

KfK 5323

April 1994

**Sammlung der Vorträge
anlässlich des Workshops
Natürliche Analoga zur
Endlagerung radioaktiver Abfälle**

**am 4. und 5. November 1993
im Kernforschungszentrum Karlsruhe**

Projektträgerschaft Entsorgung

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**KfK
5323**

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Zentralbibliothek

AUG. 1994

KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE
Projektträgerschaft Entsorgung

KfK 5323

**Sammlung der Vorträge
anlässlich des Workshops
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle**

**am 4. und 5. November 1993
im Kernforschungszentrum Karlsruhe**

**Zusammengestellt von
M. Leyrer**

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe

**Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Zentralbibliothek**

AUG. 1994

Als Manuskript gedruckt
Für diesen Bericht behalten wir uns alle Rechte vor

Kernforschungszentrum Karlsruhe GmbH
Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

ISSN 0303-4003

ZUSAMMENFASSUNG

Zur Bewertung der Langzeitsicherheit von Endlagern für gefährliche Abfälle, deren Sicherheit über tausende von Jahren gewährleistet sein muß, werden mathematische Modelle herangezogen. Eine Möglichkeit, die Güte der Modelle zu prüfen besteht darin, ähnliche Naturprozesse, die über lange Zeiten abgelaufen sind, zu beobachten und zu beschreiben und mit den Modellvorhersagen zu vergleichen. Dies ist der Grund, warum natürliche Analoga als Untersuchungsobjekte herangezogen werden und in den letzten Jahren immer mehr ins Blickfeld des weltweiten wissenschaftlichen Interesses gerückt sind.

Aufgrund der Bedeutsamkeit, die den natürlichen Analoga im Hinblick auf die Langzeitsicherheitsbewertung von Endlagern zugemessen wird, hat der Projektträger Entsorgung (PTE) im Auftrag des Bundesministeriums für Forschung und Technologie (BMFT) am 4. und 5.11.1993 im Kernforschungszentrum Karlsruhe einen Workshop zur Thematik „natürliche Analoga“ veranstaltet.

Ziel des Workshops war, anhand von Übersichts- und Fachvorträgen die Bedeutung natürlicher Analoga darzustellen und einen Überblick über nationale und internationale Arbeiten zu geben, um letztlich Anstöße für das F + E-Programm des BMFT und damit für zukünftige F + E-Arbeiten zu geben.

Die Vorträge des Workshops sind im vorliegenden KfK-Bericht zusammengestellt.

COMPILATION OF THE PAPERS
PRESENTED AT THE WORKSHOP
NATURAL ANALOGUES FOR DISPOSAL OF
RADIOACTIVE WASTE
ON 4 - 5 NOVEMBER 1993
HELD IN KERNFORSCHUNGSZENTRUM KARLSRUHE

ABSTRACT

To evaluate the long-term safety of repositories for hazardous waste, whose safety has to be guaranteed for thousands of years mathematical models are used. One possibility to prove the quality of these models is to observe and to describe similar processes in nature and to compare these processes with model predictions. This is the reason why natural analogues are used as subjects of investigations and are of increasing interest in R&D pertaining to waste disposal.

Because of the significance of natural analogues concerning the long-term safety analysis of repositories the Program Management Entsorgung (PTE) on behalf of the Federal Ministry of Research and Technology (BMFT) organized a workshop in the Kernforschungszentrum Karlsruhe (4 - 5, November 1993).

Objective of this workshop was to underscore the importance of natural analogues by presenting overview and special papers and to show the national as well as the international state-of-the-art in this field of research. The final goal of this workshop was to provide BMFT with appropriate background information so that future decisions concerning funding of its R&D-program can be put on a sound basis.

The papers presented at the workshop are compiled in this KfK-report.

