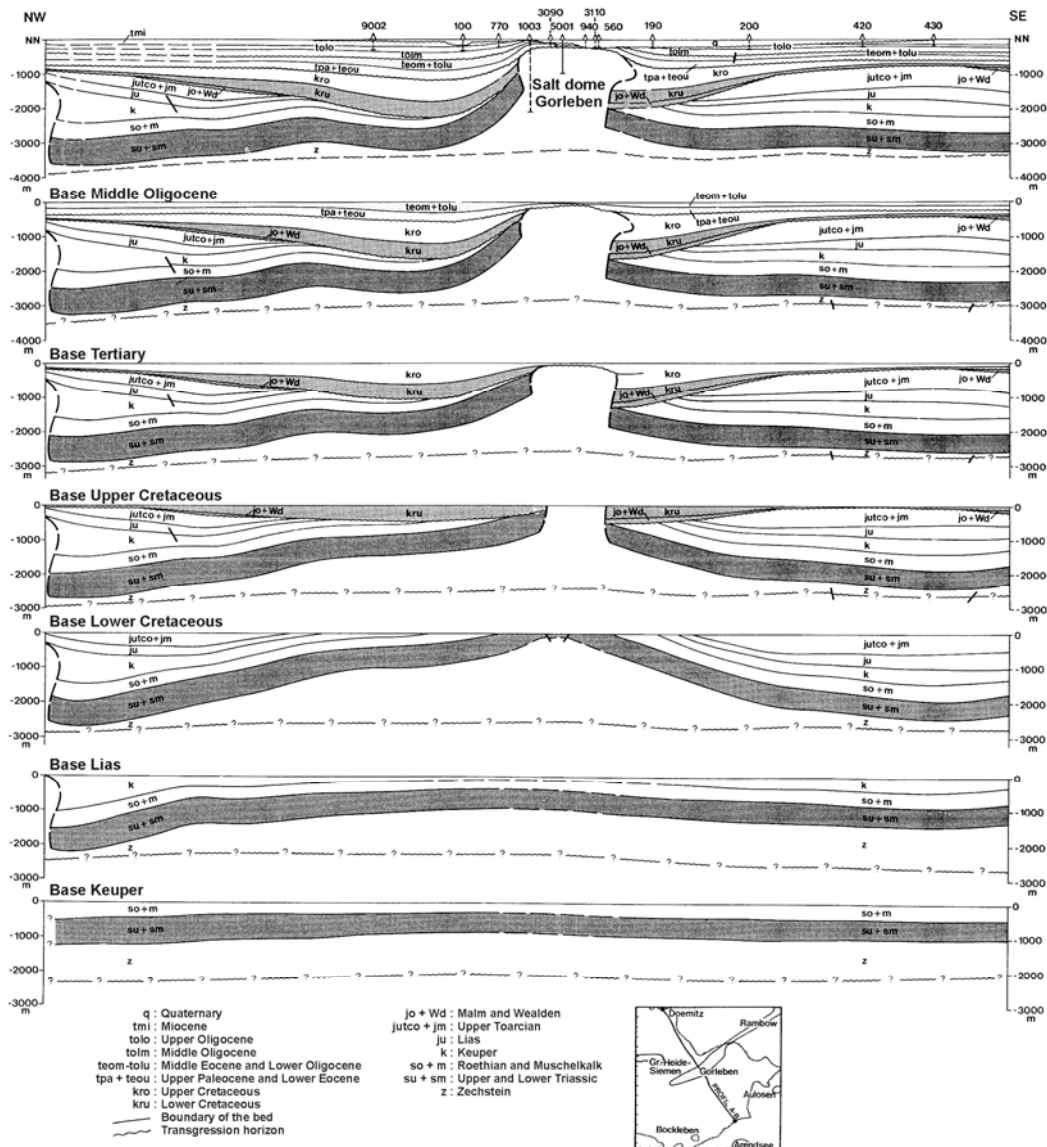


Abb. 5 Entwicklungsgeschichte des Salzstocks Gorleben; NW-SE-Profil /ZIR 91/

Aufgrund der heutigen relativ konstanten dynamischen Bedingungen am Salzstock wird erwartet, dass sich die Hebungsrate in den nächsten Millionen Jahren nicht verstärken wird. Nimmt man Hebungsraten von 0,01 bis 0,02 mm/a an, wird die Hebung des Salzstocks in 1 Million Jahren 10 bis 20 m betragen, was nicht zu einer Beeinträchtigung seiner Barriereigenschaften führen wird.

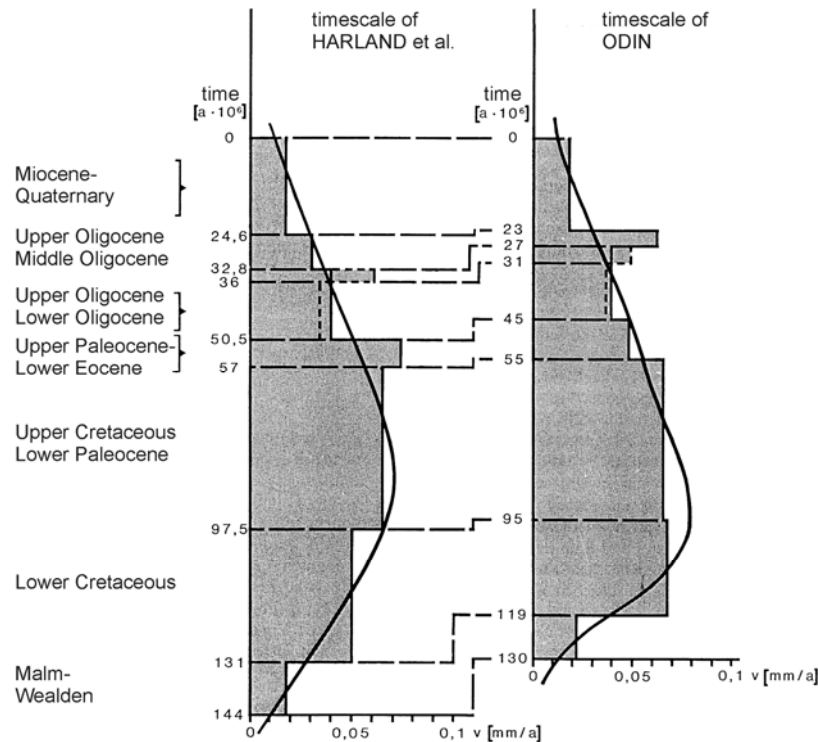


Abb. 6 Mittlere Aufstiegsrate des Salzstocks in verschiedenen geologischen Epochen (nach /HAR 90/ und /ODI 85/)

Ein weiterer wichtiger Prozess, der bei der normalen Entwicklung eines Endlagers zu betrachten ist, ist die Subrosion des Salzstocks. Durch Subrosion wird Salz vornehmlich am Salzspiegel gelöst und dadurch langfristig die Salzstockmächtigkeit reduziert. Bei diesem Prozess werden gering lösliche Minerale wie Anhydrit oder Tonminerale an der Oberfläche des Salzstocks angereichert und bilden das so genannte Hutgestein.

Für den Salzstock Gorleben war es durch eine detaillierte Untersuchung des Hutgesteins möglich, Subrosionsraten für den Zeitraum nach der Elster-Eiszeit abzuleiten. Dazu wurden 49 verschiedene Bohrkerne aus dem Hutgestein des Salzstocks Gorleben analysiert.

Wie in Abb. 7 illustriert, besteht das Hutgestein aus fünf verschiedenen Schichten. Die Auflösung des Salzes erfolgt von oben nach unten. Leicht lösliche Salze werden abtransportiert und geringlösliche Gips-Schichten bleiben zurück. Aus diesem Grund nimmt das Alter der Schichten von unten nach oben zu; die ältesten Schichten des Flaser-/Knollen-Gipses befinden sich also im obersten Bereich des Hutgesteins.

Die so genannte Hutgesteinsbrekzie wurde nicht durch Subrosion erzeugt. Ihr Auftreten (eine Besonderheit des Salzstocks Gorleben) macht die Quantifizierung der Subrosionsraten erst möglich. Ihre Verteilung und ihre Zusammensetzung zeigen deutlich, dass sie während der Elster-Eiszeit vor ca. 500 000 bis 300 000 Jahren gleichzeitig mit der Gorlebener Rinne gebildet wurde. Durch die große Auflast der Gletschermassen wurde Material von der Seite in das Hutgestein eingepresst. Das bedeutet, dass die Schichten oberhalb der Hutgesteinsbrekzie vorelstereiszeitlichen Ursprungs sind, während der gebänderte Gips durch Metamorphose des Salzes nach der Elstereiszeit gebildet wurde. Damit kann die Mächtigkeit des gebänderten Gipses als Maß für den Subrosionsprozess während der letzten 300 000 Jahre verwendet werden.

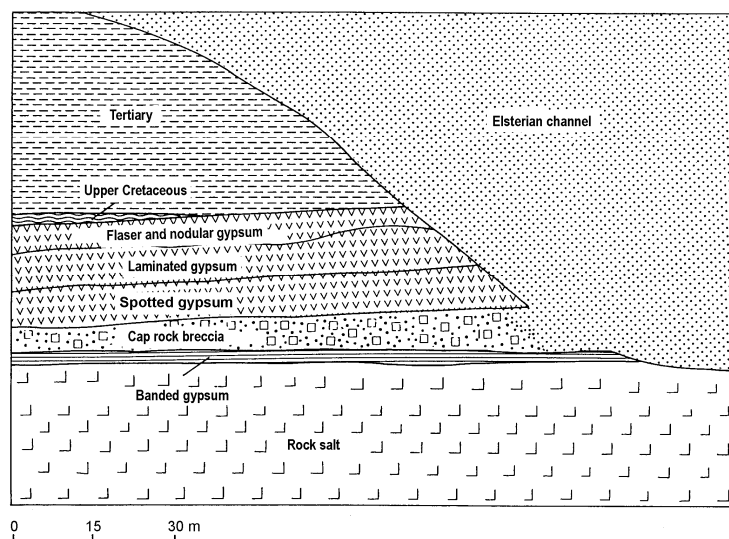


Abb. 7 Querschnitt durch die verschiedenen Schichten am Top des Salzstocks Gorleben mit der Elster-Rinne und der eingepressten Hutgesteinsbrekzie /BOR 86/

Die Auswertung der Bohrungen zeigte folgendes Bild. In 16 Bohrungen wurde kein gebänderter Gips gefunden, d. h. in diesen Bereichen fand keine nachelstereiszeitliche Subrosion statt. In den anderen Bohrungen wurde gebänderter Gips in unterschiedlicher Mächtigkeit nachgewiesen. Die größten Mächtigkeiten lagen bei 40 m. Unter Berücksichtigung der verschiedenen Gehalte an unlöslichen Verbindungen im Salz der einzelnen Bohrkerne wurden aus den Mächtigkeiten des gebänderten Gipses mittlere Subrosionsraten von 0,04 mm/a ermittelt. Subrosionsraten in dieser Größe würden in 1 Million Jahren zu einem Salzabtrag von 40 cm führen, was ebenfalls nicht zu einer Beeinträchtigung des Isolationspotenzials des Salzstocks führen würde, der zwischen potentiell Endlager und Deckgebirge eine Mächtigkeit von ca. 600 m aufweisen wird.

Rolle der Untersuchungen am Salzgestein

Die beiden Beispiele zeigen, dass sich aus Analoga-Untersuchungen für einen Sicherheitsnachweis wichtige Aussagen ableiten lassen. Sie ergänzen Laboruntersuchungen (z. B. zur Gasdurchlässigkeit) am realen Objekt und sichern aus allgemeinen Kenntnissen hergeleitete Aussagen (z. B. zum Umfang der Subrosion) ab. Sie erhöhen ferner das Vertrauen darin, dass für ein Endlager in Salzgestein wichtige Eigenschaften und Prozesse gut bekannt sind und eine Langzeitprognose über den erforderlichen Zeitraum von einer Million Jahren verlässlich begründet werden kann. Damit gehen die vorgestellten Beispiele direkt als unterstützende Argumente für ein ausreichendes wissenschaftliches Verständnis der Schlüsseleigenschaften eines Endlagers und für das Isolationspotential der betrachteten Gesteinsformationen über geologische Zeiträume in den Safety Case ein.

3.2 Tongestein

Bei Ton- bzw. Tonsteinformationen ist kein vollständiger Abschluss der Abfälle gegen Kontakt mit Wasser wie im Salzgestein möglich, da es auf jeden Fall zu einer Wiederaufsättigung des Tons mit Porenwasser kommen wird. Ton-/Tonsteinformationen weisen aber sehr gute Barriereigenschaften gegenüber einem Radionuklidtransport auf. Die wichtigsten dieser Eigenschaften sind:

- Aufgrund der sehr geringen Permeabilität ist der advective Schadstofftransport in ungestörten Tonsteinformationen so gering, dass die Ausbreitung von Radionukliden hauptsächlich über Diffusion erfolgt.
- Der Strukturaufbau von Tonstein, insbesondere die geringen für die Diffusion zur Verfügung stehenden Porenradien führen zu sehr geringen effektiven Diffusionskoeffizienten.
- Der Schadstofftransport wird zusätzlich verlangsamt durch die für viele Elemente guten Sorptionseigenschaften des Tons, wodurch die Diffusionsgeschwindigkeit vieler Radionuklide (z. B. Cs-135 oder Plutoniumisotope) um Größenordnungen verringert wird.
- Reduzierende Bedingungen, die u. a. aufgrund von Fe(II)-Verbindungen wie Pyrit und des Vorhandenseins organischer Materie auftreten, führen dazu, dass einige

redoxsensitive Elemente in ihrer weniger mobilen, reduzierenden Form vorliegen (z. B. Uranisotope, Tc-99).

Im Folgenden wird auf Analogastudien eingegangen, welche diese Barriereigenschaften von Tonsteinen auch über lange Zeiträume verdeutlichen.

Cigar Lake

Ein Standort, der dem Aufbau eines Endlagers sehr ähnlich ist, ist Cigar Lake in Nord-Saskatchewan in Kanada (siehe Abb. 1). In 430 m Teufe befindet sich eine Urananreicherung innerhalb der proterozoischen Athabasca-Sandsteinformation direkt oberhalb des metamorphen Grundgebirges. Der Uranerzkörper ist von einer 10 - 50 m mächtigen Tonschicht umgeben und erstreckt sich über eine Länge von 2.150 m und eine Breite von 25 - 100 m bei einer Mächtigkeit von nur 1 - 20 m. Der mittlere Urangehalt des Erzes, das aus Uraninit und Coffinit besteht, liegt bei 12 %, lokale Maximalgehalte liegen bei 55 % U.

Die Uranreicherung wurde vor 1,3 Milliarden Jahren hydrothermal gebildet. Das Uranerz ist seit diesem Zeitpunkt durch die umgebende Tonschicht isoliert. Die Mineralzusammensetzung des Erzes deutet nicht darauf hin, dass während dieser Zeit Auflösungs- oder Mobilisierungsprozesse des Urans stattgefunden haben, obwohl die überlagernde Sandsteinformation über den gesamten Zeitraum wassergesättigt war. Im Grundgebirge und in der Sandsteinformation existierende Störungszonen wurden durch die Tonschicht effektiv abgedichtet.

Der Hauptgrundwasserfluss am Standort erfolgt durch die Sandsteinformation (Abb. 8). Aufgrund der geringen Permeabilität des Tons, die um drei Größenordnungen niedriger ist als die des Sandsteins, sind die Transportgeschwindigkeiten für Wasser im Ton und durch den Uranerzkörper extrem niedrig; der Stofftransport ist dort durch sehr langsame Diffusion dominiert. Die vorhergesagten, geringen Transportgeschwindigkeiten in der Ton/Erz-Zone für Partikel, die aus dem Erz mobilisiert wurden, variieren zwischen 18 000 und 85 000 Jahren, was gut mit der Grundwasserverweilzeit übereinstimmt, die aus ^{36}Cl -Daten berechnet wurde.

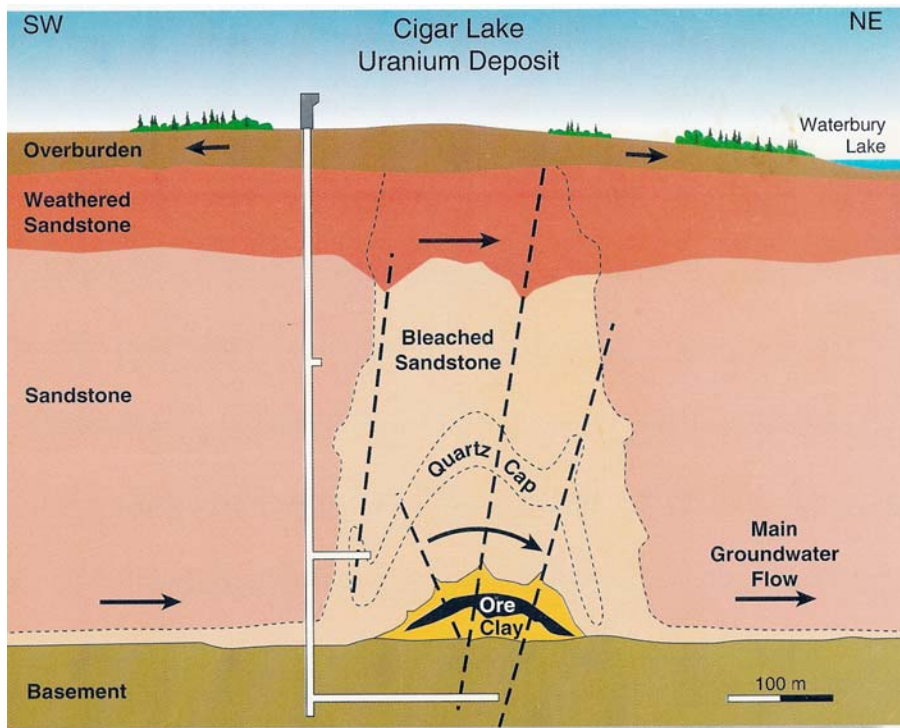


Abb. 8 Schematischer Querschnitt durch die Urananreicherung in Cigar Lake mit den wichtigsten lithologischen Einheiten und Grundwasserfließwegen /CRA 94/

Der Ton besitzt auch heute noch eine starke Redoxpufferkapazität, speziell durch das Vorhandensein von Pyrit- und Markasit-Mineralphasen. Es gibt keine Anzeichen dafür, dass sich die uranhaltigen Minerale seit ihrer Bildung verändert haben: Mineralneubildung sowie Uranmobilisierung und -transport waren in der geologischen Vergangenheit von untergeordneter Bedeutung.

Ein wichtiger Beitrag der Studie Cigar Lake zum vertieften Verständnis besteht in der Anwendung und Weiterentwicklung von Modellen für die Radiolyse, die in Langzeitsicherheitsanalysen der SKB zur Beschreibung des UO_2 -Quellterms verwendet wurden. Mit diesen Radiolysemodellen wurden Produktionsraten für oxidierende Spezies prognostiziert, die um mehrere Größenordnungen höher waren als die gemessenen Wasserstoffproduktionsraten wie auch die aus beobachteten Verteilungen von Oxidationsprodukten (Fe(III)) in der Umgebung des Uranerzes abgeleiteten Produktionsraten. Aus diesem Grund wurden im Rahmen der Studie detailliertere Modelle für die Radiolyse entwickelt, die den Einfluss der UO_2 -Korngröße und eine Ortsabhängigkeit der für die Radiolyse wirksamen Dosisraten für α - und β -Strahlung sowie die Verfügbarkeit von

Wasser in größerem Detail beschreiben. Mit diesen Modellen konnte die Produktionsrate von Oxidantien durch Radiolyse im Uranerz sehr viel besser beschrieben werden.

Trotzdem führen auch die verbesserten Modelle noch zu einer Überschätzung der Raten um ein bis zwei Größenordnungen. Gründe dafür liegen möglicherweise in Annahmen zu den Eigenschaften der Cigar Lake Lagerstätte (z. B. die Wasser- und Korngrößenverteilung der UO_2 -Minerale), die z. T. konservativ sind, aber den Stand des heutigen Wissens wiedergeben.

Obwohl Unterschiede in der Mineralzusammensetzung zu anderen Tonformationen bestehen, zeigen die Ergebnisse der Studie, dass der Uranerzkörper am Standort Cigar Lake seit seiner Entstehung vor 1,3 Milliarden Jahren intakt geblieben ist. Aufgrund der Ähnlichkeit zu einem Endlager ist diese Studie besonders geeignet, die Robustheit heutiger Endlagerkonzepte auf für die Endlagerung relevanten Zeitskalen zu veranschaulichen. Dieses Beispiel zeigt auch, wie Natürliche Analoga-Studien zur Weiterentwicklung von Modellen für Langzeitsicherheitsanalysen und zum Abbau von Konservativitäten beitragen können.