PROGRAMM und INHALTSVERZEICHNIS

	Seite
Begrüßung <i>D. Lummerzheim, BMFT</i>	3 bis 8
Problemstellung und Aufgabe des Workshops <i>K. D. Closs, KfK-PTE</i>	11 bis 16
Die Bedeutung natürlicher Analoga für die Bewertung der Langzeitsicherheit von Endlagern aus Sicht des BfS <i>H. Röthemeyer, BfS</i>	19 bis 30
Natürliche Analoga: Eine zusätzliche Möglichkeit zum Langzeitsicherheitsnachweis für geologische Endlager; Überblick über bisherige nationale und internationale Arbeiten <i>W. Brewitz, GSF-IFT</i>	33 bis 41
Grundlagen für die Bewertung tektonischer Strukturen als natürliche Analoga mit Hilfe geomechanischer Modelle <i>M. Langer, BGR</i>	45 bis 79
Die Entwicklungsgeschichte des Standortes Gorleben als natürliches Analogon für das Langzeitverhalten eines Barriersystems <i>W. Jaritz, BGR</i>	83 bis 108
Natürliche Analoga zur Beurteilung der Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien in Evaporiten: Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten am Kontakt Basalt/Salzgestein <i>B. Knipping, TU Clausthal</i>	111 bis 140
Natürliche Analoga zur Beurteilung der Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien in Evaporiten: Fluide Phasen in Salzgesteinen <i>A. Herrmann, TU Clausthal</i>	143 bis 157
Zusammenfassender Überblick über die verschiedenen Arten von Uranlagerstätten <i>H. Fuchs, GNS</i>	161 bis 188
Natürliche Analoga für HAW-Abfallgebände <i>B. Grambow, KfK-INE</i>	191 bis 198
Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalten aus geologischer und historischer Sicht <i>U. Krakau, Jessberger + Partner</i> <i>V. Köckritz, TU Bergakademie Freiberg</i>	201 bis 211
Möglichkeiten der Bewertung der Langzeitstabilität von Bentonit durch natürliche Analoga <i>P. Sitz, M. Gruner, TU Bergakademie Freiberg</i>	215 bis 224
Natürliche Phosphate und ihr Bindungsvermögen für Schwermetalle und Actinoide <i>R. Gauglitz, FU Berlin</i>	227 bis 246
Natürliche Analoga im Hinblick auf kolloidale Verbindungen und Migration von Radionukliden in Aquifersystemen <i>J. Kim, KfK-INE</i>	247

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

Begrüßung

**D. Lummerzheim
BMFT**

Workshop Natürliche Analoga

04./05.11.1993, Karlsruhe

Begrüßung der Teilnehmer (D. Lummerzheim, BMFT)

Guten Tag, meine sehr verehrten Damen, meine Herren,

zu unserem Workshop "Natürliche Analoga" begrüße ich Sie hier in Karlsruhe herzlich. Gleichzeitig bedanke ich mich schon jetzt bei unserem Projektträger für die Vorbereitung und Organisation der Veranstaltung und bei dem Fortbildungszentrum für Technik und Umwelt dafür, daß wir hier zusammenkommen konnten.

Das Thema, das heute und morgen zur Diskussion steht, ist ein aus meiner Sicht außerordentlich wichtiges. Die Endlagerung radioaktiver und nicht-radioaktiver Abfälle unterliegt der Verpflichtung, die Sicherheit der Biosphäre über Zeiträume von vielen tausend Jahren zu gewährleisten.

Zur Realisierung solcher Endlager und zum Nachweis, daß die geforderte Sicherheit auch tatsächlich vorhanden ist, läßt sich das sonst übliche Verfahren der Nutzung sorgfältig geplanter und durchgeführter Experimente sowie daraus abgeleiteter Rechenverfahren offensichtlich nicht verwenden. Die notwendigen Laufzeiten der Versuche würden die menschliche Lebenserwartung weit übersteigen. Damit bleibt zunächst nur die Theorie. Wie aber können wir die zuverlässig gründen?

Natürlich liegen aus vielen Jahren nationaler und internationaler experimenteller Endlagerforschung zahlreiche wissenschaftliche Erkenntnisse vor, die sich ein Stück weit - hundert, vielleicht einige hundert Jahre - extrapolieren lassen. Wir sind damit jedoch kaum in der Lage, die gesamte Länge der notwendigen Nachweiszeiträume mit ausreichender Zuverlässigkeit zu umfassen.

Wie Ihnen allen bekannt ist, haben aber die Geologen gefunden, daß über Zeiten, die hier eine Rolle spielen, in der Natur Vorgänge stattgefunden haben, die den zu betrachtenden Sachverhalten oder

Prozessen ähnlich waren und deren Ergebnisse sich in zahlreichen Fällen zur Langzeitsicherheitsbewertung nutzen lassen. Das bekannteste und aus meiner Sicht eindrucksvollste Beispiel ist der Oklo-Naturreaktor in Gabun (Afrika), in dessen Nahfeld z.B. die Migration von Uran und Spaltprodukten anhand von deren Folgeprodukten studiert werden kann. Es sind fallweise also "Experimente" über geologische Zeiträume verfügbar, natürliche Analoga (NA) genannt, allerdings nicht zweckbestimmt geplant und instrumentiert, aber in vielen Fällen hilfreich, fehlendes Wissen und erforderliche Erkenntnisse wenigstens teilweise zu vermitteln.