Dunarobba

Eine weitere wichtige Studie, die sehr deutlich die hydraulische und geochemische Barrierewirkung von Tonformationen zeigt, wurde am Standort Dunarobba durchgeführt. Der Standort liegt in Italien, in der Nähe der umbrischen Stadt Todi. An diesem Standort wurde keine Anreicherung von Radionukliden beobachtet, er zeigt aber auf außergewöhnliche Weise die natürliche Konservierung von Substanzen in einer Tonumgebung. Noch heute finden sich in den Tongruben Dunarobba und Cava Topetti abgestorbene Baumstämme in ihrer ursprünglichen senkrechten Position, was auf eine stabile Umgebung ohne mechanische Beeinflussung der Bäume hindeutet (Abb. 9). Die Sedimentschichten, auf denen die Bäume gewachsen waren, stammen aus dem Oberen Pliozän, das Alter der Baumstämme beträgt also ca. 2 Millionen Jahre /BEN 88/.



Abb. 9 Baumstammreste aus dem Pliozän, Dunarobba, Italien. Der Tonhorizont ist an der hellen Farbe in der Umgebung der Stämme zu erkennen /MIL 00/

Es gibt mehrere Indizien, die zeigen, dass die Zersetzungsrate der in Ton eingeschlossenen Zellulose extrem niedrig war und der innere organische Kern innerhalb der letzten 2 Millionen Jahre deshalb nur geringfügig verändert wurde:

- Wasserstoff-, Sauerstoff- und Kohlenstoffisotopenverhältnisse, die an Holzproben der Dunarobba-Bäume gemessen wurden, sind denen der heutigen Pflanzen sehr ähnlich.
- Der Gehalt an organischem Kohlenstoff (TOC), der durch Extraktion von Holzproben aus Dunarobba erhalten wurde, ist den Gehalten vergleichbar, die durch Extraktion von heutigen Eichenholzproben erhalten werden /CHA 90/.
- Das Holz zeigt bei der Bearbeitung keine Unterschiede zu frischem Holz, es kann gesägt, poliert und verbrannt werden.

Unter normalen Umständen wird Holz, das nicht komplett zersetzt wird, durch Verkohlungsprozesse zu Lignit (Braunkohle) umgesetzt und versteinert. Die Bäume in Dunarobba sind von gering permeablem Ton mit hydraulischen Leitfähigkeiten von $2 \cdot 10^{-13}$ bis $2 \cdot 10^{-10}$ m/s umschlossen. Die Tone sind wiederum von Sandablagerungen mit hydraulischen Leitfähigkeiten im Bereich von 10^{-4} m/s umgeben, in denen oxidierende Wässer zirkulieren /LOM 96/. Die Studie zeigt also sehr deutlich, dass das Holz durch den gering permeablen Ton, der den Zufluss in der Umgebung vorhandener oxidierender Wässer verhinderte, effizient über einen Zeitraum von rund zwei Millionen Jahren vor Zersetzung und Versteinierung geschützt wurde /BOZ 96/.

Opalinuston

Neben der Isolierung von Radionukliden oder anderen Materialien spielt die Verteilung von Spurenstoffprofilen in Porenwässern eine wichtige Rolle bei der Demonstration des hohen Isolationspotenzials von Tonformationen. In vielen Tonformationen haben sich in der geologischen Vergangenheit nach einer Änderung der geologischen Verhältnisse charakteristische Profile von Spurenstoffen ausgebildet. Beispielhaft soll hier auf Ergebnisse von Studien am Opalinuston eingegangen werden.

Abb. 10 zeigt Konzentrationsprofile der beiden natürlichen Isotope $\delta^2\text{H}$ und $\delta^{18}\text{O}$ in Porenwässern des Opalinustons aus Kernsegmenten der Bohrung Benken (Schweiz). Es wird davon ausgegangen, dass die beiden Isotope ursprünglich (vor etwa 1 Million Jahren) gleichmäßig in der Tonformation verteilt waren. Zu dieser Zeit hat sich das heutige Grundwasserregime eingestellt. Aufgrund einer höheren Konzentration der Isotope in der Tonformation gegenüber der Konzentration im über- bzw. unterlagernden Aquifer erfolgte ein Transport von ^2H und ^{18}O über Diffusion aus der Tonformation heraus. Der Transport führte bis heute zum Aufbau eines Konzentrationsprofils über die geologische Schichtenabfolge (Abb. 10).

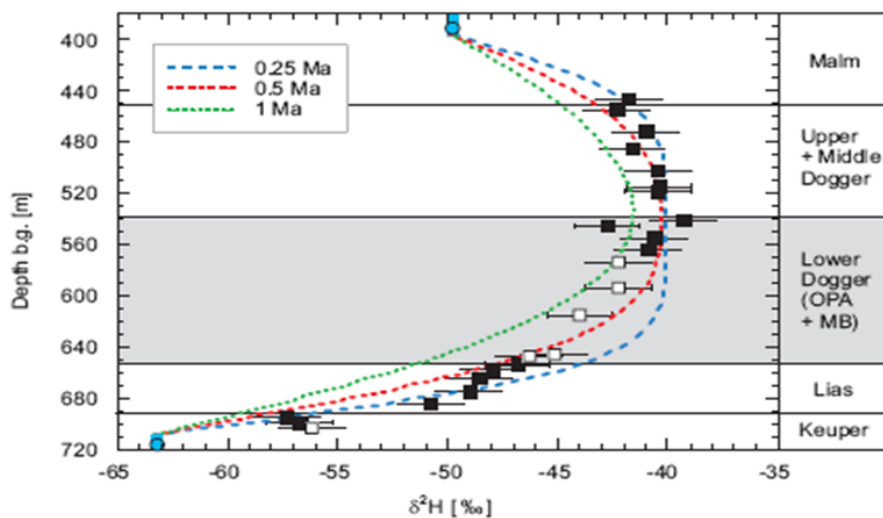


Abb. 10 Profile von Isotopenkonzentrationen in Porenwässern des Opalinustons und angrenzenden geologischen Schichten /NAG 02/. Die Punkte stellen Messwerte mit ihren Unsicherheiten dar, die verschiedenfarbigen Kurven die Ergebnisse von Modellrechnungen für unterschiedliche Zeitpunkte, zu denen sich die heutigen hydraulischen Verhältnisse eingestellt haben

Anhand von Modellrechnungen kann man den großräumigen Transportmechanismus, der über die betrachteten Zeiträume stattgefunden hat, identifizieren. Die gestrichelten Kurven zeigen die Ergebnisse von Modellrechnungen, in denen ein diffusiver Transport der Isotope aus der Tonformation angenommen wurde. Die gemessenen Profile können sehr gut mit diesen Modellrechnungen nachvollzogen werden.

Weiterhin zeigt sich, dass die berechneten Profile von den gemessenen Werten signifikant abweichen, wenn eine hydraulische Leitfähigkeit von $>10^{-12}$ m/s angenommen wird und damit ein advektiver Beitrag zum Transport erfolgt. Bei einem merklichen advektiven Beitrag wäre die berechnete Kurve vertikal verschoben. Die Interpretation dieser Profile zeigt damit klar, dass der großräumige Transport in der Tonformation über die letzten 1 Million Jahre diffusiv dominiert war.

Analoge Rückschlüsse lassen sich auch aus Profilen anderer Spurenstoffe ziehen, wie es in Abb. 11 für das Edelgas Helium am Standort Mont Terri gezeigt ist /RÜB 02/. Hier handelt sich um radiogenes Helium, das durch den α -Zerfall von Isotopen der natürlichen Zerfallsreihen gebildet wird. Die an die gering permeablen Schichten angrenzenden Aquifere führen junges, tritiumhaltiges Grundwasser. Aus den mittleren Uran- und Thoriumkonzentrationen im Opalinuston, den Porositäten und den Helium-Maximalkonzentrationen von $1,3 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^3 \text{STP g}^{-1}$ wurde ein In-situ-Alter ermittelt, das bei 9,1 Millionen Jahren liegt. Hierbei handelt es sich um ein Mindestalter, da weitere Prozesse, die zum Verlust von Helium führen, nicht berücksichtigt wurden. Die Größenordnung von 10 Millionen Jahren stimmt mit dem Zeitpunkt überein, zu dem sich die Fließverhältnisse der meteorischen Wässer am Standort Mont Terri nach der jurassischen Faltung eingestellt haben. Auch hier kann anhand der Profile unter Annahme stationärer Bedingungen der Reaktionsmechanismus überprüft werden. Wie am Standort Benken lassen sich die Profile gut durch einen Diffusionsprozess beschreiben und bestätigen, dass ein advektiver Transport im Opalinuston von untergeordneter Bedeutung ist. Aus der Anpassung resultiert ein Diffusionskoeffizient von $3,5 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$, der für die großräumige Diffusion von einigen hundert Metern gilt. Diese Arbeiten bestätigen die auf seiner geringen hydraulischen Durchlässigkeit und niedrigen Diffusionskoeffizienten beruhende Langzeitbarrierefunktion des Opalinustons.

Gleichzeitig wurden in Mont Terri auch Diffusionsexperimente mit idealen Tracern und sorbierenden Radionukliden als Labor- und Feldexperimente durchgeführt (s. Abb. 12). Die Diffusionskoeffizienten aus den Labor- und In-situ-Experimenten stimmen gut mit den Werten, die aus der Modellierung der Isotopenprofile gewonnen wurden, überein.

Damit wird neben der Demonstration des Isolationspotenzials auch das Vertrauen in die Modellierung der Prozesse im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalyse erhöht.

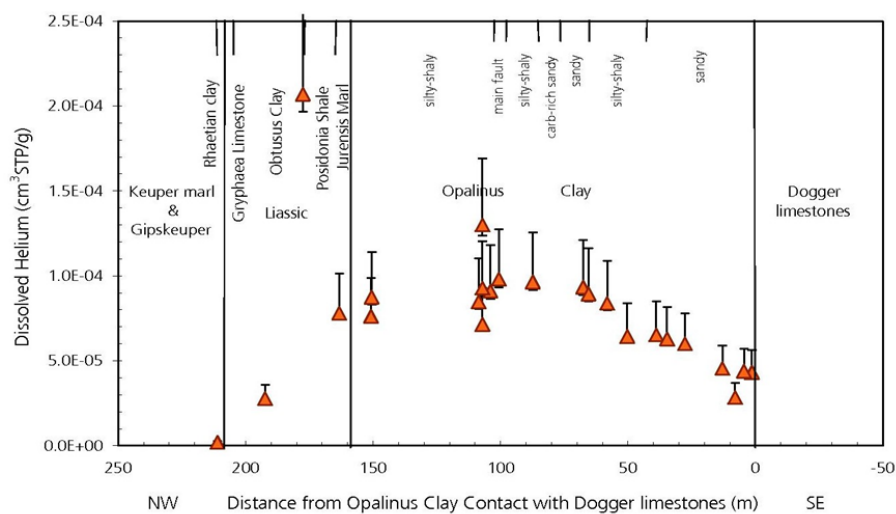


Abb. 11 Konzentration von gelöstem Helium in Porenwässern des Opalinustons und angrenzender Sedimentschichten am Standort Mont Terri (Messwerte und Unsicherheiten) /RÜB 02/

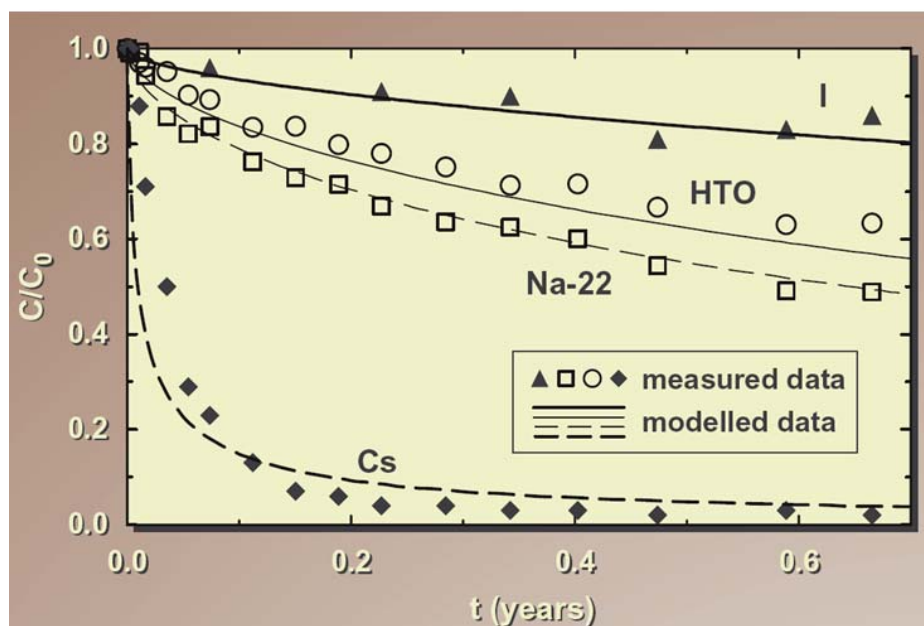


Abb. 12: In situ-Diffusionsexperimente am Standort Mont Terri: Konzentrationsprofile von verschiedenen Tracern und Kurven aus Modellrechnungen /WER 04/

Ruprechtov (oberflächennahe Tonsedimente)

Die geologische Gesamtsituation der Lokalität Ruprechtov (Tschechische Republik) ist charakterisiert durch ihre Lage innerhalb des Sokolov-Beckens, das einen Teil des Ohre-Grabens bildet, einer SW-NE und parallel zum Erzgebirge verlaufenden Grabenstruktur. Diese ist mit tertiären Sedimenten (im Raum Ruprechtov überwiegend vulkanogenen Ursprungs) gefüllt, deren Abfolge sich im Untersuchungsgebiet aus quartärer Überdeckung, pyroklastischen Sedimenten (Tuff), einem Braunkohlenton-Sand-Horizont (mit der bedeutendsten Uran-Akkumulation) und Kaolin (Verwitterungsprodukt des unterlagernden (partiell auch an der Oberfläche anstehenden) Granits zusammensetzt.

Neuere Untersuchungen haben gezeigt, dass die geologischen Lagerungsverhältnisse durch starke morphologische Unterschiede an der Tertiärbasis gekennzeichnet sind und die festgestellten Urananreicherungen im Braunkohlenton-Sand-Horizont nicht auf einen singulären Prozess, sondern auf vielfältige Ursachen zurückzuführen sind. Die auf heutigem Kenntnisstand basierenden Annahmen für die geologische Entwicklung der Lokation Ruprechtov umfassen nunmehr fünf Hauptphasen (Abb. 13).

Dabei lieferte insbesondere die Phase „c“ einen wesentlichen Beitrag zur Urananreicherung: Nach Sedimentation der Vulkanite vollzog sich die Verwitterung des unterlagernden Granits in erster Linie durch Reaktion von Feldspäten mit CO₂-reichen Grundwässern und Bildung von Kaolin. CO₂-reiche Grundwässer initiierten außerdem die Uranmobilisierung aus akzessorischen Mineralen durch Bildung von löslichen UO₂-Karbonat-Komplexen. Innerhalb des Kaolins wurde das Uran hauptsächlich durch Diffusion transportiert. Am Übergang zwischen Kaolin und überlagernden pyroklastischen Sedimenten war in einem nur lokal ausgebildeten Horizont mit erhöhter hydraulischer Durchlässigkeit über kurze Entfernungen auch ein advektiver Transport möglich (Abb. 14).

Als wesentliche Immobilisierungsprozesse wurden Uranreduktion in Braunkohle-reichen Sedimenten - verbunden mit der Bildung sekundärer Uran(IV)-Minerale wie z. B. Uraninit und Ningyoit - sowie Uransorption nachgewiesen. Die Untersuchung der Urananreicherung in Ruprechtov demonstriert die sehr effektive Barrierewirkung von Braunkohlenton gegenüber Uran, selbst bei sehr geringen Mächtigkeiten. Die Barrierewirkung wird letztlich durch das Zusammenwirken von Sorptionsprozessen und Re-

doxänderungen - verbunden mit Speziationsänderungen - verursacht /BRA 98/, /NOS 02a/, /NOS 02b/.

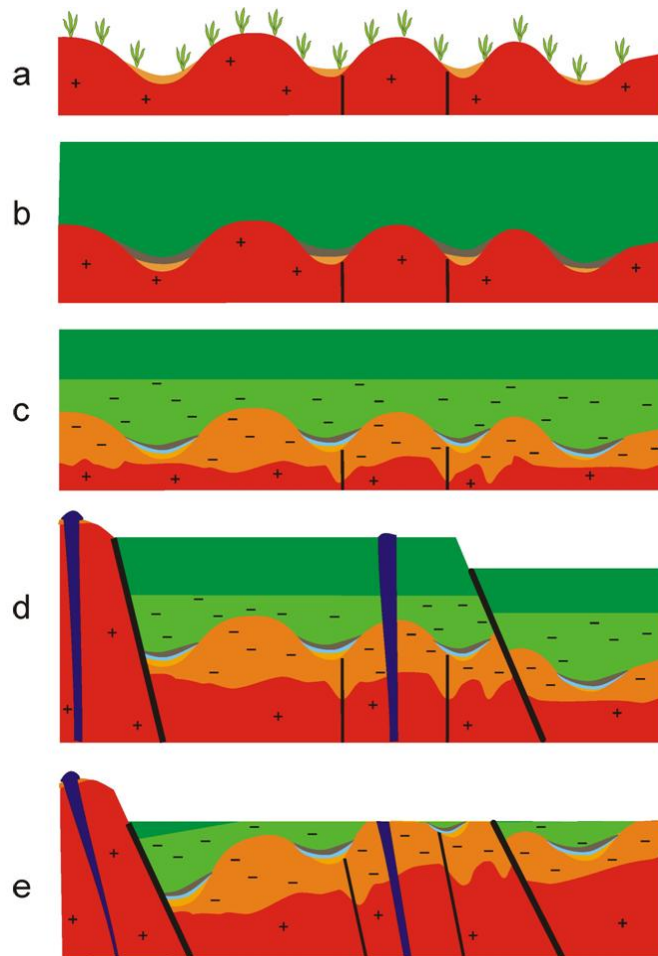


Abb. 13 Lokation Ruprechtov: schematische Darstellung wichtiger Phasen der geologischen Entwicklung des Sokolov-Beckens. a) Prä-Oligozän (> 30 Ma): Eintrag von detritischem Material (orange) durch physikalische Verwitterung des an der Erdoberfläche anstehenden Granits (rot) / b) Unteroligozän - Miozän (30-16 Ma): Ablagerung von organischem Material (hellbraun) in Rinnenbereichen; danach Hauptphase der vulkanischen Aktivität mit großflächiger Sedimentation von Pyroklastika / Tuff (grün) / c) Unteroligozän - Miozän (30-16 Ma): Umwandlung von Granit (Kaolinisierung – hellbraun, gestrichelt) und Tuff (Bentonitisierung - hellgrün, gestrichelt) / d) Miozän (16-15 Ma): Grabenbildung, verbunden mit Störungszonen (schwarz) und Basalt-Intrusionen (dunkelblau) / e) Pliozän - Quartär (< 5 Ma): Weiterentwicklung des Ohre-Graben und partielle Erosion der pyroklastischen Sedimente.