Natürliche Analoga sind keine *dei ex machina*, die für sich allein eine Lösung offener Fragen in der Langzeitsicherheitsbewertung bewirken. Sie sind nur Bausteine dazu, aber sehr wichtige, evtl. unverzichtbare, mit denen selbstkritisch umgegangen werden muß. Es sollte aber nicht unerwähnt bleiben, daß es, für mich überraschend, auch skeptische Meinungen zur Nutzbarkeit der NA gibt.

Ich sagte eben, NA seien in vielen Fällen hilfreich, das erforderliche Wissen zu vermitteln. Das "erforderlich" scheint im Wortsinne zu verstehen zu sein: Ohne die Nutzung solcher Informationen aus geologischen Vorzeiten ist eine volle Validierung unseres Analyse-Instrumentariums schwierig bzw. nicht möglich.

Diese möglicherweise etwas provozierende Meinung wird z.B. durch die vor 2 Jahren vom Radioactive Waste Management Committee der OECD-NEA und dem International Radioactive Waste Management Advisory Committee der IAEA veröffentlichte "Gemeinsame Ansicht" (Collective Opinion) zur Frage: "Can long-term safety be evaluated?" gestützt. In der ausführlichen, positiven Stellungnahme findet sich unter der Überschrift "Building Confidence" die folgende Feststellung:

There is no way to validate system performance predictions over long times, but the adequacy of specific aspects of the modeling may be supported through a variety of laboratory, field and **natural analogue** studies.

Zu deutsch und etwas knapp übersetzt: Der Weg zur Validierung von Rechenverfahren zum Langzeit-Verhalten eines Endlagersystems führt nur über Labor-, Feld- und **Natürliche-Analoga-Studien**. Die

collective Opinion wurde - der Vollständigkeit halber sei es vermerkt - unterstützt durch die Experten des Beratungskomitees "Entsorgung" der Kommission der Europäischen Union (KEU).

An dieser Bedeutung von NA gemessen, ist unser FuE-Programm meiner Meinung nach noch nicht zufriedenstellend ausgerichtet und in der Durchführung eher bescheiden. Das Thema erscheint beiläufig. Zur Zeit befaßt sich nur ein einziges projektgefördertes Vorhaben damit. Ein weiteres wird soeben vorbereitet. Vielleicht ist der NA-Aspekt ja implizit Bestandteil weiterer Arbeiten. Die Liste der Vorträge zu dieser Tagung deutet das an.

Im internationalen Bereich, wo das Thema gleichfalls starke Aufmerksamkeit findet, ist die Bundesrepublik in vielen Fällen beteiligt. Ich erwähne das Mirage-Projekt der KEU und das Intraval-Projekt der OECD-NEA. Manchmal jedoch fehlt die Mitwirkung deutscher Experten, wie die Besetzungsliste der aus meiner Sicht wichtigen EU-Arbeitsgruppe "Natural Analogues" zeigt.

Was ich persönlich in unserem Programm und seiner Durchführung besonders vermisse, ist der strategische Ansatz, NA in großem Umfang gezielt zu bearbeiten. Ansatzpunkte dafür wären u.a.:

- die Validierung von Rechenmodellen,
- die Überprüfung von geowissenschaftlichen Daten,
- die Festlegung von Störfall-Szenarien, die das Endlager gefährden können und deswegen bei der Sicherheitsanalyse berücksichtigt werden müssen.

Wir müssen Wege finden, das Thema unter diesen Zielsetzungen programmatischer anzugehen, durch die verstärkte Aufnahme eigener Arbeiten, durch intensivere Beteiligung an internationalen Aktivitäten oder am besten durch beides.

Damit ich nicht mißverstanden werde: Diese kritischen Bemerkungen sind kein Vorwurf gegen irgend jemanden, außer gegen das für dieses Programm verantwortliche BMFT selbst.

Eine gewisse Unterbewertung der NA ist aber wohl kein ausschließlich nationales Problem. Dieser Eindruck entsteht, wenn man

sich das Thema der Podiumsdiskussion im Rahmen eines EU-Workshops über NA im vergangenen Oktober im spanischen Toledo anschaut. Es lautete.: "Why do we not see more recognition of natural analogues in performance assessment?" Und in den einleitenden Worten des Moderators hieß es, die Befassung mit NAS sei in Veranstaltungen zu diesem Thema sehr intensiv, in Veranstaltungen zum performance assessment aber eher begrenzt.

Ich möchte meine Ausführungen nun für einen wichtigen Hinweis zum eben angesprochenen BMFT-Programm "Endlagerung" unterbrechen.

Das Thema Natürliche Analoga, dem wir uns mit diesem Workshop zuwenden, ist typisch für das zukünftige Gesicht dieses Programms. Was heißt das? Lassen Sie mich zur Erklärung etwas ausholen.

Mit Ablauf des Jahres hat der BMFT die Förderung der 3 bisher tragenden Projekte seines Endlager-FuE-Programms eingestellt. Über die Gründe dafür ist häufig berichtet und mit vielen von Ihnen diskutiert worden. Der Bundesrechnungshof hat inzwischen seinen abschließenden Bericht zur Frage der Finanzierung der BMFT-Endlagerforschung vorgelegt, der im Rahmen der Beratungen zum Haushalt 94 auch bereits durch das Parlament behandelt worden ist. Wie erinnerlich, hat er die BMFT-Ansicht zur Finanzierung der 3 Großprojekte gestützt. Zum 4. Großprojekt, der Direkten Endlagerung, sind Bundesregierung und Rechnungshof uneinheitlicher Meinung. BMFT und BMU sehen, ausgehend von den Regelungen des Atomgesetzes, für die FuE zur Direkten Endlagerung keine Finanzierungsverantwortung der Abfall-Ablieferungspflichtigen. Der BRH ist aufgrund von Kostenbetrachtungen gegenteiliger Ansicht.

Das BMU hat kürzlich zusammen mit dem BfS die zukünftig geltende Definition von notwendiger, anlagenbezogener Forschung präzisiert:

Anlagenbezogen sind alle FuE-Arbeiten, deren Ergebnisse Voraussetzung für die gezielte Planung und für Errichtung, Betrieb, Erweiterung, Erneuerung, Stilllegung und Nachbetrieb des Endlagers für radioaktive Abfälle sind.

Der Aufwand hierfür ist notwendig, wenn diese Ergebnisse unter Berücksichtigung des Standes von Wissenschaft und Technik nur bei

der Durchführung der anlagenbezogenen FuE-Arbeiten erzielt werden können und der Grundsatz der Verhältnismäßigkeit beachtet ist.

Die weitere Forschungsarbeit des BMFT wird entlang der so gezogenen Linie durchgeführt werden und hoffentlich in ruhigerem Fahrwasser verlaufen. Dabei muß auch jede weitere Finanzierungsdiskussion vermieden werden. Da sie in erster Linie von **notwendiger** FuE zur Bereitstellung von Endlagern ausgehen könnte, hat der BMFT dem BMU kürzlich mitgeteilt, daß er auch die nicht-anlagenbezogene notwendige FuE nicht bzw. nicht mehr durchführen wird.

Die künftige BMFT-FuE zur Endlagerung ist damit von den unmittelbar notwendigen FuE-Aktivitäten zur Bereitstellung und dem Betrieb von nuklearen Endlagern entkoppelt - wenn natürlich auch damit korreliert. Sie ist jetzt jedoch deutlicher als zuvor unabhängige Sicherheitsforschung, deren Ergebnisse allen für die Bereitstellung von Endlagern Verantwortlichen zur Verfügung stehen, und zwar

- zur ständigen Verbesserung der Sicherheit von Endlagern,
- zur Optimierung von Sicherheitstechniken und Analyse-Werkzeugen,
- zur Vertiefung des Kenntnisstandes bei Gutachtern, Behörden und Experten.

Nun zurück zum Thema NA. Wenn zur Sicherung der Biosphäre und zur Überprüfung, ob diese Sicherheit tatsächlich besteht, die Nutzung von NA wichtig ist, haben wir eine wesentliche Aufgabe unseres Programms vor uns.

Das BMFT und der ihn beratende Sachverständigenkreis haben deshalb in einer der letzten Sitzungen beschlossen, bald einen Workshop abzuhalten. Ziel sollte sein, den Stand des Wissens zu NA aufzuzeigen, die Möglichkeiten der Nutzung von NA aus unserer Sicht zu diskutieren und den - wahrscheinlich vorhandenen - FuE-Bedarf zu konkretisieren. Es geht heute und morgen insbesondere also um die Fragen:

- Welche Bedeutung haben die NA für uns?
- Welche Arbeiten zu der Thematik laufen national und international z.Zt.?