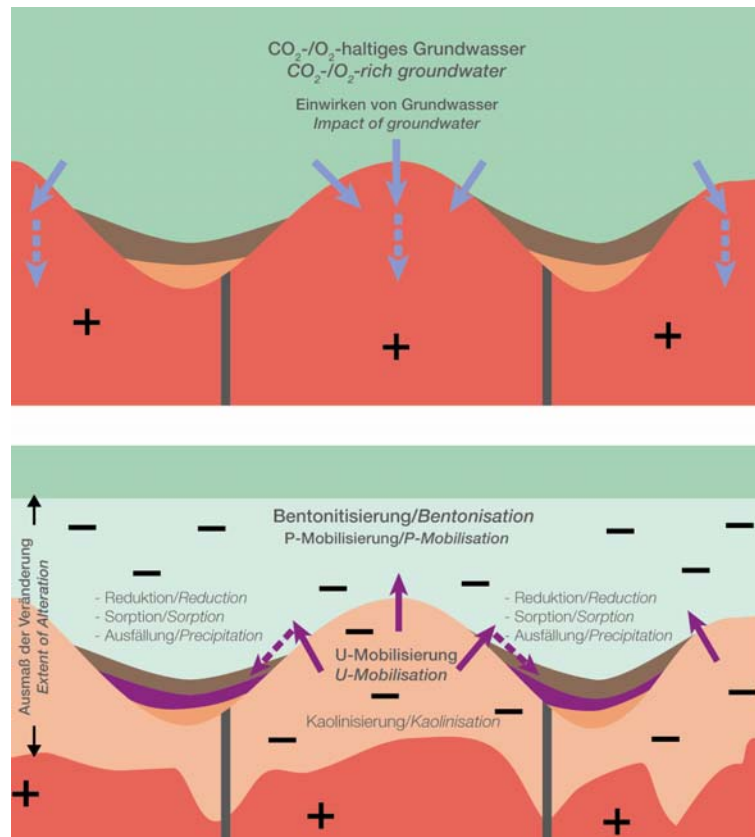


Abb. 14: Lokation Ruprechtov: Schematische Darstellung der Umwandlungsprozesse im Granit (rot) und Tuff (grün) durch das Einwirken CO₂- und O₂-reicher Grundwässer. Die vorangegangene großflächige Sedimentation von pyroklastischen Sedimenten hat dazu geführt, dass die Kaolinmächtigkeit dort am größten ist, wo der Granit vorher morphologische Erhebungen aufwies. Uran (Magenta) wird in den ehemaligen Tälern angereichert, in denen auch Braunkohle oder Braunkohlenton (braun) akkumuliert ist.

Diese Studie zeigt einen weiteren wichtigen Aspekt vieler Analogastudien. Die Arbeiten haben erheblich zur Überprüfung und Weiterentwicklung von Methoden, die für eine Standortcharakterisierung, wie auch für begleitende Labor- und in-situ Experimente für einen Safety Case relevant sind, beigetragen. Hierunter fallen Methoden zur Probenahme unter Atmosphärenabschluss, die Analytik und Auswertung von Isotopensignaturen in Grundwässern zur Ermittlung von Prozessen (z. B. zeigen die $\delta^{34}\text{S}$ Werte in gelöstem Sulphat das Auftreten von mikrobieller Sulphatreduktion) sowie spektroskopische Methoden wie $\mu\text{-XRF}$ (Röntgenfluoreszenz mit einer Auflösung im μm -Bereich), die erstmals auf natürliche Proben angewandt wurde und die Reduktion von Uran auf

Arsenopyrit-Oberflächen bei gleichzeitiger Oxidation von Arsen als einen Rückhalteprozess am Standort Ruprechtov nachweisen konnte /DEN 05/.

3.3 Festgestein

In Festgesteinen wie z. B. Granit ist ein vollständiger, geologisch bedingter Einschluss der Abfälle nicht realisierbar. Deshalb ist es wichtig, ein Endlager in Bereichen mit geringer hydraulischer Durchlässigkeit und möglichst dauerhaft reduzierenden chemischen Bedingungen zu errichten. In den Konzepten für Granit sind zusätzliche technische Barrieren notwendig, die den Wasserzufluss nach Errichtung des Endlagers und den Radionuklidtransport nach deren Mobilisierung begrenzen. Analogstudien für ein Endlager in Festgesteinen wurden hinsichtlich mechanischer und geochemischer Stabilität durchgeführt.

Der Radionuklidtransport in Festgesteinsformationen wird wesentlich bestimmt durch die Häufigkeit, die Geometrie und die Mineralfüllung von Kluft- und Störungszonen (im weiteren Text vereinfachend meist nur als Kluftzonen bezeichnet). In Langzeitsicherheitsanalysen wird angenommen, dass sich diese Eigenschaften der Klüfte über den betrachteten Zeitraum von Millionen Jahren nicht ändern. Zur Überprüfung, inwieweit die Klufterigenschaften in Graniten über derart lange Zeiträume stabil sind, wurde von /YOS 04/ eine Studie an japanischen Graniten durchgeführt. Betrachtet wurden Formationen in Zentral- und Nord-Japan:

- Takidani-Granodiorit (Alter ca. 0,8-1,9 Millionen Jahre)
- Toki-Granit (Alter ca. 67 Millionen Jahre)
- Kurihashi-Granodiorit (Alter ca. 117 Millionen Jahre)

Ziel der Untersuchungen war es, kristalline Gesteine aus unterschiedlichen geologischen Epochen des orogenen Gürtels in Japan zu untersuchen und ein Modell über das Verhalten von Klüften über sehr lange Zeiträume abzuleiten. Generell bilden sich Klüfte in kristallinen Gesteinen während der Abkühlungsphase sowie durch Spannungen in tektonisch aktiven Bereichen. In der Studie sollte geklärt werden, ob tektonische Aktivitäten nach Abkühlung des Gesteinskomplexes tatsächlich zur Bildung neuer Klüfte bzw. zur Aufweitung oder Veränderung bestehender Klüfte geführt haben.

Die Ergebnisse der Untersuchungen zeigen, dass die Häufigkeit der Klüfte in allen drei Formationen sehr ähnlich ist, obwohl sie unterschiedlich langen Perioden tektonischer Aktivität ausgesetzt waren. Die Klufthäufigkeit liegt bei ein bis drei nachweisbaren Klüften pro Meter. Die Kluffüllungen in den verschiedenen Graniten unterscheiden sich, da sie in unterschiedlichen zeitlichen Epochen gebildet wurden. Altersdatierungen an den Mineralphasen Serizit, Zirkon und Apatit in den Kluffüllungen des ältesten Kurihashi-Granodiorits zeigen, dass sowohl die Klüfte als auch die Kluffüllungen älter als 80 Millionen Jahre sind, d. h. die Bildung der Klüfte erfolgte im wesentlichen zur Zeit der Abkühlung des Granitkörpers. In der Zeit danach fanden kaum Neubildungen von Klüften statt; tektonische Aktivitäten haben weder zu einer Kluffaufweitung noch zu einer Erhöhung der Klufthäufigkeit geführt.

Diese Untersuchungen tragen zur Erhöhung des Vertrauens bei, dass tiefe Granitformationen, die in Japan als Endlagerformationen in Frage kommen, auch in Zukunft physikalisch stabil sein werden. Gebirgsbewegungen in kristallinen Gesteinen des orogenen Gürtels in Japan werden eher zur Reaktivierung bereits vorhandener Klüfte als zur Bildung neuer, zusätzlicher Klüfte führen.

Eine weitere wichtige Studie zu Kristallingestein wurde an der Uranerzanreicherung am Standort Tono in der Präfektur Gifu in Japan durchgeführt /SEO 94/, /YOS 94/. Ein vereinfachter geologischer Querschnitt des Standorts ist in Abb. 15 dargestellt. Der Tsukiyoshi-Uranerzkörper, die größte der Urananreicherungen am Standort Tono, liegt in etwa 130 m Teufe, hat eine Längenausdehnung von 3,4 km, eine Breite von 300 bis 700 m und eine Mächtigkeit von wenigen Metern. Das Grundgebirge besteht aus Toki-Granit, der mit einem Urangehalt von 6 ppm als Quelle des Urans angesehen wird. Die Uranreicherung hat sich vor ca. 10 Millionen Jahren gebildet, als Uran durch oxidierende Grundwässer mobilisiert wurde und anschließend in einer durch Vorhandensein von Pyrit und Lignit lokal reduzierenden Umgebung wieder abschieden und angereichert wurde /KAT 74/.

Die Urananreicherung befindet sich in konglomeratischen Sandsteinen und lignithaltigen Schichten. Das primäre, nicht-oxidierte Uranerz besteht hauptsächlich aus Coffinit und Pechblende und ist assoziiert mit Pyrit, gealtertem Biotit und lignithaltigem organischem Material. Eine Mobilisierung der Uranerzmatrix in direkter Umgebung der Störung konnte nachgewiesen werden, diese ist aber auf eine Ausdehnung von einem Meter begrenzt. In dieser oxidierten Zone treten sekundäre oxidierte Uranphasen auf, die

u. a. aus Autunit, Zippeit und Uranocircit bestehen und mit Montmorillonit, Limonit und anderen Mineralen assoziiert sind.

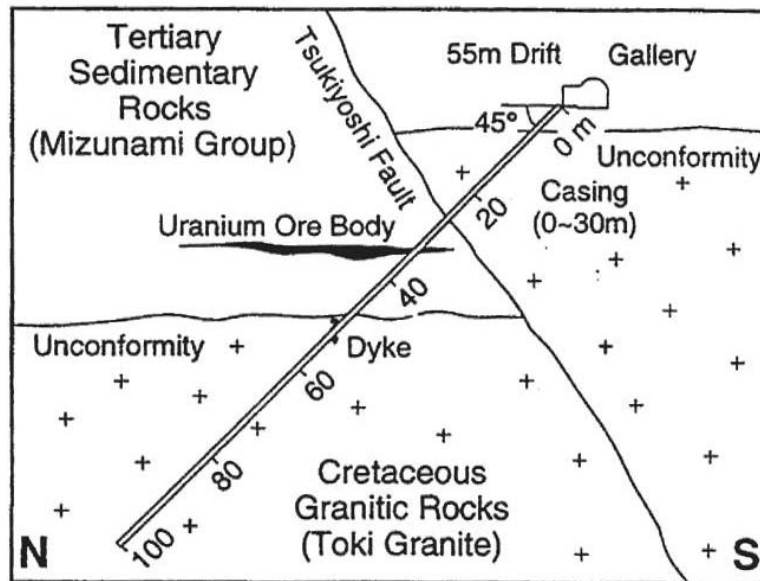


Abb. 15 Querschnitt durch die Uranerzanreicherung am Standort Tono mit Lage der Tsukiyoshi-Störungszone /MIL 00/

Die Tsukiyoshi Störungszone hat sich erst nach der Uranerzanreicherung vor 5 - 10 Millionen Jahren gebildet und hat die darüber liegende Mizunami-Formation ungefähr 30 m in vertikaler Richtung aufgeschoben (Abb. 15). Die Störungszone verlief durch den Uranerzkörper. Trotz der tektonischen Aktivität und der Bildung von wasserführenden Klüften in direkter Umgebung des Uranerzes trat kein signifikanter Urantransport entlang der Klüfte auf.

Die hydraulische Leitfähigkeit der das Uranerz umgebenden sedimentären Gesteine ist mit Werten zwischen 10^{-10} und 10^{-13} m/s sehr gering. Das Grundwasser vom Na^+ - HCO_3^- Typ ist stark reduzierend und schwach alkalisch (pH 8,7 - 9,5). Der Urangehalt im Grundwasser ist mit Werten zwischen 0,05 und 0,2 ppb sehr niedrig.

In mehr als 100 Proben aus dem Uranerz und dem direkt angrenzenden Gestein wurden Mineralphasen und Ungleichgewichtszustände in der Uranerfallsreihe analysiert. Die Ergebnisse deuten darauf hin, dass in den letzten Millionen Jahren permanent reduzierende Verhältnisse vorherrschten und die Uranmobilisierung bzw. -ausbreitung auf sehr langsame Diffusion in die Gesteinsmatrix und in Mikrorisse der Mineralkörner begrenzt blieb.

Die Analogastudie am Standort Tono ist bedeutend, weil sie demonstriert, dass das Uranerz während der letzten 10 Millionen Jahre nur geringfügig verändert wurde, obwohl in dieser Zeit immer wieder tektonische Aktivitäten in diesem Gebiet auftraten. Trotz einer Störungszone in unmittelbarer Umgebung des Uranerzkörpers hat kein signifikanter Urantransport entlang der Störungszone stattgefunden. Diese Aussage ist deshalb von großer Bedeutung, weil in den Endlagerkonzepten für Festgestein Klüfte und Störungen als wichtigster Transportpfad für Radionuklide angesehen werden. Die Tatsache, dass kein signifikanter Urantransport durch die Klüfte stattgefunden hat, legt nahe, dass bei Vorhandensein einer stabilen reduzierenden chemischen Umgebung im Nahbereich nicht notwendigerweise Uran aus der Abfallmatrix durch tektonische Aktivität mobilisiert und transportiert wird.

Ein besonderes Analogon für die Untersuchung der Mobilität von Radionukliden, wie sie bei der Uranspaltung entstehen, ist der Naturreaktor Oklo in Gabun (Abb. 16). Hier ist es vor ca. 2 Mrd. Jahren aufgrund der hohen Konzentration des Urans in den Pechblendelagen mit eingeschalteten Illiten und Chloriden und des damals noch sehr hohen Gehalts an spaltbarem U-235 durch Moderation mit Wasser unter hohem Druck zu einer natürlichen Kettenreaktion gekommen, deren Kritikalität mit Unterbrechungen über ca. 0,5 bis 1,0 Millionen Jahre andauerte. Da die Spaltreaktionen schon vor 1,97-1,95 Milliarden Jahren begonnen haben, sind die ursprünglich dabei entstandenen Radionuklide schon zerfallen. Dennoch lassen sich aufgrund der Isotopenverteilung der stabilen Tochternuklide Rückschlüsse auf die Mobilität der Radionuklide ziehen /LOS 05/.

Die Untersuchungen in Oklo haben gezeigt /BRO 84/, dass während der Kritikalitätsphase einige Elemente mobilisiert und transportiert wurden. Migriert sind beispielsweise Krypton, Molybdän, Cadmium, Iod, Xenon; eine lokale Migration hat bei Cäsium sowie Blei stattgefunden. Die Elemente Yttrium, Niobium, Rhodium, Palladium, Silber, Indium, Bismut, Polonium, Thorium, Neptunium, Plutonium und die Seltenen Erden wurden dagegen überwiegend retardiert. Zirkon ist überwiegend retardiert worden, eine Migration hat nur auf engstem Raum stattgefunden. Eine lokal begrenzte Migration hat auch bei den Elementen Technetium, Ruthenium, Barium sowie Uran, Rubidium und Strontium stattgefunden. Die Mobilität von Americium war nicht messbar. Nicht untersucht wurden die Elemente Zinn, Antimon, Tellur und Brom. Für letzteres wird nach /BRO 84/ eine Migration erwartet. Soweit feststellbar, bestätigen die Ergebnisse dieser Untersuchungen in Oklo die aus experimentellen Arbeiten bekannten Mobilitätseigenschaften der verschiedenen Elemente /ZET 00/.

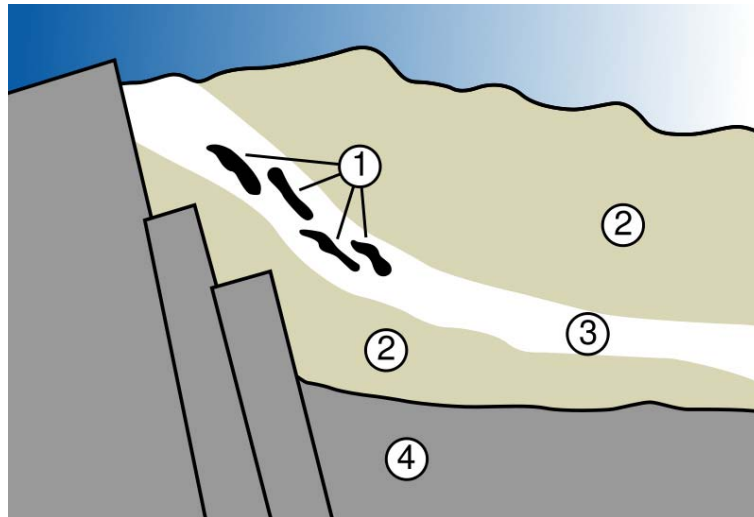


Abb. 16 Geologische Situation des Naturreaktors in Oklo, Gabun;
1 = Reaktorzonen, 2 = Sandstein, 3 = Erzflöz, 4 = Granit (nach
/DOE 04/)

4 Belastungsgrenzen / Selbstheilungseffekte

Bei der Errichtung eines Endlagers wird das Wirtsgestein gestört. Dies führt zu Veränderungen der hydraulischen und mechanischen Eigenschaften des Wirtsgesteins, wie z. B. der Ausbildung von Auflockerungszonen bei der Auffahrung von Strecken und Bohrungen. Ebenso treten während der Betriebsphase Veränderungen des geochemischen Milieus durch Eindringen von Luft in die Wirtsgesteinsformation auf. Langfristige Störungen ergeben sich aufgrund des Wärmeeintrags durch wärmeentwickelnde Abfälle und aufgrund von Wechselwirkungen des Formationswassers mit eingebrachten Abfällen und Versatzmaterialien.

Studien an geeigneten Analoga können dazu beitragen, Erkenntnisse über die Auswirkungen derartiger Belastungen auf die Wirtsgesteinsformation zu gewinnen und ebenso Informationen über Selbstheilungseffekte zu erhalten. Die nachfolgende Beschreibung greift für einzelne Wirtsgesteine wichtige Analogastudien heraus.

4.1 Salzgestein

Für das Wirtsgestein Salz existieren Studien zu Auswirkungen erhöhter Temperaturen auf die Integrität des Salzgesteins, wie auch Studien, welche Selbstheilungseffekte an der - durch die Auffahrung des Endlagers erzeugten - Auflockerungszone zum Inhalt haben /ROT 03/.

Auswirkungen hoher Temperaturen

Die Einlagerung wärmeentwickelnder Abfälle kann (konzeptbedingt) im Steinsalz zu Temperaturen von maximal 200°C führen. Die dadurch auftretenden Veränderungen lassen sich an Laborproben und mittels Erhitzer-Experimenten gut untersuchen. Zur Absicherung dieser Kenntnisse und zur Analyse der Auswirkung noch höherer Temperaturen über lange Zeit auf Struktur und Mineralzusammensetzung von Steinsalz in einer Teufe von 700 - 800 m können Untersuchungen von Basaltintrusionen in Steinsalzformationen beitragen.

Derartige Intrusionen traten beispielsweise in den geschichteten Zechsteinevaporiten des Werra-Fulda-Lagerstättenbezirks auf. Basaltische Schmelzen drangen während des Miozäns vor etwa 15 - 25 Millionen Jahren mit Temperaturen von 1150°C in das Salzgestein ein und erstarrten bevorzugt in den Steinsalzschiechten unter Bildung von

steil stehenden Basaltgängen. Das Steinsalz wurde hierbei im Kontaktbereich auf Temperaturen bis zu ca. 800°C aufgeheizt; die Temperaturen gingen aber relativ schnell zurück und waren nach einem Jahr auf <100°C abgefallen waren /KNI 89/, /STA 95/.

Ein typischer Basaltgang ist in Abb. 17 dargestellt. Der Durchmesser der Basaltintrusion in dieser Abbildung beträgt 30 cm. Deutlich erkennbar sind scharfe Übergänge zwischen Basalt und Salzgestein. Die feinen horizontalen und vertikalen Klüfte im Basalt sind hauptsächlich mit Anhydrit und Halit gefüllt. Die Kontaktzone besteht hauptsächlich aus Anhydrit, Kieserit und ferrodolomitischen Karbonaten.



Abb. 17 Basaltintrusion in Steinsalz in der Werra-Region /KNI 89/

An der Kontaktzone hat sich durch die schnelle Abkühlung der Schmelze Glas mit basaltischer Zusammensetzung gebildet. Im Steinsalz änderte sich der mineralogische und chemische Stoffbestand der wasserunlöslichen Minerale. Es hat sich gezeigt, dass Materialreaktionen und Materialtransport über flüssige Phasen (mit den eindringenden Basaltschmelzen vergesellschaftete Flüssigkeitsbestandteile) stattgefunden haben. Die Ausdehnung solcher Mineralveränderungen blieb im Na-reichen Steinsalz auf wenige Zentimeter Distanz von der Oberfläche der Basaltintrusion begrenzt und erreichte lediglich in K-Mg-Salzbändern eine Ausdehnung von bis zu 10 m.

Eine Mobilisierung von Lanthaniden als chemische Homologe für entsprechende Aktiniden, aus den alterierten basaltischen Gläsern konnte ebenso wenig nachgewiesen werden, wie aus den unlöslichen Silikatanteilen im Salzgestein. Trotz der hohen Temperaturen und signifikanter Stoffumsätze in den basaltischen Glas- bzw. Mineralphasen sind sowohl die ursprüngliche absolute als auch die relative Lanthaniden-Verteilung dort nicht verändert worden.

Diese Ergebnisse deuten darauf hin, dass hohe Temperaturen, die im Fall der Basaltintrusionen um mehrere 100°C höher lagen als sie bei der geplanten Einlagerung von wärmeentwickelnden Abfällen sein werden, nur geringe Auswirkungen auf die Stabilität der Steinsalzbarriere haben. Es zeigte sich eine nur sehr geringe Mobilität der Lanthaniden (als chemische Homologe für entsprechende Aktiniden) auch unter sehr hohen Temperaturen. Wichtige Unterschiede zur Endlagerung sind die sehr viel höhere Temperatur beim Eindringen des Basalts in das Salz, die relativ zur Endlagerung raschere Abkühlung des Basaltkörpers und der Salzumgebung sowie die räumliche Begrenzung der Einwirkung auf wenige 10er Meter.