- Welche FuE-Arbeiten sind vorzusehen?

Nach diesem Workshop wäre dann das FuE-Programm ggfs. zu ergänzen und wären FuE-Arbeiten vorzubereiten.

Und noch ein Wort, das ich bei sich bietender Gelegenheit gerne anbringe: Wir diskutieren das Thema Langzeitsicherheit fast ausschließlich mit Blick auf die radioaktiven Abfälle. Die chemisch-toxischen Abfälle - 11-13 Mio t pro Jahr - haben aber mindestens das gleiche Gefährdungspotential. Die radioaktiven Abfälle machen demnach nur 0,02% des Sonderabfallproblems unserer Gesellschaft aus. Die Hauptaufgabe bei der Entsorgung gefährlicher Abfälle liegt also auf chemisch-toxischem Gebiet. Damit ist das Thema des Workshops gerade auch dafür bedeutsam.

Schließlich sollte auch die Öffentlichkeitswirksamkeit der Thematik nicht vergessen werden. Ich glaube, daß die Argumentation mit Hilfe von NA ein guter Weg sein können, auch den interessierten, besorgten Bürger zu informieren und seine Skepsis gerade bzgl. der Langzeitsicherheitsfrage zu mindern. An ihr entzündet sich die öffentliche Diskussion ja immer besonders. Damit ist das Akzeptanzproblem angesprochen. Seine Lösung ist eine wesentliche Voraussetzung für die weitere Nutzung der Kernenergie und erfordert intensive Aufmerksamkeit. Wir haben das gerade in den letzten Tagen erlebt. Nicht zuletzt deswegen ist die Akzeptanzfrage und ihre Beantwortung durch zuverlässige FuE ein wesentliches Element des 4. Rahmenprogramms der EG.

Damit bin ich am Ende meiner Begrüßungsworte angekommen. Ich wünsche uns interessante Vorträge und intensive, fruchtbare Diskussionen.

Ich danke Ihnen für Ihre Aufmerksamkeit!

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Problemstellung und Aufgabe
des Workshops**

**K. D. Closs
KfK-PTE**

Problemstellung und Aufgabe des Workshops K. D. Closs

Meine Damen und Herren,

ich möchte Sie sehr herzlich zu unserem Workshop „Natürliche Analoga“ begrüßen und Ihnen dabei auch die Grüße von Herrn Prof. Hennies überbringen, der heute leider einen wichtigen auswärtigen Termin wahrzunehmen hat. Wir wollen uns heute und morgen über natürliche Analoga unterhalten und herausfinden, welchen Beitrag sie zur Langzeitsicherheitsbewertung von Endlagern für radioaktive Abfälle und sonstige Schadstoffe leisten können.

Lassen Sie mich in meinem kurzen Beitrag etwas weiter ausholen. Wir alle sind uns sicherlich einig darin, daß eine weitere Nutzung der Kernenergie in unserem Land von der Bevölkerung nur dann akzeptiert wird, wenn die Entsorgung unserer Kernkraftwerke gesichert ist. Entsorgung schließt die Endlagerung ein, und wir wissen, daß es bei der Realisierung von Endlagerprojekten weltweit Probleme und Widerstände aus der Bevölkerung gibt. Zunehmend setzt sich die Erkenntnis durch, daß nur ein breiter internationaler Konsens und eine verstärkte internationale Zusammenarbeit aus dieser schwierigen Situation herausführen kann.

Zu dieser Einschätzung kommt auch der Ende August dieses Jahres vom Bundesministerium für Forschung und Technologie veröffentlichte Deutsche Delphi Bericht zur Entwicklung von Wissenschaft und Technik [1], der eine wichtige Basis für den strategischen Dialog des Ministeriums mit Wissenschaft und Wirtschaft darstellt.

Im Rahmen der Delphi-Befragung haben rund 1.000 Fachleute ihre Meinung zu insgesamt 1.147 Einzelfragen aus 16 Fachgebieten abgegeben. Sie haben dabei Aussagen zur Wichtigkeit des Themas und den erwarteten Zeithorizont der Verwirklichung gemacht. Sie haben die jeweils wichtigsten Hemmnisfaktoren identifiziert und die Position Deutschlands im internationalen Vergleich bewertet.

Auf einige Ergebnisse aus dem Fachgebiet Energie möchte ich im folgenden kurz eingehen. Insgesamt 175 Fachleute wurden hierbei zu 51 Themen befragt.