Selbstverheilung

Auflockerungszonen (Excavation Damaged Zones, EDZ) bilden sich in allen Gesteinen als Folge der Auffahrung von Hohlräumen. In Salzformationen kann sich die Auflockerungszone bis 2 m in das Salz ausdehnen. Die Permeabilität der Auflockerungszone kann dabei gegenüber dem ungestörten Gestein um einige Größenordnungen erhöht sein. In Bereichen des Endlagers, in denen gering permeable Verschlüsse als Teil des Barrierenkonzepts verwendet werden, kann die erhöhte Permeabilität der Auflockerungszone zu einer Reduktion des Strömungswiderstands führen und damit einen erhöhten Lösungszufluss in diesem Bereich ermöglichen /WIE 03/.

Der primäre Grund für die Bildung von Auflockerungszonen sind durch die Auffahrung erzeugte Spannungen, die zu einer Dilatanz und damit zur Erhöhung der Porosität und Permeabilität im Gestein in der Umgebung der Auffahrung führen. Die Permeabilität kann wieder reduziert werden, wenn die Spannungen in einen homogenen Zustand übergehen, z. B. nach Auflaufen des Gebirges auf eine geotechnische Barriere.

Als anthropogen verursachtes Analogon wurden die Permeabilitätsverteilung und die Ausdehnung von Auflockerungszonen an verschiedenen Lokationen in der Schachtanlage Asse untersucht. Im Hinblick auf das Langzeitverhalten eines Endlagers ist dabei

das so genannte Dammjoch von besonderem Interesse. Diese Strecke wurde im Jahr 1911 aufgefahen und ein 25 m langer Abschnitt im Jahr 1914 mit einem Stahlgussrohr ausgekleidet. Der Resthohlraum zwischen Streckenoberfläche und Stahlguss-Liner wurde mit Beton verfüllt. Diese Strecke kann heute als ein technisches Analogon für die Entwicklung der EDZ um eine Strecke herangezogen werden, die mit einer Bentonit- oder Betonabdichtung verschlossen wurde, wie sie in Endlagerkonzepten im Salzgestein vorgesehen ist. Aus Untersuchungen zur Permeabilität und zu den Spannungsverhältnissen in der Auflockerungszone können Informationen über den Ausheilungsprozess über längere Zeiträume gewonnen werden /BRE 99/.

Wie schematisch in Abb. 18 gezeigt ist, wurden vier Bohrungen für Permeabilitätsmessungen verwendet. Sie wurden horizontal, vertikal und in einem Winkel von 45° durch das Stahlrohr in das Steinsalz gebohrt. Ein viertes Bohrloch wurde im nicht ausgekleideten Bereich der Strecke in die Streckensohle gebohrt, um einen Vergleichswert für eine offene Strecke zu haben. Die Permeabilitätsverteilung um das Dammjoch wurde durch Gasinjektionstests ermittelt und ist ebenfalls in Abb. 18 dargestellt.

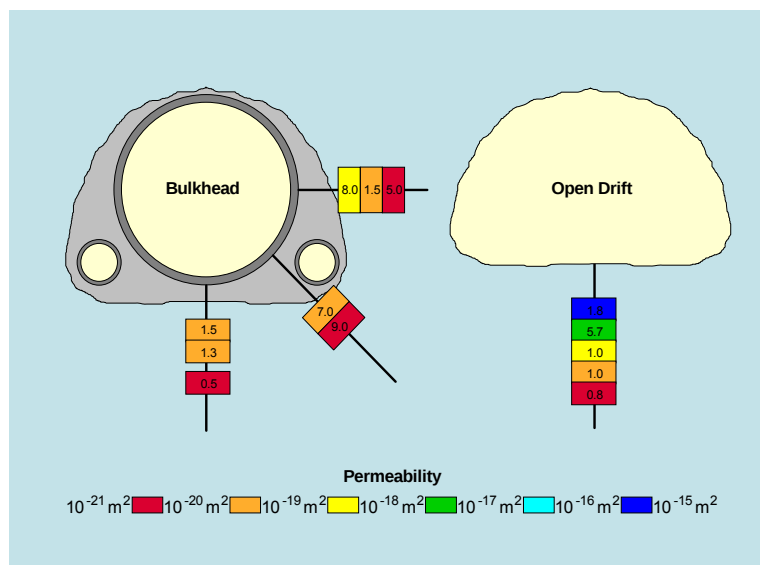


Abb. 18 Gemessene Permeabilitäten in Bohrungen um die ausgekleidete Strecke (links) und unterhalb der offenen Strecke (rechts)

Unterhalb der offenen Strecke entsprechen die Werte einer typischen Auflockerungszone, die auch nach ca. 90 Jahren Standzeit nicht verheilt ist. Ihre Ausdehnung beträgt etwa 1,5 m und ihre Permeabilität steigt auf Werte über 10^{-16} m^2 . Diese Ergebnisse sind in guter Übereinstimmung mit Messungen an vielen anderen Stellen in der Schachtanlage Asse. An allen untersuchten offenen Strecken wurde eine Ausdehnung

der EDZ in die Sohle von 1,5 m und an den Stößen von nicht mehr als 0,5 m beobachtet. Die Permeabilität erreicht Werte zwischen 10^{-16} m^2 bis 10^{-15} m^2 , im Gegensatz zu Permeabilitäten von 10^{-21} m^2 für das ungestörte Steinsalz.

Die Permeabilitäten um den ausgekleideten Teil des Dammjochs unterscheiden sich hiervon deutlich. Mit Ausnahme des Wertes in der horizontalen Bohrung nahe der Salzoberfläche liegen alle Permeabilitäten im Bereich von 10^{-19} m^2 und darunter. Sie sind damit deutlich niedriger als die typischen Werte für eine Auflockerungszone. Diese geringen Permeabilitäten sind die Folge eines Spannungszustandes, der durch eine hohe Normalspannung und eine vernachlässigbare deviatorische Spannung charakterisiert ist. Dies konnte durch begleitende Modellrechnungen bestätigt werden. Die ursprüngliche Permeabilität von ungestörtem Steinsalz wurde allerdings noch nicht erreicht. Mikrostrukturuntersuchungen an Kernen der ausgekleideten und offenen Strecke deuten darauf hin, dass die existierenden Mikrorisse weitgehend verschlossen, aber nicht verschwunden sind.

Die Ausheilung der EDZ ist nicht nur eine Funktion des Spannungszustands, sondern auch eine Funktion der Zeit. Die Zeitabhängigkeit konnte in dieser Studie nicht eindeutig bestimmt werden. Im Fall von natürlichem, trockenem Steinsalz mit einem Wassergehalt von etwa 0,2 Gew.-% wie in der Asse haben 90 Jahre unter hoher Kompressionsspannung und vernachlässigbarer deviatorischer Spannung nicht für eine vollständige Verheilung der EDZ um das Dammjoch ausgereicht. Die Studie zeigt aber deutlich, dass innerhalb dieser Zeit eine partielle Verheilung der EDZ mit einer Reduktion der Permeabilität um drei Größenordnungen eingetreten ist.

Die Studie ist repräsentativ für trockenes Steinsalz mit Wassergehalten um 0,2 Gew. %. Es ist zu erwarten, dass der Verheilungsprozess bei Steinsalz mit einem höheren Wassergehalt schneller verläuft. Außerdem ist der Verheilungsprozess abhängig von der spannungsinduzierten Konvergenz; beispielsweise kann die Existenz von Anhydritbändern die Konvergenz drastisch reduzieren. Dies muss bei der Übertragung der Ergebnisse auf andere Salzformationen berücksichtigt werden.

Kompaktion von Versatz

Es ist geplant, Resthohlräume in Endlagern in Salzformationen weitgehend mit Salzversatz zu verfüllen. Nach Verschluss des Endlagers werden die verbliebenen Resthohlräume im Endlager durch den Konvergenzprozess verschwinden und das Ver-

satzmaterial kompaktiert. Als Folge der Kompaktion werden die Porosität und damit auch die Permeabilität des Versatzes reduziert. Der damit verbundene Anstieg der Steifigkeit des Versatzes führt zu einem Widerstand des Versatzkörpers gegen das auf den Versatz auflaufende Gebirge. Mit zunehmendem Stützdruck des Versatzes nimmt die Konvergenzrate der Hohlräume sukzessive ab.

Wie im Fall der Verheilung von Auflockerungszonen verlaufen auch die gesteinsmechanischen Prozesse bei der Kompaktion über sehr lange Zeiträume, die nicht von Laborexperimenten abgedeckt werden. Als Analoga für die Kompaktion können ebenfalls anthropogene Maßnahmen herangezogen werden. Aus der Untersuchung von Versatzmaterial, das in versetzten ehemaligen Bergwerken über Jahrzehnte kompaktiert wurde, können Informationen über den Langzeit-Kompaktionsprozess gewonnen werden (Abb. 19). Notwendige Voraussetzungen sind Kenntnisse über die Eigenschaften des eingebrachten Versatzes, über die Entwicklung der versetzten Hohlräume und über die geologischen Verhältnisse in der Umgebung.

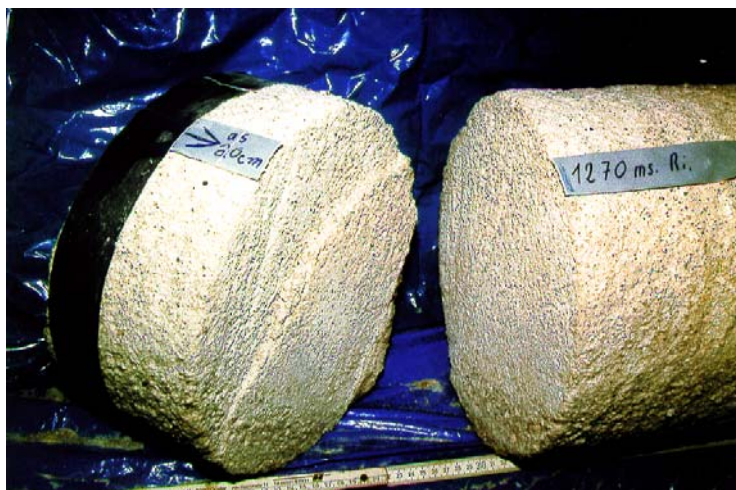


Abb. 19 Endstücke eines Bohrkerns aus einer Bohrung in den Altversatz von der 1260/1275 m-Sohle des Salzbergwerks Riedel

Neben der Formulierung geotechnischer Anforderungen wurden Modellrechnungen für unterschiedliche Eigenschaften und Auslegungen eines Endlagers im Salzgestein durchgeführt, um geeignete Analogastandorte zu finden. Konkretes Ziel war es, Bedingungen zu identifizieren, unter denen eine erhebliche Reduktion der ursprünglichen Versatzporosität von 40 % auf Werte von ca. 10 % zu erwarten sind. Die Modellrechnungen zeigen, dass an Standorten, an denen stützende Anhydritschichten vorhanden sind, die Konvergenz so langsam erfolgt, dass innerhalb einiger 100 Jahre keine signi-

fikante Kompaktion zu erwarten ist, diese Standorte also nicht geeignet sind. An Standorten ohne Anhydritschichten sind Versatzporositäten $<10\%$ ab Teufen von 800 m zu erwarten. Erste Proben aus entsprechenden Teufen an den als geeignet identifizierten Untersuchungsstandorten Salzdetfurth und Riedel zeigen, dass eine deutliche Kompaktion stattgefunden hat. Weiterführende Untersuchungen wurden bisher nicht durchgeführt.

4.2 Tongestein

Neben Ton- bzw. Tonstein als Wirtsgesteinsformation spielen tonhaltige Materialien, insbesondere Bentonit, als Puffer- oder Versatzmaterial in vielen Endlagerkonzepten eine wichtige Rolle. Eine sehr wichtige Eigenschaft der Tone, speziell der Smekтите, ist dabei deren Quellfähigkeit. Diese Quellfähigkeit soll bei Verwendung von trockenem, vorkompaktierten Bentonit dazu führen, dass bei Wiederaufsättigung mit Wasser durch den Quellvorgang die Hohlräume um die Behälter effizient abgedichtet werden und aufgrund der geringen Permeabilität des Tons dann ein advektiver Schadstofftransport unterbunden wird. Weitere wichtige Eigenschaften von Ton sind dessen hohe Sorptionskapazität sowie die langfristige Pufferung des chemischen Milieus. Veränderungen dieser Eigenschaften können durch Wechselwirkung mit Grundwasser, speziell aber durch hohe Temperaturen auftreten.

In zahlreichen Studien wurde die Veränderung mineralogischer und physikalischer Eigenschaften, die durch Wechselwirkung von Bentonit mit im Grundwasser enthaltenen Ionen auftreten, untersucht. Umwandlungen des Bentonits, beispielsweise von Smektiten in Illite, führen zu einem Verlust seiner Quellfähigkeit, was eine Zunahme seiner Permeabilität bzw. zu Rissbildungen und damit zu einer Abnahme der hydraulischen Barrierefunktion führen kann. Die Ergebnisse vieler Studien deuten darauf hin, dass die Umwandlungsprozesse sowohl kinetisch gehemmt als auch durch ein begrenztes Angebot von Grundwasserionen wie Kalium limitiert sind. Dadurch kann es in den Zeiträumen, die für Langzeitsicherheitsanalysen relevant sind, nicht zu einem vollständigen Verlust der Quellfähigkeit des Bentonits kommen (z. B. /PUS 87/).

Auswirkungen hoher Temperaturen auf die Eigenschaften des Tons

Insbesondere in der Nähe von Abfallbehältern mit wärmeentwickelnden Abfällen treten hohe Temperaturen auf, aber auch entferntere Wirtsgesteinsbereiche werden aufgrund der Wärmeleitung von der Zerfallswärme erreicht. Es ist aus Laborversuchen und aus

der praktischen Anwendung von Tonen bekannt, dass diese bei hohen Temperaturen weit über 100°C Umwandlungen unterworfen sind. Insbesondere die wärmeinduzierte Auflösung von Smektiten und die Ausfällung von silikatischen Mineralen (Zementation) können zu deutlichen und irreversiblen Änderungen der rheologischen Eigenschaften der Tone führen. Die Abhängigkeiten lassen sich unter kontrollierten Laborbedingungen gut untersuchen.

Verschiedene Bentonite aus Sardinien wurden von /PUS 88/ untersucht. Aus diesen Untersuchungen geht klar hervor, dass in einem Temperaturbereich von 150°C bis 200°C die oben erwähnten Zementationsprozesse stattgefunden haben. Von den Autoren wurde eine kritische Temperatur von 150°C angegeben, ab der eine Umwandlung von Montmorillonit zu Beidellit stattfindet. Weiterhin wurde auch die Bildung von Illit/Smektit-Wechselagerungen beobachtet, deren Ausmaß stark von der Verfügbarkeit von Kaliumionen abhängt.

Als weitere Natürliche Analoga für die Einwirkung von Wärme auf Tone wurde von Arbeitsgruppen in Großbritannien (Isle of Skye), in Frankreich (Col du Perthus) und Italien (Orciatico) die Einwirkung natürlicher Magma-Einschlüsse auf ihre tonige Umgebung untersucht /PEL 99/. Dabei ließ sich der Temperatureinfluss durch Beprobungen in variabler Entfernung (von einigen Zentimetern bis zu einigen Metern) zum Einschluss erfassen. Der Vorteil der Wahl dieser Analoga ist, dass die Temperatureinwirkung sehr lange andauert hat und danach ein sehr langer Zeitraum für das Abklingen der temporären Veränderungen (Abheileffekte) vorliegt. /PEL 99/ fanden heraus, dass sich die thermische Einwirkung auch nach den sehr langen Zeiträumen, die seit den Ereignissen vergangen sind (Isle of Skye: einige 10 Mio. Jahre; Col du Perthus 1,7-2 Mio. Jahre; Orciatico: 4,1 Mio. Jahre), in allen drei Fällen eindeutig nur in den angrenzenden Tonschichten auswirkt.

Die spezifischen Veränderungen im Tongefüge und in den Toneigenschaften waren vielfältig und variabel. Es ließ sich keine Leitgröße herausarbeiten, aus der auf einfache Weise z. B. ein Anhaltspunkt für die Festlegung einer kritischen Obergrenze für die Erwärmung des Tons für ein Endlager ableitbar wäre. Als Ergebnis einer Optimierung verschiedener beobachteter Einflussgrößen plädieren die Autoren für einen Grenzwert von 100°C. Diese Empfehlung deckt sich mit Ergebnissen, die aus Laborversuchen abgeleitet wurden und bestätigt diese damit.

Die Untersuchung dieses Analogons zeigt, dass die Bestätigung von systematischen Laboruntersuchungen mit Hilfe natürlicher Analoga einen wertvollen Beitrag zur Vertrauensbildung unter den Experten leisten kann und die wesentlich längere Zeitdimension des Analogons die aus Laborversuchen bekannten Resultate ideal ergänzt.

Auswirkungen alkalischer Lösungen

In einigen Endlagerkonzepten ist vorgesehen, zementhaltige Produkte zu verwenden. Einerseits können mit Zement verfestigte mittelfradioaktive Abfälle eingebracht werden, andererseits kann Zement oder Beton zum Ausbau von Strecken bzw. zur Verfüllung von Endlagerbereichen verwendet werden. Bei der Korrosion von Zementprodukten entstehen über lange Zeiträume hochalkalische Lösungen, die mit den Gesteinskomponenten der Wirtsgesteinsformation in Wechselwirkung treten. Derartige Wechselwirkungen können zur begrenzten Auflösung sowie zur Fällung und Neubildung von Mineralphasen in Puffer und Wirtsgestein und damit zu Änderungen der Porosität führen. Ebenso können auch die Rückhalteeigenschaften des Gesteins für Radionuklide verändert werden. Damit ist eine Beeinträchtigung der Integrität der Barrieren möglich. Das Studium Natürlicher Analoga bietet die Möglichkeit, über geologische Zeiträume ablaufende Umwandlungsphänomene und deren Auswirkungen auf im Endlagersystem stattfindende Prozesse zu untersuchen.

Natürliche hochalkalische Systeme sind selten in der Natur. Sie werden beispielsweise in Jordanien und Israel angetroffen /SME 98/. Wichtige Analogastudien wurden in Maqarin (Nordwest-Jordanien) sowie in Zentral-Jordanien durchgeführt /GEY 98/. Die natürlichen Verhältnisse an diesen Standorten weisen eine große Ähnlichkeit mit einem Endlagersystem auf (Abb. 20).

Am Standort Maqarin bilden sich alkalische Wässer mit pH-Werten von bis zu 12,9 durch Auslaugung von natürlichen Zementmineralen. Dort haben sich Klinkerkörper pyrometamorph in einer bituminösen Kalksteinformation gebildet. Die Hydratisierung und Rekarbonatisierung der Klinkerkörper hat zur Bildung der natürlichen Zementkörper, u. a. Portlandit, Ca-Si-Hydrate und Calcit, geführt. In Jordanien existieren Standorte mit drei verschieden stark alkalischen Wässern, die verschiedene Stadien in der Entwicklung eines Endlagers mit zementierten Abfällen repräsentieren:

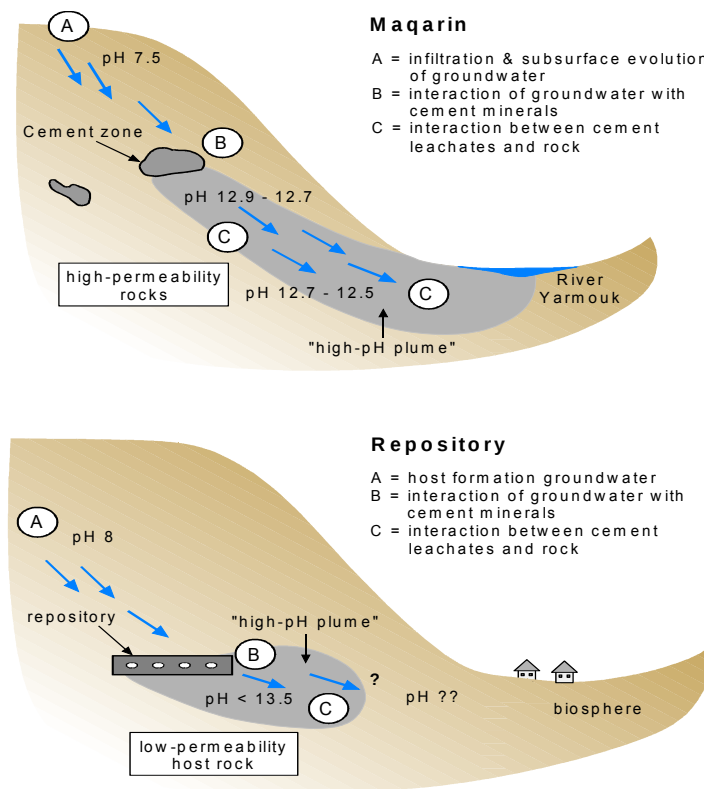


Abb. 20 Standort Maqarin als Analogon für die Migration einer Hoch-pH-Fahne durch ein Endlager in permeablen Gesteinen /MIL 00/

- Frühes Stadium mit sehr hohen pH-Werten (NaOH / KOH-Laugen) in den Quellen im westlichen Bereich von Maqarin
- Mittleres Stadium mit weniger hohen pH-Werten ($\text{Ca}(\text{OH})_2$ gepuffert) in den Quellen im östlichen Bereich von Maqarin
- Spätes Stadium mit fast neutralen pH-Werten (Silikat-dominierte Lösungen) in der Khushaym Matruk-Region in Zentral-Jordanien.