Wie aus Bild 1 zu entnehmen ist, rangieren zwei Themenkomplexe mit Abstand an der Spitze der Wichtigkeitsskala. Dies ist einerseits die breite Durchsetzung von Klimaanlageanlagen ohne Fluorkohlenwasserstoffe. Gleich danach rangiert bereits die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle. Mit einem gewissen Abstand im Wichtigkeitsindex folgt die etwas breit formulierte Generalfrage nach verbesserter Wärmenutzung. Platz 7 in der Wichtigkeitsskala nimmt die Nutzung von passiven Solarhäusern aus dem Bereich der regenerativen Energieerzeugung ein. Kern-

technische Zukunftsvisionen wie Kernfusion, Aktinidenabtrennung und Transmutation, Schnelle Brutreaktoren und Laseranreicherung landen auf der Wichtigkeitsskala weit abgeschlagen in der genannten Reihenfolge.

Rangfolge	Frage	Wichtigkeit (Index)	Zeitraum Median
1	Klimaanlagen ohne FCKW setzen sich durch	94	1998
2	<i>Eine Abfallbeseitigungstechnik für hochradioaktiven, festen Müll findet praktische Anwendung</i>	91	2004
3	Das Prinzip kombinierter Wärmenutzung, d.h. rationale, völlig verlustfreie Verwendung von Energie, wird sich durchsetzen	84	2011
:			
7	Neuartige passive Solarhäuser werden in der Praxis eingesetzt, die erneuerbare Energie effizient nutzen	78	2001
:			
10	Elektroautos, die gleiche Fahrleistungen wie Benzinautos besitzen, finden allgemeine Verwendung	74	2011

Bild 1: Themen höchster Wichtigkeit im Energiebereich

Bei der Delphi-Befragung wurde auch nach Hemmnissen bei der Verwirklichung der jeweiligen Innovationen gefragt. Dabei lag die Endlagerung radioaktiver Abfälle weder bei den technischen Hemmnissen, noch bei den Kostenhemmnissen und auch nicht hinsichtlich eines unzureichenden deutschen FuE-Systems auf vorderen Plätzen, sondern höchstens im Mittelfeld. Daraus ist zu entnehmen, daß nach Ansicht der befragten Experten die Endlagerung technisch möglich wäre, daß aber Hemmnisse anderer Art der Einrichtung eines Endlagers entgegenstehen.

Ein weiterer wichtiger Aspekt bei der Delphi-Befragung betraf die Notwendigkeit zur internationalen Zusammenarbeit, siehe Bild 2. Hier wurde von den Energiefachleuten die Entwicklung eines Fusionsreaktors an die erste Stelle gesetzt, gefolgt von der Wasserstofftechnologie. Bereits an dritter Stelle folgt hier die Endlagerung hochradioaktiver Abfälle, und die von vielen gepriesene Aktinidenabtrennung und Transmutation rangiert auf den Plätzen 9 und 5.

Nun sollte man die Ergebnisse derartiger Delphi-Umfragen nicht überbewerten, und eine gewisse Skepsis ist sicherlich angebracht. Das gilt z.B. für den geschätzten Zeitraum der Implementierung der jeweiligen Innovationen: Endlagerung hochradioaktiver Abfälle im Zeitraum 2001 bis 2008 mit einem Medianwert im

Rangfolge	Frage	Notwendigkeit der internationalen Zusammenarbeit	Zeitraum Median
1	Ein Kernfusionsreaktor wird entwickelt	96	2021
2	Ein Energieversorgungssystem findet praktische Anwendung, in dessen Rahmen saubere Energie im Ausland in einen Energieträger wie Wasserstoff umgewandelt und von dort ins Inland transportiert wird	90	2010
3	<i>Eine Abfallbeseitigungstechnik für hochradioaktiven, festen Müll findet praktische Anwendung</i>	89	2004
5	Ein Beseitigungsverfahren für Atommüll unter Einsatz von Hochenergiepartikeln findet praktische Anwendung	86	2017
9	Eine hochentwickelte Wiederaufarbeitungstechnik mit Abtrennung langlebiger Spaltprodukte und Aktiniden findet Anwendung	79	2017

Bild 2: Innovationen im Energiebereich mit der größten Notwendigkeit zur internationalen Zusammenarbeit

Jahre 2004. Das sind wohl eher Wunschvorstellungen als Realität. Für die Aktinidenabtrennung und Transmutation dürfte ähnliches gelten. Wichtig erscheint mir jedoch, daß von den 175 befragten Energiefachleuten, die sicherlich auch bis zu einem gewissen Grade die Meinung der interessierten Öffentlichkeit widerspiegeln, die Notwendigkeit zur internationalen Kooperation auf dem Endlagersektor so stark hervorgehoben wird.

Im Delphi-Bericht selbst sind keine Angaben gemacht, welche Intentionen diese verstärkte internationale Zusammenarbeit verfolgen soll. Ich glaube aber, daß hier weniger an die Realisierung eines internationalen Endlagers gedacht ist oder daran, daß man durch internationale Kooperation vielleicht Entwicklungskosten sparen könnte. Ich interpretiere das eher so, daß hier die Notwendigkeit nach einer internationalen Konsensbildung gesehen wird; internationaler Konsens im Hinblick auf

- Endlagerkriterien
- Sicherheitsanforderungen
- Nachweisführung für die Langzeitsicherheit
- Zeithorizonte für Langzeitsicherheitsanalysen

usw.

Es ist doch für einen Bürger schwer zu verstehen, warum bei vergleichbaren Endlagerkonzepten in einem Land eine Barrierenstandzeit von z.B. 10.000 Jahren ge-

fordert wird, und in einem anderen Land eine Standzeit von mehreren 100.000 Jahren. Oder wenn in einem Land vom Gesetz her eine Rückholbarkeit der Abfälle gefordert wird und in einem anderen Land dies kategorisch abgelehnt wird. Nur wenn es gelingt, hier eine gewisse Harmonisierung herbeizuführen, haben wir eine Chance, die notwendige Akzeptanz in der Bevölkerung für die Lösung unserer Entsorgungsprobleme zu erzielen.

Nach dieser Exkursion zum Delphi-Bericht nun zu unserem eigentlichen Thema, den natürlichen Analoga. Hier hat sich in den letzten Jahren bereits eine bemerkenswerte internationale Zusammenarbeit angebahnt, z.B. im Rahmen der OECD/NEA und der EG. Deutsche Fachleute und deutsche Beiträge waren bei den bisher stattgefundenen Treffen nicht gerade sehr zahlreich vertreten, und man kann den Eindruck haben, daß wir in der deutschen Endlagerforschung hier eventuell ein Defizit aufzuweisen haben. Wir haben im Sachverständigenkreis Endlagerung das Thema „Natürliche Analoga“ im Frühjahr dieses Jahres kurz angeschnitten, und die einhellige Meinung war, daß eine Reihe deutscher Forschungsvorhaben sich durchaus auch an natürliche Analoga anlehnt oder zumindest ansatzweise in diese Richtung tendiert. Heute und morgen also gilt es, eine Art Bestandsaufnahme zu machen und sich darüber klar zu werden, in welchem Umfang „Natürliche Analoga“ auch zur Langzeitsicherheitsbewertung deutscher Endlager beitragen können, und ggf. die Weichen für zukünftige Forschungsvorhaben auf diesem Gebiet zu stellen.

Ich sehe 4 Bereiche, in denen natürliche Analoga zum vertieften wissenschaftlichen Verständnis der Langzeitsicherheit von Endlagern beitragen können, siehe Bild 3.

Natürliche Analoga

- Prognose der geologischen Zukunft eines Standortes aus dem Verständnis der geologischen Vergangenheit
- Nachweis der Langzeitstabilität bzw. Verständnis des Langzeitverhaltens technischer und geotechnischer Barrieren
- Validierung geochemischer Modelle für den Nah- und Fernbereich
- Nachweis der Gültigkeit geochemischer Modelle auch über extrem lange Zeiträume

Bild 3: Beiträge zur wissenschaftlichen Langzeitsicherheitsbewertung

Das ist zum einen ein Beitrag zur Prognose der geologischen Zukunft eines Standortes aus dem Verständnis der geologischen Vergangenheit. Wichtig hierbei ist der Nachweis, daß das Endlager in einer stabilen geologischen Formation errichtet wird und daß selbst massive Veränderungen der geologischen Situation, wie z.B. eine Eiszeit, zu keiner Gefährdung der Integrität eines Endlagers führen werden.

Zum anderen lassen sich, wenn man den Begriff „Natürliche Analoga“ etwas weiter zieht, auch Aussagen über die Langzeitstabilität von technischen und geotechnischen Barrieren erzielen, z.B. über das Verhalten von Glas oder von Behälterwerkstoffen in einem geologischen Milieu.