Die typischen Stadien, die während des Transports einer hochalkalischen Fahne durch Wechselwirkung mit Aluminiumsilikat-führenden Gesteinstypen auftreten, sind schematisch in Abb. 21 dargestellt. Die erste Phase der Zersetzung von Portlandzement ist durch K-Na-reiche Hydroxidlösungen als Folge der bevorzugten Auslaugung von Alkalien geprägt, die dann in eine mittlere, lang anhaltende Phase mit Auswaschung von $\text{Ca}(\text{OH})_2$ übergeht, die bis zu dessen Verbrauch andauert und vereinfacht durch eine gesättigte Ca-Hydroxid-Lösung dargestellt werden kann. Die Reaktion der Hoch-pH-Fahne mit dem Gestein entlang des Transportwegs führt zu einer Abnahme des pH-

Werts und der Gehalte an Na, K und Ca, während die Al- und Si-Gehalte zunehmen. Entsprechend finden sich im Bereich des Endlagers CSH-Phasen, die im Gleichgewicht mit der Lösung stehen. In Transportrichtung bilden sich aufgrund ansteigender Al- und Si-Konzentrationen CSH-Phasen. An der Front der Hoch-pH-Fahne können bei hohen Al- und Si-Gehalten und geringeren pH-Werten Zeolithe ausfallen.

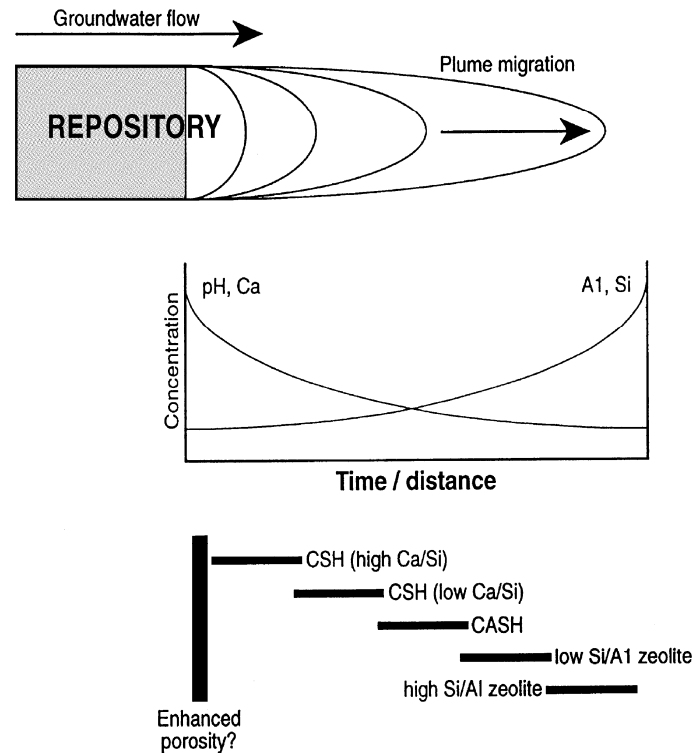


Abb. 21 Konzeptuelles Modell für die Entwicklung einer hochalkalischen Fahne /LIN 98/

Das Analogon-Programm in Jordanien weist mittlerweile ein konsistentes Bild auf, was die Bildung hochalkalischer Wässer, Beständigkeit alkalischer Porenwässer und die Folge von Alterationen, die durch Reaktionen mit dem Wirtsgestein stattfinden, betrifft. Die wesentlichen Ergebnisse aus vier Projektphasen zeigen folgendes Bild:

- Das konzeptuelle Modell für die Entwicklung einer alkalischen Fahne in einer Tonformation ist weitgehend konsistent mit den Beobachtungen an den untersuchten Standorten.
- Hochalkalische Bedingungen in Porenwässern durch Mineralphasen analog den in Zementen im Endlager vorgesehenen Phasen treten über sehr lange Zeiträume auf (> 100.000 Jahre).

- Sekundäre Zementphasen (auch metastabile amorphe Phasen und Gele), die sich bei Auslaugung und der Wechselwirkung mit dem Gestein bilden, können über lange Zeiträume stabil sein, sofern sie vom Grundwasser isoliert sind.
- Die derzeitigen Modelle und Datenbasen zur Berechnung der Löslichkeit sicherheitsrelevanter chemischer Elemente in hochalkalischen Lösungen liefern konservative Werte, d. h. die Löslichkeiten werden überschätzt.
- Die an der Grenzfläche Zement / Wirtsgestein gebildeten Kolloidmengen sind gering. Allerdings war es bisher nicht möglich, die Front der alkalischen Fahne zu ermitteln und die Kolloidpopulationen dort, wo sie durch extreme Änderungen in den chemischen Bedingungen erhöht sein können, zu bestimmen.
- Die Mineralphasen, die von thermodynamischen und gekoppelten Modellen für die verschiedenen Bedingungen entlang einer alkalischen Fahne vorhergesagt werden, stimmen mit den in verschiedenen Grundwassersystemen beobachteten Mineralphasen überein.
- Es wurde beobachtet, dass Klüfte mit geringen Öffnungsweiten in Wirtsgestein und Zement langfristig verheilen. Eine solche Selbstversiegelung wird auch von gekoppelten Modellen zur Wanderung einer Hoch-pH-Front in Tonstein vorhergesagt.
- Diffusionskontrollierte Gesteinsumwandlungen führen selbst nach einigen 10.000 Jahren nur im Bereich von Millimetern bis wenigen Zentimetern Eindringtiefe zu Umwandlungen.

Diese Studie zeigt sehr anschaulich, wie ein Analogon zur Entwicklung und Absicherung eines konzeptuellen Modells und damit zu dessen Glaubwürdigkeit beitragen kann.

4.3 Festgestein

Zur Beschreibung der Auswirkung tektonischer Ereignisse auf die Wasserführung von Graniten wurde bereits auf die Studie /YOS 00/ an japanischen Graniten eingegangen. Diese hat gezeigt, dass Klüfte in Graniten des orogenen Gürtels im Wesentlichen während der Abkühlung des Granitkörpers nach seiner Platznahme gebildet wurden. Tek-

tonische Ereignisse haben nicht zu einer Erhöhung der Klufthäufigkeit und langfristig auch nicht zu veränderten Kluftseigenschaften geführt.

Auswirkungen veränderter klimatischer Bedingungen

Ein weiteres wichtiges externes Ereignis, das Einfluss auf die Integrität eines Endlagersystems haben kann, ist das Auftreten von Eiszeiten. Auch hier haben Natürliche Analoga zum Verständnis, speziell aber auch zur Entwicklung von Szenarien für die Langzeitsicherheitsanalyse beigetragen. Dies soll beispielhaft für Granite dargestellt werden, da hierzu die umfangreichsten Arbeiten vorliegen und für diese Formationen wahrscheinlich auch die größten Konsequenzen zu erwarten sind.

Das Auftreten von Eiszeiten führt sowohl zu mechanischen Beanspruchungen als auch zu Veränderungen des Grundwasserchemismus. Aufgrund der Ausbildung von hohen Eislasten kommt es zu isostatischen Bewegungen. Speziell beim Abschmelzen der z. T. mehrere 1000 m mächtigen Eisbedeckungen kann es durch isostatische Hebungen im Grundgebirge zur Ausbildung neuer bzw. zur Reaktivierung alter Klüfte kommen. Sofern diese Klüfte bis in Endlagerteufen reichen, können sie zu einem erhöhten Grundwasserfluss und schnelleren Radionuklidtransport führen.

Solche postglazialen Störungen wurden intensiv an einer entsprechenden Störungzone in Lansjärv in Nordschweden untersucht /BAE 89/. Aus den Untersuchungen geht hervor, dass die postglazialen Ereignisse fast ausschließlich zu einer Reaktivierung prä-quartärer Störungen und nicht zur Ausbildung neuer Klüfte führten. Die Ausbildung neuer Klüfte blieb beschränkt auf einen Bereich von wenigen Metern um die vorhandenen Störungszonen. Es scheint also, dass die postglazialen tektonischen Bewegungen durch bestehende Strukturen gepuffert werden. Ergebnisse dieser Art können nicht aus Laborexperimenten erhalten werden.

Während einer Eisbedeckung und während des Wiederabschmelzens des Eises können große Mengen Glazialwasser entstehen und bis in tiefe Bereiche der Wirtsgesteinsformation vordringen. Diese Wässer zeichnen sich durch einen hohen Sauerstoffgehalt und eine geringe Mineralisierung aus. Ein hoher Sauerstoffgehalt kann zur Oxidation von redoxsensitiven Radionukliden führen und damit deren Mobilität erheblich erhöhen. Aber auch die geringe Mineralisierung kann die Integrität des Endlagers erheblich beeinträchtigen. Da die Stabilität von Kolloiden in gering mineralisierten, neutralen Wässern relativ hoch ist, ist es möglich, dass durch solche Wässer Bentonit-

kolloide am Außenrand des Puffers in erhöhtem Maße gebildet und abtransportiert werden. Über lange Zeiträume kann das zu einer starken Reduktion der Permeabilität dieser technischen Barriere führen.

Hierzu wurden folgende Ergebnisse aus Analogastudien, insbesondere am Standort Palmottu, herangezogen. Anhand von Analysen der stabilen Isotope in Grundwässern von Palmottu zeigte sich, dass Wässer mit sehr niedrigen $\delta^{18}\text{O}$ -Werten, d. h. Wässer, die bei extrem niedrigen Umgebungstemperaturen an der Erdoberfläche infiltriert sind, bis in etwa 350 m Tiefe vorkommen. Entsprechende Beobachtungen an anderen Standorten in Schweden und Finnland zeigen, dass Glazialwässer sogar bis in 1000 m Tiefe, also Endlagerteufen vordringen können. Die Ergebnisse zeigen aber auch, dass es aufgrund der hohen Redoxpufferkapazität der Formation unwahrscheinlich ist, dass die oxidierenden Bedingungen in typischen Endlagerteufen von >300 m erhalten bleiben.

5 Materialverhalten

Natürliche Analoga können auch wichtige Informationen zum Langzeitverhalten von Materialien liefern, die als technische Barrieren im Endlager verwendet werden. Hierzu gehören die Abfallmatrix, der Abfallbehälter sowie Materialien, die als Puffer, Versatz oder Verschlussbauwerke eingesetzt werden. Die wichtigsten Materialien für die einzelnen Komponenten sind:

- Abfallmatrix: Silikatglas bzw. abgebrannter Brennstoff, mineralische Abfallformen, u. U. auch Bitumen
- Behälter: Stahl, Kupfer
- Versatz/Verschluss: Zement, Beton, Ton (Bentonit)

Nachfolgend wird aufgezeigt, in welcher Weise natürliche und anthropogene Analoga zum Verständnis des Langzeitverhaltens der einzelnen Materialien beitragen können. Auf das Verhalten von Tonen wurde bereits im vorangegangenen Abschnitt eingegangen, da Tongestein auch als Wirtsgesteinsformation von Bedeutung sind. Aus diesem Grund werden Tone bzw. Bentonit in diesem Kapitel nicht mehr behandelt.

5.1 Glas

Borsilikatglas (bisweilen auch als Borosilikatglas bezeichnet) wird für die Verfestigung von hochaktiven Abfällen verwendet. Im Falle eines Wasser- bzw. Lösungszutritts in Einlagerungsbereiche eines Endlagers wird es nach einem Ausfall der Barrierewirkung der Behälter zur Korrosion der Glasmatrix kommen. Wichtige Prozesse im Zusammenhang mit der Endlagerung sind Entglasung, d. h. die Kristallisation der Glasmatrix, Korrosion und Auflösung der Matrix, Freisetzung von Radionukliden sowie die Rückhaltung von verschiedenen Radionuklidspezies in sekundär gebildeten Mineralphasen. Auflösung und Korrosion des Glases sind abhängig von der Glaszusammensetzung, der Temperatur, dem Wasser-/Glas-Verhältnis, der Kontaktzeit, der Wasserchemie und den Fließbedingungen.

Analogastudien wurden hauptsächlich zur Untersuchung der Langzeitstabilität der Glasmatrix durchgeführt. Bei Analogastudien zu Gläsern ist grundsätzlich zu unterscheiden zwischen natürlichen Gläsern und archäologischen Objekten, also anthropogen hergestellten Gläsern. Natürliche Gläser entstehen durch eine sehr schnelle Ab-

kühlung von Lava oder Magma, bei der es nicht zu einer Ausbildung von Mineralphasen kommt. Neben eher exotischen Gläsern mit ungewöhnlichen Zusammensetzungen (z. B. vom Mond) ist hauptsächlich zu unterscheiden zwischen silikatreichen, vulkanischen und silikatarmen, basaltischen Gläsern (vgl. Tab. 4). Basaltische Gläser zeigen die größte Ähnlichkeit zu Borsilikatglas hinsichtlich

- der chemischen Zusammensetzung, insb. aufgrund ihres geringeren Silikatgehalts (50 - 60 % SiO_2), siehe Tab. 4,
- der Alterationsprodukte,
- ihrer Struktur und Morphologie und
- der beobachteten Korrosionsraten.

Es muss allerdings einschränkend berücksichtigt werden, dass Bor in den meisten natürlichen Gläsern nur in Spurenkonzentrationen vorkommt, während die technischen Borsilikatgläser Borgehalte von bis zu 20 % aufweisen.

Tab. 4 Beispiele für die chemische Zusammensetzung [Gew. %] dreier typischer natürlicher Gläser im Vergleich zum Glas einer Abfallmatrix (nach /MAZ 94/)

	Basaltisches Glas	Rhyolitisches Glas	Tektitisches Glas	SRL 165 Borsilikatglas
SiO_2	50,7	74,9	74,4	52,86
Al_2O_3	11,7	14,2	12,17	4,08
Na_2O	4,5	4,68	1,32	10,85
K_2O	0,7	4,59	2,61	0,19
CaO	10,6	0,53	1,52	1,62
MgO	6,7	0,02	1,85	0,70
FeO	-	0,49	-	-
Fe_2O_3	13,1	0,29	5,58	11,74

Da es sich bei Glas um eine metastabile Substanz handelt, kann es über lange Zeiträume zu einer Umwandlung in stabile Mineralphasen kommen. Diese Veränderung kann zu einer beschleunigten Korrosion der Matrix führen /LUT 88/. In den meisten natürlichen Gläsern sind Spuren einer solchen Entglasung zu beobachten. Die beobachteten Zeiträume für eine vollständige Entglasung variieren zwischen einigen 1.000 und einigen 10 Millionen Jahren. Eine wichtige Beobachtung ist, dass Entglasung durch

Vorhandensein von Wasser beschleunigt wird. Diese Aussage wird gestützt durch die Ergebnisse von Untersuchungen an mehr als 3,5 Milliarden Jahre alten Gläsern vom Mond (wo kein freies Wasser existiert), an denen nur geringe Spuren von Entglasung nachzuweisen sind. Diese Erkenntnis ist insbesondere für Endlagerkonzepte mit sehr langen Behälterlebensdauern wichtig, bei denen der Wasserzutritt zur Glasmatrix über mehrere 10.000 oder sogar 100.000 Jahre verhindert werden soll. Quantitative Aussagen zur Entglasungsdauer von Borsilikatgläsern in einem Endlager können daraus nicht abgeleitet werden, da in den meisten Fällen Informationen über die Zusammensetzung der anstehenden Wässer und die thermischen Bedingungen in der Vergangenheit fehlen. Als mittleres Alter natürlicher Gläser werden 2 Millionen Jahre angegeben /MIL 00/. Daraus kann die qualitative Aussage abgeleitet werden, dass Entglasung auf der Zeitskala der Langzeitsicherheitsbewertung kein signifikantes Problem darstellt.

Bei der Alterung von Gläsern spielen Ionenaustauschprozesse, Hydrolysereaktionen und Ausfällungsreaktionen sekundärer Mineralphasen eine wichtige Rolle. Diese Prozesse führen dazu, dass sich an der Glasoberfläche unterschiedliche Schichten aufbauen. An das nichtkorrodierte Glas schließt sich beim Alterungsvorgang eine dünne Diffusionsschicht an, in der leicht lösliche Elemente wie Bor, Lithium oder Natrium angereichert sind. Daran grenzt eine Schicht mit amorphen, Gel-ähnlichen Phasen. In einer äußeren Schicht bilden sich Tonmineralphasen und Zeolithe aus (vgl. Abb. 22). Die Bildung dieser Schichten kann dazu führen, dass die Glaskorrosionsraten über lange Zeiträume abnehmen, da Diffusionsprozesse durch die neu gebildeten Schichten die Korrosion verlangsamen und für den gesamten Korrosionsprozess geschwindigkeitsbestimmend werden. Die Untersuchung natürlicher Analoga kann daher insbesondere zur Ermittlung von experimentell schwer zugänglichen Langzeitkorrosionsraten beitragen.

Im Rahmen vieler Analogastudien konnten die bei der Glaskorrosion neu gebildeten Phasen, die in Laborexperimenten beobachtet wurden, auch in den veränderten Oberflächenschichten natürlicher Gläser gefunden werden. Häufig wurde bei basaltischen Gläsern als amorphe, Gel-ähnliche Phase Palagonit identifiziert. Ebenso konnte gezeigt werden, dass Palagonit nach langen Zeiträumen durch kristalline Zeolithphasen ersetzt wird /CRO 92/. Diese Untersuchungen sind insofern von großer Bedeutung, als sie die in Laborversuchen entwickelten Modelle stützen.

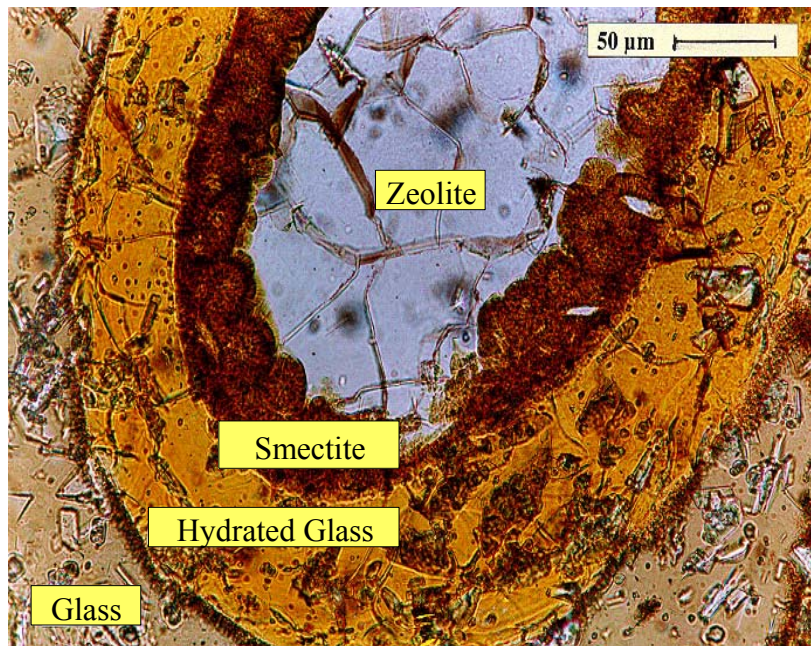


Abb. 22 Mineralphasen in korrodiertem basaltischen Glas aus Vatnajökull Island /BER 02/

Die Ableitung quantitativer Informationen, wie z. B. Korrosionsraten, ist generell schwierig. Großen Einfluss auf die Glasauflösung haben hydraulische Bedingungen und Parameter wie Temperatur sowie geochemische Eigenschaften der Lösung (insbesondere pH- und Eh-Wert), außerdem die Silikatkonzentration. So ist es bei diesen Analogastudien besonders relevant, ob diese Bedingungen über den gesamten Zeitraum vorhanden waren oder sich in der Vergangenheit verändert haben. In einer Untersuchung von /GRA 86/ an natürlichen Gläsern konnte beispielsweise ein Zweiphasenprozess nachgewiesen werden. In der ersten Phase war das Glas auf dem Meeresgrund salzhaltigem Wasser direkt ausgesetzt. In diesem Zeitraum lagen die Auflösungsraten relativ hoch und es bildeten sich aufgrund des geringen Silikatgehalts des Meerwassers keine authigenen Zementphasen. Im zweiten Stadium, als das Glas von pelagischen Sedimenten bedeckt war, stieg die Silikatkonzentration im Porenwasser schnell an und es bildeten sich authigene Zementphasen auf dem Glas, die bewirkten, dass der Transport nur noch diffusiv erfolgte. Die dann beobachteten Auflösungsraten lagen um mehrere Größenordnungen niedriger.

Ein weiterer wichtiger Aspekt sind Unterschiede zwischen den Randbedingungen der Studie und denen in einem Endlager. Im Endlager ist nur ein sehr geringer Wasserfluss zu erwarten, z. B. bei Vorhandensein von Bentonitpuffern um die Behälter. Der Transport in einem solchen System erfolgt vorwiegend diffusiv. Außerdem sind die chemi-

schen Bedingungen um die Behälter meist reduzierend und schwach alkalisch. In Analogastudien ist dagegen der Wasserzutritt häufig nicht begrenzt und die Wässer sind meistens oxidierend sowie neutral bis schwach sauer. Daher können in Analogastudien beobachtete Korrosionsraten normalerweise nicht direkt verwendet werden, sondern stellen allenfalls unter Extrembedingungen ermittelte Obergrenzen dar.

Neben natürlichen Gläsern existieren zahlreiche archäologische Gläser, d. h. solche, die von Menschen angefertigt wurden. Gläser werden seit etwa 3 500 Jahren produziert, wobei die ältesten bisher gefundenen Gläser aus Ägypten stammen.

Zur Untersuchung von Effekten, die durch die Strahlung von Radionukliden hervorgerufen werden, eignen sich natürliche Gläser aufgrund ihrer geringen Gehalte an Radionukliden nicht, da die Gehalte die natürliche Hintergrundstrahlung nicht übersteigen. Für die Untersuchung solcher Effekte könnten aber Gläser, die im 18. Jahrhundert durch Beimischung von Metalloxiden koloriert wurden, herangezogen werden. Manche dieser Gläser enthalten bis zu 5 % Uran. Bisher wurden solche Experimente aber noch nicht durchgeführt.

Ein weiterer wichtiger Prozess im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalyse ist die Rückhaltung von Radionukliden in sekundären Mineralphasen. Trotz der großen Anzahl an Analogastudien zur Glaskorrosion wurden nur in wenigen Fällen die Rückhalteigenschaften sekundärer Korrosionsprodukte untersucht. In Analogastudien an Island-Basalten wurde das Verhalten von Seltene-Erden-Elementen (SEE) als Homologe für dreiwertige Aktiniden untersucht [BER 02/, /DAU 91/]. Für Lanthanide deuten begleitende Massenbilanz-Rechnungen darauf hin, dass der Einbau in sekundäre Mineralphasen eine bedeutendere Rolle spielt als die Sorption. Dies steht im Einklang mit Ergebnissen aus Laborversuchen.

Generell dienen Analoga von Gläsern zur Demonstration der Stabilität und Haltbarkeit von Glas, besonders auch im Dialog mit der Öffentlichkeit. Das Vorhandensein zahlreicher natürlicher Gläser mit einem Alter von mehr als einer Million Jahre ist ein wichtiges Indiz für die Haltbarkeit von Glas, trotz seines metastabilen Charakters, und trägt zur Vertrauensbildung bei.

5.2 Uranmatrix

In den meisten Reaktoren wird UO_2 als Brennstoff verwendet. Bei der direkten Endlagerung von abgebranntem Brennstoff werden die Brennstäbe und Brennelement-Teile in entsprechenden Behältern in Bohrlöchern oder Strecken in der Wirtsgesteinsformation eingelagert. In den Szenarien, in denen ein Wasser- oder Lösungszutritt zu den Einlagerungsbereichen untersucht wird, steht nach einem Behälterausfall Wasser in Kontakt mit den Brennstäben. In den meisten Langzeitsicherheitsanalysen wird nicht davon ausgegangen, dass die Zircaloy-Hülle der Brennstäbe einen langzeitigen Schutz für die UO_2 -Pellets gewährleistet, d. h. es kommt zur Korrosion der UO_2 -Matrix und zur Freisetzung darin enthaltener Radionuklide.

Die Mechanismen bei der Auflösung der Uranmatrix sind mit kurzzeitigen Laborversuchen unter kontrollierten Bedingungen gut untersucht. Natürliche Analoga sichern diese Untersuchungen an natürlich vorkommenden Materialien ab. Als analoge Materialien für den Brennstoff in Reaktoren kommen Uraninit und Pechblende in Frage, wobei Uraninit die gleiche Struktur wie UO_2 -Brennstoff aufweist. Es ist allerdings zu beachten, dass prinzipielle Unterschiede existieren. Zum einen enthält abgebrannter Brennstoff trotz eines UO_2 -Anteils von $>95\%$ viele Spaltprodukte. Dagegen enthält Uraninit normalerweise einen höheren Anteil an nicht radioaktiven Substanzen, wie z. B. Blei. Zum anderen war UO_2 -Brennstoff im Reaktor viel höheren Temperaturen und Temperaturgradienten ausgesetzt als die meisten natürlichen Uraninit-Anreicherungen. Sowohl die Temperaturgradienten, die Spaltprodukte selbst sowie auch die Strahlung durch die Spaltprodukte können im Brennstoff Rissbildungen und Gitterdefekte und damit eine erhöhte Reaktivität gegenüber wässrigen Lösungen zur Folge haben.

Die UO_2 -Matrix stellt eine wichtige Barriere für die Radionuklide dar. Aus diesem Grund existieren zahlreiche Untersuchungen zur Korrosion von abgebranntem Brennstoff und zur Freisetzung von Radionukliden. Die Korrosion von abgebranntem Brennstoff hängt stark von den Redoxbedingungen ab. Unter reduzierenden Bedingungen verläuft die Auflösung von UO_2 extrem langsam. Unter oxidierenden Bedingungen werden viel höhere Auflösungsraten erreicht, allerdings erst, wenn der Oxidationszustand des Brennstoffs die Stufe U_3O_7 überschreitet. Da Endlager in Formationen errichtet werden, in denen reduzierende Wässer auftreten, spielt Radiolyse eine wichtige Rolle. Durch Radiolyse werden reaktive oxidierende Substanzen wie OH-Radikale, H_2O_2 oder O_2 gebildet, die zur Veränderung der Redoxbedingungen und damit zu einer erhöhten UO_2 -Auflösung führen, wenn der ebenfalls gebildete, weniger reaktive Wasserstoff aus dem

System rascher migriert als der Sauerstoff. In manchen Langzeitsicherheitsanalysen werden deshalb Quellterme für UO_2 -Brennstoff mit zur α - oder γ -Aktivität proportionalen Freisetzungsraten berücksichtigt, z. B. /SKB 96/.

Auflösungsraten von natürlichen UO_2 -Mineralphasen können durch Messung von einzelnen Isotopen wie Tc-99 oder I-129, die aus der Matrix freigesetzt wurden, ermittelt werden. Solche Messungen wurden an den Standorten Oklo und Cigar Lake durchgeführt. Unter Verwendung des Tracers Tc-99, in seiner anionischen Form, bzw. dessen stabiler Tochter Ru-99 wurden mittlere Auflösungsraten von $1,1 - 1,5 \cdot 10^{-6} \text{ a}^{-1}$ ermittelt /MIL 00/. Die Raten, die in Cigar Lake über die Freisetzung von ^{129}I ermittelt wurden, liegen allerdings zwei Größenordnungen darunter. Zur Erklärung dieser Unterschiede besteht noch FuE-Bedarf.

Einen wichtigen Beitrag zum radiolyseabhängigen Freisetzungsmodell lieferte die Studie Cigar Lake /SME 96/, /GOO 89/. Die Anwendung der derzeit in Langzeitsicherheitsanalysen verwendeten Radiolysemodelle ergab viel zu hohe Konzentrationen an Oxidantien, die zu einer vollständigen Oxidation der Uranerzes in 18 bis 170 Millionen Jahren geführt hätten, d. h. der 1,9 Milliarden Jahre alte Erzkörper müsste demnach längst in oxidiertem Zustand sein. Dieses Ergebnis führte zur Entwicklung neuer Radiolysemodelle, die insbesondere die Reichweite der α -Strahlung in Abhängigkeit von der Größenverteilung der UO_2 -Mineralkörner und die Geometrie dünner Wasserschichten zwischen den Mineralkörnern berücksichtigen. Die Ergebnisse der Modellrechnungen zeigen, dass nur ein kleiner Anteil der gesamten Strahlungsenergie von wenigen Prozent zur Bildung von oxidierenden Substanzen in der die Mineralkörner umgebenden wässrigen Phase führt. Dieser Aspekt ist ein gutes Beispiel dafür, dass Analogastudien zur Modellentwicklung für Sicherheitsanalysen beitragen können /CRA 86/, /CRA 94/, /CRA 95/.

Die Studie am Standort Peña Blanca in Mexiko ist ein Analogon für solche Endlager, in denen oxidierende Bedingungen erwartet werden (wie in Yucca Mountain, USA) und entspricht damit nicht den europäischen Endlagerkonzepten. An diesem Standort wurde ein vor ca. 8 Millionen Jahren gebildetes Uraninit-Vorkommen für etwa drei Jahre oxidierenden Wässern ausgesetzt. Dies hat zur Oxidation des Uraninit und zur Bildung sekundärer sechswertiger Uranminerale wie Uranophan, Soddyit und Schoepit geführt. Nur ein geringer Anteil Uraninit ist verblieben.

Aufgrund der großen Ähnlichkeit der Bedingungen in Peña Blanca zu den erwarteten Bedingungen im Nahfeld eines Endlagers in Yucca Mountain wurde auf Basis des Alters der primären und sekundären Phasen sowie der Erkenntnisse zu den Korrosionsmechanismen ein Quellterm für die UO_2 -Auflösung und Radionuklidfreisetzung aus der Matrix abgeleitet, der in einer Variante in der Langzeitsicherheitsanalyse für Yucca Mountain verwendet wurde. Die damit berechneten Strahlenexpositionen lagen niedriger als die mit einem Quellterm, wie er aus Laborexperimenten resultiert. Daraus lässt sich schließen, dass dieser Quellterm für den Referenzfall eher konservativ ist.

5.3 Metalle

Eisen und andere Metalle werden in großen Mengen in ein Endlager eingebracht: in Form von Behältern, als kontaminiertes Abfallmaterial, wie z. B. Hülsen und Strukturteile, sowie bei manchen Endlagerkonzepten in Form von technischen Einbauten und abstützenden Bauteilen. Die wichtigsten Beiträge von Analogastudien betreffen Langzeitkorrosionsraten sowie die Charakterisierung von Korrosionsprodukten. Die meisten Studien existieren zu archäologischen Analoga von Eisen, Stahl und Kupfer sowie zu Legierungen, welche diese Elemente enthalten.

Eisen und Stahl

Gediegenes Eisen kommt nur sehr selten in der Natur vor. Das ist ein Indiz dafür, dass Eisen- und Stahlbehälter in einem Endlager in geologischen Zeiträumen vollständig korrodieren werden. Zur Ermittlung von Korrosionsraten sind daher archäologische Studien geeignet. Aufgrund der vielfältigen Verwendung von Eisen auch in frühen Zivilisationen existieren viele Fundorte von Proben in unterschiedlicher Umgebung. Eine umfangreiche Zusammenstellung von Korrosionsraten, die an archäologischen Eisen- bzw. eisenhaltigen Legierungen ermittelt wurden, wurde von /JOH 80/ zusammengestellt. Die in den meisten der dort betrachteten Studien ermittelten Raten liegen trotz sehr unterschiedlicher geochemischer Bedingungen in einem relativ engen Bereich zwischen 0,1 und 10 $\mu\text{m}/\text{Jahr}$, wobei die hohen Raten in Studien ermittelt wurden, in denen die Metallteile Kontakt mit oxidierenden Wässern hatten. Noch höhere Raten wurden in dieser Zusammenstellung nur an Kanonenkugeln gefunden, die sich in korrosivem Meerwasser unter oxidierenden Bedingungen befanden. Auch andere Studien bestätigen Werte von 10 $\mu\text{m}/\text{a}$ als obere Grenze. Derartige Ergebnisse sind beispielsweise als Argument für die Verwendung einer Langzeitkorrosionsrate von 1 $\mu\text{m}/\text{a}$ unter

reduzierenden Bedingungen in die neueste Langzeitsicherheitsanalyse der Nagra zum Standort Benken eingeflossen /NAG 02/, /NER 88/.

In Inchuthill (Schottland) wurden von einer römischen Legion vor 1860 Jahren mehr als 1 Million Eisennägel (ca. 10 Tonnen) in eine 5 m tiefe Grube eingebracht und mit ca. 3 m Boden abgedeckt. Die Nägel waren über diesen Zeitraum der Korrosion ausgesetzt. Es konnte gezeigt werden, dass die am weitesten außen gefundenen Nägel viel stärker korrodiert waren als die Nägel im Inneren des Haufens, die nur geringe Spuren von Korrosion zeigen (s. Abb. 23). Die äußeren Nägel waren oxidierenden Wässern ausgesetzt und haben gleichzeitig die Redoxbedingungen gepuffert, so dass die Nägel im Inneren nur durch anaerobe Korrosion verändert wurden.



Abb. 23 Photo eines Nagels (ca. 35 cm Länge) von der Fundstätte Inchuthill, Schottland. Der Nagel war 1860 Jahre vergraben /MIL 00/

Genauere Angaben zu den chemischen Bedingungen der Wässer sind aus dieser Studie leider nicht verfügbar. Die Studie zeigt allerdings die gute Redox-Pufferkapazität von Eisen in einem Endlager /MIL 90/. Mit starken Einschränkungen kann dieses Analogon ggf. auch zur Demonstration der Haltbarkeit von in einem Endlager verwendetem Stahl herangezogen werden.

Die vielen Studien zeigen ein relativ einheitliches Bild mit Korrosionsraten, die nur über wenige Größenordnungen variieren. Allerdings ist zu beachten, dass keine Analogastudien existieren, aus denen quantitative Informationen zum Lochfraß abgeleitet wurden, der zu einer deutlich kürzeren Behälterlebensdauer führen kann. Ebenso existieren keine Analogastudien zur Eisenkorrosion unter alkalischen Bedingungen, wie sie bei der Verwendung von Zement in Endlagern oder generell in Endlagern für schwach- und mittelaktive Abfälle zu erwarten sind.

Die Korrosionsprodukte von Eisen haben ein sehr hohes Adsorptionsvermögen. Analoga-Informationen zur Rückhaltung von Radionukliden an Korrosionsprodukten finden sich hauptsächlich in Studien zu Redox-Fronten und betreffen Eisenoxyhydroxide. Ein Überblick über bisherige Arbeiten wurde von /HOF 99/ gegeben. Hinsichtlich der Rückhaltung von Spurenelementen an Korrosionsprodukten über lange Zeiträume gibt es aber bisher noch keine Studien, aus denen quantitative Informationen abgeleitet werden können.

Kupfer

Die Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle in partiell wasserführenden Formationen wie geklüftetem Granit (Kanada, Finnland, Japan, Schweden) legt ein Schwergewicht auf geotechnisch bzw. technische Barrieren, wie z. B. die Behälter. Nach dem schwedischen sowie dem finnischen Konzept sollen Kupferbehälter verwendet werden, deren Korrosionsbeständigkeit im Bereich von mehreren Millionen Jahren liegen soll. Diese Konzepte stellen mithin hohe Ansprüche an das umfassende Verständnis von Korrosionsmechanismen solcher Materialien. Mit Laboruntersuchungen allein lassen sich keine abschließenden Aussagen über die zu betrachtenden Zeiträume machen. Natürliche Analoga können dieses Bild wesentlich ergänzen.

Ein gutes Beispiel für die Ermittlung von Korrosionsraten stellt die Untersuchung einer Bronze-Kanone, der „Kronan Cannon“ aus Schweden dar. An Bord eines schwedischen Kriegsschiffs, das 1676 während der Schlacht von Öland in der Ostsee sank, befanden sich 126 solcher Bronze-Kanonen. Die Studie wurde an einer Kanone durchgeführt, die seitdem von Tonsedimenten bedeckt am Meeresboden lag und im Jahr 1987 geborgen wurde. Die Kanone hat einen sehr hohen Kupfergehalt von 96,3 Gew. %. Da der Zeitpunkt des Beginns der Korrosion bei diesem Analogon genau bekannt ist, war es möglich, Korrosionsraten abzuleiten. Die Analyse der Bronzeoberfläche ergab eine mittlere Korrosionsrate von $0,15 \mu\text{m/a}$, die unabhängig von der Probenahme-position an der Kanonenoberfläche war. Etwas höhere Raten wurden nur an einzelnen Kupferoxid-Einschlüssen im Material der Kanone gefunden. Diese vielzitierte Studie /NER 86/ ist ein anschauliches Beispiel für die Langzeitstabilität von Kupfer. Die für Kupfer zu erwartenden Korrosionsraten in einem Endlager unter reduzierenden Bedingungen und bei geringeren Salzgehalten werden noch geringer sein.

Eine zusammenfassende Studie zu Korrosionsraten, die an 34 verschiedenen archäologischen Proben ermittelt wurden, stammt von /JOH 80/. Die Korrosionsraten variieren

über einen Bereich von 0,025 bis 1,27 $\mu\text{m/a}$. Aufgrund der meist oxidierenden Bedingungen an den Standorten können auch diese Werte eher als eine obere Grenze angesehen werden. Neuere Arbeiten zu archäologischen Proben sind in /IAE 05/ zusammengefasst. Korrosionsraten aus diesen Studien sind im Vergleich zu den Ergebnissen von /JOH 80/ in Abb. 24 dargestellt.

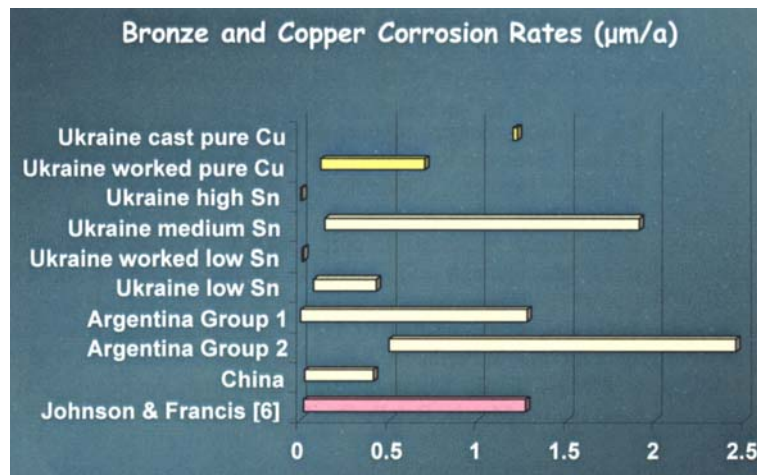


Abb. 24 Bronze und Kupfer-Korrosionsraten aus der Studie anthropogener Analoga /IAE 05/

Wichtige Beiträge liefern auch Studien an natürlichen Kupfer-Vorkommen. Eine Arbeitsgruppe aus Finnland, Schweden und Japan hat ein natürliches Vorkommen von gediegenem Kupfer am Standort Hyrkkölä (Finnland) untersucht /MAR 97a/, /MAR 99/. Das Kupfer kommt in einer Störungszone in einer Teufe von 8,3 m vor und wird auf ein Alter von 1,8 bis 1,7 Mrd. Jahren geschätzt. Die Kupferkörner haben eine Größe von $\leq 1\text{mm}$ und sind an der Oberfläche mit Kupfersulfid bedeckt. Kleinere Körner liegen vollständig korrodiert als Kupfersulfid vor.

Bei natürlichen Kupfervorkommen ist die Datierung allerdings oft problematischer als bei archäologischen. Das Kupfervorkommen von Hyrkkölä hat den Vorteil, dass dort gleichzeitig Uran vorkommt. Das Uran ist fast ausschließlich an das Tonmineral Smektit gebunden, mit dem die Oberflächen in der Störungszone und auch die kupferhaltigen Körner bedeckt sind. Die Kupfer- und Kupfersulfidkörner selbst enthalten praktisch kein Uran. Die Uranmineralisierung bietet die Möglichkeit, verschiedene Altersdatierungen an dem Material vorzunehmen, und damit die Zeitbeziehungen des Korrosionsvorganges recht genau zu eichen (z. B. über die Untersuchung der Einstellung von Gleichgewichtsverhältnissen der U-238-Zerfallsreihe).

An einem ähnlichen Vorkommen gediegenen Kupfers zusammen mit relativ hohen Urankonzentrationen in Devon (Südengland) wurde von /MIL 02/ untersucht, ob die vom Uranzerfall ausgehende Radiolyse über den sehr langen Liegezeitraum der Kupferobjekte zu wahrnehmbaren Korrosionserscheinungen beim Kupfer geführt hat. Eine entsprechende Untersuchung ergab keine wahrnehmbare Einwirkung.

Die Grundwässer am Standort Hyrkkölä sind sauerstoffhaltig und geringfügig sauer; dies verstärkt bei Kupfer im Allgemeinen die Korrosion. Dies steht eigentlich dem Auffinden von gediegenem Kupfer entgegen. Die aufgrund von Modellüberlegungen ursprüngliche Einschätzung in /MAR 97a/, dass in der Vergangenheit anaerobe sulfidische Grundwässer vorgelegen haben müssten, erwies sich in der weiteren Untersuchung als zu stark vereinfachende Näherung /MAR 99/.

Als Ergebnis der Untersuchung wurde festgestellt, dass die Sulfidisierung dieses Kupfervorkommens durch Hydrogensulfid-haltige Wässer vor mehr als einer Million Jahren erfolgt sein muss. Die Kupfergehalte in den heute dort zirkulierenden Grundwässern sind niedriger als der durchschnittlich in ähnlichen geologischen Verhältnissen angebroffene Kupfergehalt, was auf eine sehr niedrige Korrosionsrate des elementaren Kupfers hinweist. Die gemessenen Urangehalte in den Wässern sind hingegen relativ hoch, was auf eine Remobilisierung des Urans aus den Smektiten durch die sauerstoffhaltigen Wässer hinweist. Aus den beobachteten Verhältnissen kann auf eine hohe Stabilität elementaren Kupfers selbst gegenüber sauerstoffhaltigen Wässern geschlossen werden, wenn, wie im vorliegenden Fall, Kupfer zusammen mit Smektiten und Uran vorkommt.

Dieses Beispiel zeigt, dass Natürliche Analoga auch einen bestätigenden, aber ansonsten vernachlässigbaren Beitrag zum Verständnis der bei der Endlagerung relevanten Vorgänge leisten können. Sie weisen gelegentlich auf Aspekte hin, die sich im kontrollierten Laborversuch so nicht ergeben würden. Sie können damit eigenständige Aussagekraft entfalten. Allerdings zeigt das Beispiel auch deutlich, dass die oft sehr hohen und vereinfachenden Erwartungen an die Aussagekraft von natürlichen Analoga nicht bedient werden können. Auch erschließen sich die oft sehr komplexen Gesamtzusammenhänge eines Analogons nur dann, wenn ein entsprechender Wissenshintergrund vorhanden ist. In der Kommunikation zwischen Experten und Laien erfüllen Natürliche Analoga daher nicht immer die Erwartungen in die Überzeugungskraft, die ursprünglich an diese geknüpft wurden.

5.4 Zement

Zement und Beton sind hauptsächlich in Konzepten für schwach- und mittelaktive Abfälle als Verfestigungsmaterial für die Abfälle selbst bzw. als Versatzmaterial für Einlagerungskammern vorgesehen. In manchen Endlagerkonzepten für hochaktive Abfälle sollen diese Materialien auch als Stützmaterial dienen.

Wichtige Punkte, die in Analogastudien betrachtet werden, sind Langzeitstabilität, Wechselwirkungen von Zement mit Grundwasser und natürlichen Sedimenten, Radionuklid-Sorption an Zementphasen sowie Kolloidbildung und -filtration.

Im vorliegenden Abschnitt wird nur auf die Langzeitstabilität von Zementen eingegangen. Analoga zur Wechselwirkung von Zement mit wässrigen Lösungen und natürlichen Gesteinsformationen wurden bereits im Abschnitt Tone beschrieben.

Zement- bzw. Betonbauteile, die im Endlager Verwendung finden werden, basieren auf Portlandzementen. Portlandzemente werden erst seit 150 Jahren hergestellt, wodurch der Zeitraum für Analogastudien an diesen Zementen entsprechend begrenzt ist. Die meisten Zemente aus der Antike wurden auf Kalkbasis hergestellt und haben eine geringere Festigkeit sowie geringere Korrosionsbeständigkeit, insbesondere gegenüber chemischer Korrosion. Allerdings weisen auch die von den Römern verwendeten puzzolanischen Zemente die typischen Calcium-Silikat-Hydrat(CSH)-Phasen und damit eine hohe Ähnlichkeit zu den heutigen Portlandzementen auf.

Die Hauptanwendung von Analogastudien besteht in ihrem Demonstrationscharakter für die Beständigkeit der Zemente. Viele Zemente aus der Antike, speziell in römischen Bauwerken, sind heute noch erhalten. Imposante Beispiele sind der Hadrianswall und das Pantheon in Rom. Im Bauwerk Hadrianswall in Nordengland wurde auch heute noch ein hoher Gehalt an CSH-Phasen in den Zementen nachgewiesen. Die Bildung der CSH-Phasen hat dort zur Reduktion der Porosität und Permeabilität geführt und wesentlich zur Erhaltung des Walls beigetragen. Der Erhalt vieler weiterer römischer Zementbauwerke (z. B. Kolosseum in Rom, Italien) ist ein starkes qualitatives Argument für die Langzeitbeständigkeit der Zemente.

Quantitative Informationen für Langzeitsicherheitsanalysen wie Zementkorrosionsraten konnten weder aus archäologischen noch aus natürlichen Analoga abgeleitet werden, da entweder die Zementzusammensetzung nicht der heutigen entspricht oder die Be-

dingungen, denen die Zemente in der Natur ausgesetzt waren, nicht denjenigen in einem Endlager entsprechen. Dagegen gibt es an industriellen Zementbauwerken Untersuchungen zum Fortschreiten von Korrosionsfronten, wie z. B. an technischen Zementen, die Magnesiumsulfat-Lösungen ausgesetzt waren (z. B. /WAK 94/). Derartige Untersuchungen decken aber nur relativ kurze Zeiträume, wie in diesem Fall 13 Jahre, ab. Entsprechend sind Extrapolationen auf Zeiträume von mehreren 1.000 Jahren mit großen Unsicherheiten behaftet. Trotzdem wurden Ergebnisse aus dieser Studie zur Absicherung des konzeptuellen Modells für die Korrosion einer Salzbetonabdichtung im Endlager Morsleben verwendet. Die Korrosion der untersuchten Zementbauwerke ist immer durch eine scharfe Reaktionsfront charakterisiert. Diese Beobachtung stützt das konzeptuelle Modell, in dem von einer schmalen Reaktionszone ausgegangen wird, vor welcher der Zement vollständig intakt ist und hinter der seine Permeabilität aufgrund der Korrosion um Größenordnungen erhöht ist /LAG 01/, /MAL 87/.

5.5 Sonstige

Bitumen ist in manchen Konzepten zur Verfestigung von flüssigen schwach- und mittelaktiven Abfällen aus Kernkraftwerken vorgesehen. Bei Bitumen handelt es sich um Material, das aus aliphatischen und aromatischen Kohlenwasserstoffen mit höherem Molekulargewicht besteht (vgl. Abb. 25). Die Elementzusammensetzung von Bitumen ist wie folgt: C (zwischen 80 - 88 %), H (8 - 11 %), O (1 - 12 %), S (1 - 7 %) und N (bis zu 1,5 %). Technisches Bitumen wird aus der Destillation von Rohöl gewonnen und wird seit Beginn des letzten Jahrhunderts hergestellt, während natürliches Bitumen seit mehr als 5.000 Jahren von Menschen verwendet wird /HEL 89/.

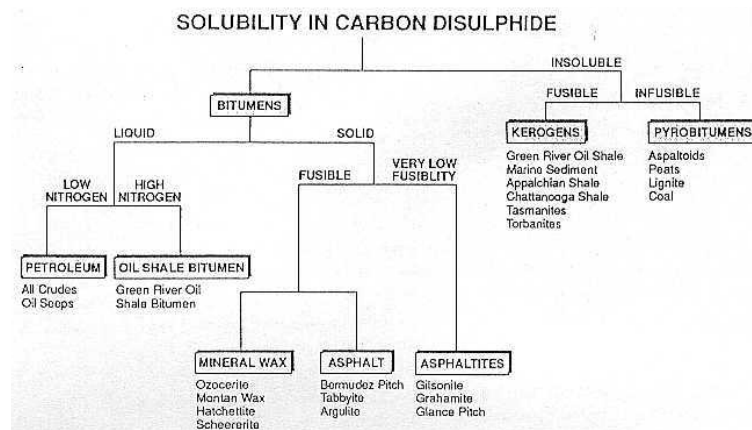


Abb. 25 Klassifizierung von natürlichem organischen Material bituminösen (und ähnlichen) Charakters auf Basis seiner physikalischen Eigenschaften und seiner Löslichkeit in organischen Lösungsmitteln /HEL 89/

Im Hinblick auf die Endlagerung von bitumenhaltigen Abfällen wurden Untersuchungen zu Haltbarkeit und Langlebigkeit, zu Wechselwirkungen mit der Umgebung und zu mikrobieller Zersetzung durchgeführt. Studien wurden hauptsächlich an natürlichen Bitumen-Vorkommen durchgeführt.

Eine gut dokumentierte Studie zur Beständigkeit gegenüber Umwelteinflüssen wie Oxidation und Mikrobentätigkeit wurde an einer bitumenhaltigen Kalksteinformation aus dem Jura in Holzen, Niedersachsen durchgeführt /HEL 89/. Der Horizont mit hohem Gehalt an organischem Material wurde vor ca. 70 Millionen Jahren oberflächennahen Bedingungen ausgesetzt. Die Beobachtungen zeigen, dass das Bitumen nicht autochthon vorliegt, sondern den hochmolekularen Rückstand einer früheren Erdöl-Akkumulation darstellt. Es wurden zahlreiche Proben aus unterschiedlichen Arealen und Tiefen (bis zu 80 m tief) charakterisiert (Abb. 26). Trotz Unterschieden in einzelnen Teilfraktionen zeigen die Elementzusammensetzung, die Fraktionen in der Chromatographie und die physikalischen Eigenschaften des Materials eine hohe Ähnlichkeit mit technischem Bitumen, das zur Verfestigung von radioaktiven Abfällen verwendet wurde /HEC 00/. Die heutige Form des Bitumens ist durch einen hohen Zersetzungsgrad gekennzeichnet (Abbau von n-Alkanen und leichten Aromaten). Das Bitumen befindet sich aber immer noch in einem abbaufähigen Zustand. Außerdem zeigen Proben, die nahe der Oberfläche der Formation entnommen wurden, direkte Anzeichen von Oxidation durch Kontakt mit der Atmosphäre und Licht. Trotz dieser Veränderungen blieben die physikalischen Eigenschaften des Materials weitgehend erhalten, was ein Indiz für seine lange Haltbarkeit ist.



Abb. 26 Mikrophotographie von bitumenhaltigem Kalkstein; Bildbreite = 7,5 mm /HEL 89/

Die geochemischen Bedingungen im Endlager sind normalerweise alkalisch, da in den meisten Konzepten Zemente als Versatzmaterial verwendet werden. Natürliche Bitumen-Vorkommen unter alkalischem Milieu wurden bisher nur in Maqarin in Jordanien untersucht. Der dort vorkommende bituminöse Mergel weist allerdings aufgrund post-sedimentärer Verbrennung nur wenige Ähnlichkeiten zu technischem Bitumen auf. Das organische Material besteht vorwiegend aus nichtaromatischen Anteilen. In Langzeitsicherheitsanalysen wird üblicherweise von einer schnellen Freisetzung der Radionuklide aus den Abfällen ausgegangen, weshalb Analoga für Bitumen von eher untergeordneter Bedeutung sind.

6 Literatur

(Hinweis: dieses Literaturverzeichnis enthält alle in diesem Anhang zitierte Literatur)

- /AEC 94/ Atomic Energy of Canada Limited (AECL): Environmental Impact Statement on the Concept for Disposal of Canada's Nuclear Fuel Waste. - AECL-10711, 1994.
- /BAE 89/ Bäckblom, G; Stanfors, R.: Interdisciplinary study of postglacial faulting in the Lansjärv area, Northern Sweden. - SKB Technical Report TR-89-31, Stockholm, 1989.
- /BEN 88/ Benvegnú, F; Brondi, A.; Polizzano, C.: Natural analogues and evidence of long-term isolation capacity of clays occurring in Italy: contribution to the demonstration of geological disposal reliability of long-lived wastes in clay. - EUR 11896, Luxembourg, 1988.
- /BER 02/ Bernotat, W. u. a.: The glass alteration product gel as a cage for lanthanides and actinides. - Bull. liaison Soc. Franc. Minéral. Cristallogr., Vol. 14 (1), 2002.
- /BLO 00/ Blomqvist, R. u. a.: The Palmottu natural analogue project. Phase II: Transport of radionuclides in a natural flow system at Palmottu. - EUR 19611 EN, Luxembourg, 2000.
- /BOR 86/ Bornemann, O.; Fischbeck, R.: Ablaugung und Hutgesteinsbildung am Salzstock Gorleben. - Z. dt. geol. Ges., 137, S. 71-83, Hannover, 1986.
- /BOZ 96/ Bozzano, F. u. a.: Analysis of the geoenvironmental conditions as morphological evolution factors of the sand-clay series of the Tiber valley and Dunarobba forest preservation. - EUR 16929 EN, Luxembourg, 1996.
- /BRA 98/ Brasser, T. u. a.: Untersuchung der Uran-Thorium-Mobilisation als natürliches Analogon für den Radionuklidtransport im Deckgebirge eines Endlagers für radioaktive Abfälle. - GRS-A-2652, 228 S., Köln, 1998.

- /BRE 99/ Brenner, J. u. a.: Untersuchung von Altversatz als Analogon zur Konvergenz und Kompaktierung versetzter untertägiger Hohlräume im Salz über lange Zeiträume – Phase I. - GRS-147, Köln, 1999.
- /BRO 84/ Brookins, D.G.: Geochemical aspects of radioactive waste disposal. – Springer, New York u. a., 1984.
- /BRU 01/ Bruno, J. u. a.: The applicability and limitations of the geochemical models and tools used in simulating radionuclide behaviour in natural waters - Lessons learned from the Blind Predictive Modelling exercises performed in conjunction with Natural Analogue studies. - SKB Technical Report TR-02-09, Stockholm, 2001.
- /CHA 84/ Chapman, N.A.; McKinley, I.G.; Smellie, J.A.T.: The Potential of Natural Analogues in Assessing Systems for Deep Disposal of High-Level Radioactive Waste. - Nagra Technical Report NTB 84-81, Wetingen, Switzerland, 1984.
- /CHA 90/ Chapman, N.A.: Natural analogues. In: CEC project Mirage-Second phase on migration of radionuclides in the geosphere. - Third (and final) summary progress report (work period 1989). - B. Côme (ed), EUR 12858, Luxembourg, 1990.
- /CRA 86/ Cramer, J.J.: Sandstone-hosted uranium deposits in northern Saskatchewan as natural analogs to nuclear fuel waste disposal vaults. - Chem. Geol., Vol. 55 (3-4), S. 269-279, 1986.
- /CRA 94/ Cramer, J.J.; Smellie, J.A.T.; (Eds.): Final Report for the AECL/SKB Cigar Lake analog study. - AECL Technical Report AECL-10851 and SKB Technical Report TR-94-04, Stockholm, 1994.
- /CRA 95/ Cramer, J.J.: Cigar Lake: A natural example of long-term isolation of uranium. - Am. Nucl. Soc. Radwaste Magazine, Vol. 2, No. 3, S. 36-40, 1995.
- /CRO 92/ Crovisier, J.L. u. a.: Dissolution of subglacial volcanic glasses from Iceland: laboratory study and modelling. - Applied Geochemistry, Supplementary Issue 1, S. 55-82, 1992.

- /DAU 91/ Daux, V. u. a.: Rare earth element behaviour during alteration of basaltic glasses: case of the weathering of Icelandic hyaloclastics. - Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol. 212, S. 107-114, 1991.
- /DEN 05/ Denecke, M.A.; Janssens, K.; Proost, K.; Rothe, J.; Noseck, U.: Confocal micro-XRF and micro-XAFS studies of uranium speciation in a Tertiary sediment from a waste disposal natural analogue site. - Environ. Sci. Technol., 39(7), S. 2049-2058, 2005.
- /DOE 04/ U.S. Department of Energy (DOE), Office of Civilian Radioactive Waste Management: Oklo: Natural Nuclear Reactors. - DOE/YMP-0010, November 2004, <http://www.ocrwm.doe.gov/factsheets/doeymp0010.shtml> (23.4.2008)
- /GEY 98/ Geyer, S. u. a.: Organic chemistry of bituminous marls. - In: Smellie, J.A.T. (ed): Maqarin natural analogue study, Phase III. - SKB Technical Report TR-98-04, Stockholm, 1998.
- /GOO 89/ Goodwin, B.W. u. a.: The Cigar Lake uranium deposit: An analogue for nuclear fuel waste disposal. - In: Natural analogues in performance assessments for disposal of long-lived radioactive wastes, IAEA Technical Report, Vol. 304, App. B., S. 37-45, Vienna, 1989.
- /GRA 86/ Grambow, B. u. a.: Weathered basalt glass: a natural analogue for the effects of reaction progress on nuclear waste glass alteration. - Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol. 50, S. 263-272, 1986.
- /GRU 04/ Grundfelt, B.; Smelli, J.: Prozessorientierte Auswertung von natürlichen und anthropogenen Analoga und ihre Bewertung als vertrauensbildende Elemente bei Sicherheitsbewertungen für Anlagen zur Endlagerung radioaktiver Abfälle. - Kemakta AR 2004-16, Kemakta Konsult AB, Stockholm, 2004.
- /HAR 90/ Harland, W.B.; Smith, D.G.; Smith, A.G.: A Geologic Time Scale. - 2. Auflage, Cambridge University Press, 279 Seiten, 1990.

- /HEC 00/ Heckers, J. u. a.: Degradation of natural bitumen - Implications on the use of technical bitumens in radioactive waste disposals. - Zeitschrift für geologische Wissenschaften, 28, S. 441-450, Akademie Verlag, Berlin, 2000.
- /HEL 89/ Helmuth, K-H.: Natural analogues of bitumen and bitumenized radioactive waste. - STUK-B-VALO 58, 1989.
- /HER 95/ Herrmann, A.G.; Rühe, S.: Lösungseinschlüsse in Zechsteinevaporiten – Neue Perspektiven in der anwendungsorientierten Grundlagenforschung. - Kali und Steinsalz, 11, S. 345-354, 1995.
- /HOF 99/ Hofmann, B.A.: Geochemistry of natural redox fronts – a review. - Nagra Technical Report NTB 99-05, Wettingen, 1999.
- /IAE 05/ IAEA: Anthropogenic analogues for geological disposal of high level and long-lived waste. - Final report of coordinated research project 1999-2004, TECDOC 1481, 2005.
- /IAE 99a/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Use of natural analogues to support radionuclide transport models for deep geological repositories for long lived radioactive wastes. – TECDOC 1109, Vienna, 1999.
- /IAE 99b/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Safety Assessment for Near Surface Disposal of Radioactive Waste. - Safety Guide No. WS-G-1.1, Vienna, 1999.
- /JAR 94/ Jaritz, W.: Die Entwicklungsgeschichte des Standortes Gorleben als natürliches Langzeitverhalten eines Barrierensystems. - Z. dt. Geol. Ges., 145, S. 192-206, 1994.
- /JIM 04/ Jiménez, J.G. u. a.: Documental database. - Natural Analogue project, 2004.
- /JNC 00/ Japan Nuclear Cycle Development Institute (JNC): H-12 Project to Establish Technical Basis for HLW Disposal in Japan. Project Overview Report. – TN 1410 2000-001, 2000.

- /JOH 80/ Johnson, L.H.; Francis, B.: Durability of metals from archaeological objects, metal meteorites and native metals. - Batelle Pacific Northwest Laboratory, PNL-3198, 1980.
- /KAT 74/ Katayama, N. u. a.: Genesis of Uranium Deposits of the Tono Mine, Japan. - Proc. IAEA-SH-183/11, S. 437-452, 1974.
- /KNI 89/ Knipping, B.: Basalt Intrusions in Evaporites. - Lecture Notes in Earth Sciences, 24, Springer Verlag, 1989.
- /LAG 01/ Lagerblad, B.: Leaching performance of concrete based on studies of samples from old concrete constructions. - Swedish Cement and Concrete Research Institute, SKB Technical Report TR-01-27, Stockholm, 2001.
- /LIN 98/ Linklater, C.M. (ed): A natural analogue study of cement buffered, hyperalkaline groundwaters and their interaction with a repository host rock II. - Nirex Science Report, S-98-003, UK Nirex, Harwell, Oxon., 1998.
- /LOM 96/ Lombardi, S.; Valentini, G.: Dunarobba forest as natural analogue: analysis of the geoenvironmental factors controlling the wood preservation. - In: Natural Analogue Working Group, Sixth Meeting, Santa Fe, September 1994. v. Maravic, H.; Smellie, J. (eds), EUR 16761, S. 127-133, Luxembourg, 1996.
- /LOS 05/ Loss, R.: Natural Nuclear Fission Reactors. - <http://www.curtin.edu.au/curtin/centre/waisrc/OKLO/index.shtml>, 2005.
- /LUT 88/ Lutze, W.: Silicate Glasses. - In: Lutze, W.; Ewing, R.C. (eds): Radioactive waste forms for the future, S. 1-160, North Holland, Amsterdam, 1988.
- /MAL 87/ Mallinson, L.G.; Davies, I.L.: A historical examination of concrete. - EUR 10937, Luxembourg, 1987.
- /MAR 97a/ Marcos Perea, N.: The Hyrkkola Native Copper Mineralization: A Natural Analogue for Copper Canisters. - Materials Research Society Symposium Proceedings, Vol. 465, S. 1153-1160, 1997.

- /MAR 97b/ von Maravic, H.; Smellie, J. (eds.): Seventh EC Natural Analogue Working Group Meeting. - Proceedings of an international workshop held in Stein am Rhein, Switzerland from 28 to 30 October 1996, EUR 17851 EN, 1997.
- /MAR 99/ Marcos-Perea, N.; u. a.: New Data on the Hyrkkola Native Copper Mineralization: A Canisters Natural Analogue for the Long-Term Corrosion of Copper. - Materials Research Society Symposium Proceedings, 556, S. 825-836, 1999.
- /MAZ 94/ Mazer, J.J.: The role of natural glasses as analogues in projecting the long-term alteration of high-level nuclear waste glass, part I. - Materials Research Society Symposium Proceedings 333, S. 159-165, 1994.
- /MCK 89/ McKinley, I.G.: Applying natural analogues in predictive performance assessment (1): principles and requirements; (2): examples and discussions. - *in*: Risk analysis in nuclear waste management, pp.357-396, Kluwer Academic Publ., Netherlands, 1989.
- /MCK 96/ McKinley, I.G.; Alexander, W.R.: The uses of natural analogue input in repository performance assessment: An overview. - In: Sixth EC Natural Working Group Meeting, EUR 16761 EN, 273 pp, Luxembourg, 1996.
- /MEN 05/ Mengel, K.: Herkunft und Migration mineralgebundener Gase in marinen Evaporiten. - Abschlussbericht. Technische Universität Clausthal, Clausthal-Zellerfeld, 2005.
- /MIL 00/ Miller, W.M.; Alexander, W.R.; Chapman, N.A.; McKinley, I.G.; Smellie, J.A.T.: Geological Disposal of Radioactive Wastes & Natural Analogues. - Waste Management Series; Vol. 2, Pergamon Elsevier Science Ltd., Amsterdam u. a., 2000.
- /MIL 02/ Milodowski, A.E. u. a.: Alteration of uraniferous and native copper concretions in the Permian mudrocks of south Devon, United Kingdom - A natural analogue study of the corrosion of copper canisters and radiolysis effects in a repository for spent nuclear fuel. - SKB Technical Report TR-02-09, Stockholm, 2002.

- /MIL 03/ Miller, B. u. a.: Applying Information from Analogue Systems to the Evaluation of Radioactive Waste Repositories. - Proceedings of the EPRI Natural Analogue Workshop, 9. -10. October, EPRI, Palo Alto, CA, 2003.
- /MIL 06/ Miller, B.; Hooker, P.; Smellie, J.; Dalton, J.; Degnan, P.; Knight, L.; Noseck, U.; Ahonen, L.; Laciok, A.; Trotignon, L.; Wouters, L.; Hernán, P.; Vela, A.: NAnet Network to review natural analogue studies and their applications to repository safety assessment and public communication. Synthesis Report. - EUR 21919, Luxembourg, 2006.
- /MIL 90/ Milodowski, A.E.; West, J.M.; Pearce, J.M.; Hyslop, E.K.; Basham, I.R.; Hooker, P.J.: Uranium-mineralized micro-organisms associated with uraniferous hydrocarbons in southwest Scotland. - Nature 347, S. 465-467, 1990.
- /MIL 94/ Miller, W.M.; Alexander, W.R.; Chapman, N.A.; McKinley, I.G.; Smellie, J.A.T.: Natural analogue studies in the geological disposal of radioactive wastes. - Nagra Technical Report NTB 93-03, Wettingen, 1994.
- /NAG 02/ NAGRA: Project Opalinus Clay. Safety Report. Demonstration of disposal feasibility for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste (Entsorgungsnachweis). - Nagra Technical Report NTB 02-05, Wettingen, 2002.
- /NAG 85/ NAGRA: Projekt Gewähr 1985. Nuclear Waste Management in Switzerland: Feasibility Studies and Safety Analyses. – Nagra Project Report NGB 85-09, Wettingen, 1985.
- /NAG 94/ NAGRA: Kristallin-I, Safety Assessment Report. - Nagra Technical Report NTB 93-22, Wettingen, 1994.
- /NEA 04/ NEA-OECD: Post-closure safety Case for Geological Repositories - Nature and Purpose. - NEA-No. 3679, 2004.
- /NER 86/ Neretnieks, I: Investigations of old bronze cannons. In: Côme, B.; Chapman, NA (eds): Natural analogue working group, second meeting, Interlaken, June 1986. – EUR 10671, S. 191-197, Luxembourg, 1986.

- /NOS 00/ Noseck, U.: Zusammenstellung und Auswertung geochemischer Untersuchungen zum Radionuklidverhalten aus ausgewählten Studien über Natürliche Analoga. - GRS-155, 76 S., Köln, 2000.
- /NOS 02a/ Noseck, U.; Brasser, T.; Laciok, A.; Hercik, M.; Woller, F.: Uranium Migration in Argillaceous Sediments as Analogue for Transport Processes in the Far Field of Repositories (Ruprechtov Site, Czech Republic). - Proc. International Conference Uranium Mining and Hydrogeology III, Freiberg, Sept. 15-21, 2002.
- /NOS 02b/ Noseck, U.; Brasser, T.; Pohl, W.: Tertiäre Sedimente als Barriere für die U-/Th-Migration im Fernfeld von Endlagern. - GRS-176, 295 S., Köln, 2002.
- /NRC 95/ US-Nuclear Regulatory Commission (NRC): Iterative Performance Assessment B, Phase 2. - NUREG-1464, Washington, 1995.
- /ODI 85/ Odin, G.S.: Geochronology and the geological time-scale. - *Geological Society, London, Memoirs*; Vol. 10; S. 196-198; 1985.
- /PEL 99/ Pellegrini, R.; Horseman, S.; Kemp, S.; Rochelle, C.; Boisson, J.Y.; Lombardi, S.; Bouchet, A.; Parneix, J.C.: Natural analogues of the thermo-hydro-chemical and thermo-hydro-mechanical response. - EUR 19114, Luxembourg, 1999.
- /POT 04/ Potter, J.; Siemann, M.G.; Tsyukov, M.: Large-scale isotopic carbon fractionations in a Zechstein evaporite deposit and the generation of extremely ¹³C-enriched methane. - *Geology* 32, S. 533-536, 2004.
- /PUS 87/ Pusch, R. u. a.: Alteration of isolating properties of dense smectite clay in repository environment as exemplified by seven pre-quaternary clays. - SKB Technical Report, TR-87-29, Stockholm, 1987.
- /PUS 88/ Pusch, R.; Karnland, O.: Geological evidence of smectite longevity: The Sardinian and Gotland cases. - SKB Technical Report, TR-88-26, Stockholm, 1988.

- /ROT 03/ Rothfuchs, T. u. a.: Lessons Learned in Salt. - European Commission CLUSTER Conference on the Impact of EDZ on the Performance of Radio-active Waste Geological Repositories, 3-5 November 2003, Luxembourg, 2003.
- /RÜB 02/ Rübel, A.P. u. a.: Solute transport in formations of very low permeability: Profiles of stable isotope and dissolved noble gas contents of pore water in the Opalinus Clay, Mont Terri, Switzerland. - Geochim. Cosmochim. Acta, Vol. 66 (8), S. 1311-1321, 2002.
- /SCH 06/ Schönwiese, D. u. a.: Application of transport models on radionuclide migration in natural rock formations - Heselbach site. - GRS-217, Köln, 2006.
- /SEO 94/ Seo, T.; Yoshida, H.: Natural analogue studies of the Tono uranium deposit in Japan. In: Natural Analogue Working Group, Fifth Meeting. Toledo, October 1992. v. Maravic, H.; Smellie, J. (eds), EUR 15176, Luxembourg, 1994.
- /SIE 01/ Siemann, M.G.; Ellendorf, B.: The composition of gases in fluid inclusions of late Permian (Zechstein) marine evaporites in Northern Germany. - Chem. Geol. 173, S. 31-44, 2001.
- /SKB 83/ Svensk Kärnbränsleförsörjning AB (SKB): Final Storage of Spent Nuclear Fuel. - KBS-3, Volumes I-IV, Stockholm, 1983.
- /SKB 92/ Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): SKB 91, Final disposal of spent nuclear fuel. - SKB Technical Report TR-92-20, Stockholm, 1992.
- /SKB 99/ Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB): Deep repository for spent nuclear fuel. - SKB Technical Report TR-99-06, Main Report, Volume I+II, Stockholm, 1999.
- /SME 96/ Smellie, J.; Karlsson, F.: The Cigar Lake analogue project: a reappraisal of some key issues and their relevance to repository performance assessment. - SKB Technical Report TR-96-08, Stockholm, 1996.
- /SME 98/ Smellie, J. (ed): Maqarin Natural Analogue Study: Phase III. - SKB Technical Report, TR-98-04, Stockholm, 1998.

- /STA 95/ Stascheit, A.; Knipping, B.: Die Lanthanoidenverteilung in Evaporitgesteinen. - Kali u. Steinsalz 11, S. 355-360, 1995.
- /VIE 92/ Vieno, T. u. a.: TVO-92 Safety Analysis of Spent Fuel Disposal. - YJT-92-33 E, 1992.
- /VIE 99/ Vieno, T.; Nordmann, H.: Safety Assessment of Spent Fuel Disposal in Hästholmen, Kivetty, Olkiluoto and Romuvaara. - TILA-99, Helsinki, 1999.
- /WAK 94/ Wakeley, L.D. u. a.: Durability of Concrete Materials in High-Magnesium Brine. - Sandia Report 93-7073, 1994.
- /WER 04/ Wersin, P.; van Loon, L.R.; Soler, J.M.; Yllera, A.; Eikenberg, J.; Gimmi, T.; Hernán, P.; Boisson, J.Y.: Long-term diffusion experiment at Mont Terri: first results from field and laboratory data. - Appl. Clay Sci., 26, S. 123-135, 2004.
- /WIE 03/ Wieczorek, K.: EDZ in Rock Salt: Testing Methods and Interpretation. - European Commission CLUSTER Conference on the Impact of EDZ on the Performance of Radioactive Waste Geological Repositories, 3-5 November 2003, Luxembourg, 2003.
- /YOS 00/ Yoshida, H. u. a.: Overview of the stability and barrier functions of the granitic geosphere at the Kamaishi Mine: relevance to radioactive waste disposal in Japan. - Engineering Geology, Vol. 56, S. 151-162, 2000.
- /YOS 04/ Yoshida, H.; Takeuchi, M.: An analogue of long-term stability of flow path structure in crystalline rocks distributed in the orogenic belt. - Japan. Int. J. Nuclear Energy Science and Technology, Vol. 1 (1), S. 112-124, 2004.
- /YOS 94/ Yoshida, H.: Relation between U-series Nuclide Migration and Microstructural Properties of Sedimentary Rocks. - Appl. Geochem., Vol.9, S. 479-490, 1994.
- /ZET 00/ Zetterström, L.: Oklo - A review and critical evaluation of literature. - Laboratory for Isotope Geology, Swedish Museum of Natural History, SKB Technical Report TR-00-17, Stockholm, 2000.

/ZIR 91/ Zirngast, M.: Die Entwicklungsgeschichte des Salzstocks Gorleben – Ergebnis einer struktureologischen Bearbeitung. - Geol. Jb. A132, S. 3-13, 1991.

7 Weiterführende Literatur

(Hinweis: Dieses Verzeichnis enthält als Ergänzung wichtige weiterführende Literatur zum Thema dieses Anhangs, die in diesem Anhang nicht explizit zitiert wurde. Zitierte Literatur findet sich im "Literaturverzeichnis")

- /ALE 03/ Alexander, W.R.; Möri, A.: Cementitious colloids: Integration of laboratory, natural analogue and *in situ* field data. - Goldschmidt Conference Abstracts, Geochim. Cosmochim. Acta, 18 (S1): A11, 2003.
- /ALE 95/ Alexander, W.R.: Natural cements: How can they help us safely dispose of radioactive waste?. - Radwaste Magazine 2, Vol 5, pp. 61-69, 1995.
- /ALE 98/ Alexander, W.R.; Gautschi, A.; Zuidema, P.: Thorough testing of performance assessment models: the necessary integration of *in situ* experiments, natural analogues and laboratory work. - Extended abstract *in* Sci. Basis Nucl. Waste Manag. XXI, 1013-1014, 1998.
- /ALE 98/ Alexander, W.R.; Gautschi, A.; Zuidema, P.: Through testing of performance assessment models: the necessary integration of *in situ* experiments, natural analogues and laboratory work. - Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXI, S. 1013-1014, 1998.
- /AMB 92/ Ambrosetti, P.; Basilici, G.; Gentili, S.; Biondi, E.; Cerquaglia, Z. ; Girotti, O.: La Foresta Fossile di Dunarobba. - Ediart, Todi, Italy, 1992.
- /APT 91/ Apted, M.J.; Engle, D.W.: Validation of source-term models using natural analogues. - Proc. HLWM Conf. Vol. 2, Las Vegas, 28.4-3.5.1991, Amer.Soc. Civ.Eng., New York, USA, 1991.
- /BEC 04/ Bechthold, W. u. a.: Backfilling and Sealing of Underground Repositories for Radioactive Waste in Salt (BAMBUS-II Project). - EUR 20621 EN, Luxembourg, 2004.
- /BER 00/ Bernotat, W. u. a.: Retention of U, Th, LREE, HREE by secondary phases of altered basaltic glasses (Natural analogue of vitrified radwaste). - Proc. Distec 2000, International Conference on Radioactive Waste Disposal, Berlin, 6.-8. September 2000.

- /BRA 92/ Brammer, K.J.: Stoffbestand und Lanthanidenverteilung der wasserunlöslichen Mineralfraktion in marinen Zechsteinevaporiten. - Dissertation, TU Clausthal, 1992.
- /CEC 95/ Commission of the European Communities: Radionuclide Transport through the geosphere into the biosphere. Review study of the project Mirage. - EUR 16489 EN, Luxembourg, 1995.
- /COL 91/ Colley, S.; Thomson, J.: Migration of uranium daughter radionuclides in natural sediments. - EUR 13182, Luxembourg, 1991.
- /COM 86/ Côme, B.; Chapman, N.A.: Natural Analogue Working Group. First Meeting, Brussels, 5-7 Nov. 1985. - EUR 10315, Luxembourg, 1986.
- /CRA 94a/ Cramer, J.J.: Natural analogues in support of the Canadian concept for nuclear fuel waste disposal. - AECL Report AECL-10291, Pinawa, Canada, 1994.
- /CRA 94b/ Cramer, J.J.; Smellie, J.A.T.: Final report of the AECL/SKB Cigar Lake Analogue Study. - AECL Report AECL-10851, Pinawa, Canada, 1994.
- /DEP 94/ De Putter, T. ; Charlet, J.M. : Analogues naturelles en milieu argileux. - Nipond-94-13, Brussels, 1994.
- /DEP 96/ De Putter, T. : The Entre-Sambre-et-Meuse area cryptokarsts as Belgian natural analogues. - EUR 16930, Luxembourg, 1996.
- /GER 94/ Gera, F.; Hueckel, T.; Pellegrini, R.: Magmatic intrusions in clays as geomechanical natural analogues. - In: von Maravic, H.; Smellie, J. (eds.): Natural analogue working group, fifth meeting, Toledo, October 1992. EUR 15176, pp. 273-279, Luxembourg, 1994.
- /HAL 87/ Hallberg, R.O.; Östlund, P.; Wadsten, T.: A 17th century cannon as analogue for radioactive waste disposal. - In: Côme, B.; Chapman, N.A. (eds.): Natural analogues in radioactive waste disposal. EUR 11037, pp. 135-139, Luxembourg, 1987.

- /HER 98/ Herrmann, A.G.; Röthemeyer, H.: Langfristig sichere Deponien - Situation, Grundlagen, Realisierung. - Springer Verlag, Berlin Heidelberg New York, 1998.
- /IAE 05b/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Glossary of IAEA Safety Related Publications, Vienna, 2005. - <http://www-ns.iaea.org/downloads/standards/glossary/n.pdf>.
- /IAE 89/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Natural analogues in performance assessments for the disposal of radioactive wastes. - IAEA Technical Report 304, Vienna, Austria, 1989.
- /LEE 86/ Lee, C.F.: A case history on long-term effectiveness of clay sealant. - In: Côme, B.; Chapman, N.A. (eds.): Natural analogue working group, second meeting, Interlaken, June 1986. EUR 10671, pp. 172-190, Luxembourg, 1986.
- /LOU 00/ Louvat, D.; Michaud, V.; von Maravic, H.: Oklo working group. - Proceedings of the 3rd and final workshop, Cadarache, 20-21.5.1999. EUR 19137, Luxembourg, 2000.
- /MAR 98/ Martell, M.A.; Hansen, F.; Weiner, R.: Preservation of artifacts in salt mines as a natural analogue for the storage of TRU wastes at the WIPP repository. - Sandia National Laboratory, SAND-98-1908C, New Mexico, USA, 1998.
- /MAZ 92/ Mazer, J.J. u. a.: Water diffusion in tektites: an example of the use of natural analogues in evaluating the long-term reaction of glass with water. - J. Nuclear Mat., 190, S. 277-287, 1992.
- /MCK 92/ McKinley, I.G.; Alexander, W.R.: Use of Natural Analogues to test performance assessment models of a cementitious near field. - Waste Manag. 12, pp. 253-259, 1992.
- /MCK 95/ McKinley, I.G.; McCombie, C.: Natural analogues: a look into the future. - Radwaste Magazine, 2, Vol. 6, p. 46, 1995.

- /NOS 04/ Noseck, U.; Brasser, Th.; Rajlich, P.; Hercik, M.; Laciok, A.: Mobility of uranium in tertiary argillaceous sediments – a natural analogue study. *Radiochim. Acta* 92, 797-801 (2004).
- /REA 93/ Read, D. u. a.: The migration of uranium into peat-rich soils at Broubster, Caithness, Scotland, UK. - International conference on chemistry and migration of actinides and fission products No3, Jerez de la Frontera , Spain, Vol. 13 (1-4), S. 291-308, 1993.
- /SME 97/ Smellie, J.A.T.; Karlsson, F.; Alexander, W.R.: Natural analogue studies: present status and performance assessment implications. - *J.Contam. Hydrol.* 26, pp. 3-17, 1997.
- /TEC 06/ Techer, I. u. a.: Chemical and isotopic characterization of water-rock interactions in shales induced by the intrusion of a basaltic dike: A natural analogue for radioactive waste disposal. - *Appl. Geochem.* 21, S., 203-222, 2006.
- /WAB 91/ Waber, N.: Mineralogy, petrology and geochemistry of the Pocos de Caldas analogy study site, Minas Gerais, Brazil II: Morro de Ferro. SKB Technical report 90-12, Stockholm Schweden (1991).