Einen weiteren wichtigen Bereich stellt die Validierung geochemischer Modelle für den Nah- und Fernbereich dar. Hierbei wird ein Beitrag geleistet zur Beantwortung der fundamentalen Frage, ob sich die im Labor ermittelten Modelle und Eingangsdaten zur Beschreibung der grundlegenden Vorgänge und Reaktionsmechanismen auch auf die komplexen natürlichen Verhältnisse übertragen lassen.

Der vierte Bereich ist eng mit dem dritten verküpft, wobei allerdings hier der Schwerpunkt auf den extrem langen in Langzeitsicherheitsanalysen zu betrachtenden Zeiträumen liegt.

Die Langzeitsicherheit von Endlagern stellt von der Nachweisführung her eine gewaltige Herausforderung an Wissenschaft und Technik und auch an die Genehmigungsbehörden dar. Wir sollten aber nie vergessen, daß sie auch von der Bevölkerung eine Beschäftigung mit Dingen erfordert, die jenseits des normalen Vorstellungsvermögens liegen.

Und so sollte man neben den in Bild 3 aufgeführten wissenschaftlichen Zielsetzungen auch versuchen, natürliche Analoga zur Vertrauensbildung in der Öffentlichkeit im Zusammenhang mit der Endlagerung radioaktiver Abfälle und sonstiger Schadstoffe einzusetzen. In Bild 4 sind einige Ansätze in diese Richtung aufgeführt, die jedoch weder komplett noch ausformuliert sind.

In Richtung auf eine vertrauensbildende Maßnahme ist wohl auch das Video über natürliche Analoga einzuschätzen, das z.Zt. gemeinsam von NAGRA, SKB und der EG produziert wird. Auch wir sollten uns am Ende unseres Workshops darüber unterhalten, ob und ggf. wie wir die hier dargebotenen Informationen für die Öffentlichkeitsarbeit verwenden können. Das ist sicherlich nicht das zentrale Thema, aber doch ein sehr wichtiges. Daß wir bei den natürlichen Analoga sehr stark international zusammenarbeiten sollten und müssen, versteht sich von selbst.

Natürliche Analoga

- Hinweisen darauf, daß in der Natur ähnliche Prozesse abgelaufen sind wie in einem Endlager erwartet werden
- Aufzeigen der Konsequenzen, die sich daraus ergeben haben
- Aufzeigen, daß Modellrechnungen ähnliche Ergebnisse erbracht haben
- Aufzeigen, daß die bei der Endlagerung zu betrachtenden langen Zeithorizonte sich in den natürlichen Analoga wiederfinden und damit nichts Außergewöhnliches darstellen

Bild 4: Beiträge zur Vertrauensbildung in der Öffentlichkeit

Und damit sind wir wieder bei einer wichtigen Forderung des deutschen Delphi-Berichts angelangt, nämlich dem Wunsch nach einer verstärkten internationalen Kooperation bei der Beseitigung hochradioaktiver Abfälle.

Literatur

- [1] Bundesministerium für Forschung und Technologie:
„Deutscher Delphi-Bericht zur Entwicklung von Wissenschaft und Technik“,
Bonn, August 1993

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Die Bedeutung natürlicher Analoga für die
Bewertung der Langzeitsicherheit von
Endlagern aus Sicht des BfS**

**H. Röthemeyer
BfS**

1. Einleitung

Probleme im Zusammenhang mit der Langzeit-Sicherheitsbewertung von Endlagern, insbesondere für hochaktive Abfälle/abgebrannte Brennelemente, haben die Diskussion um die friedliche Nutzung der Kernenergie für mehr als ein Jahrzehnt geprägt. Während einige Wissenschaftler die Existenz allgemein akzeptierter Methoden zur Bewertung der Langzeitsicherheit anzweifeln (s. z. B. /1/), hat die Mehrheit der Fachleute die Existenz solcher Methoden bestätigt /2/; letztere unterstreichen jedoch, daß Langzeit-Sicherheitsbewertungen wegen ihrer unvermeidbaren Unsicherheiten auf menschlichem Ermessen, nicht aber auf Beweis beruhen; sie stellen daher keine exakten Berechnungen, sondern nur Prognosen möglicher zukünftiger Abläufe dar /2-4/.

Um das menschliche Ermessen auf eine breite, vertrauensbildende Basis zu stellen, ruhen Langzeit-Sicherheitsbewertungen heute auf drei eng miteinander verbundenen Fundamenten /5/:

- Gesetzlichen Rahmenbedingungen in Verbindung mit Schutzzielen und sicherheitstechnischen Anforderungen;
- Sicherheitsanalysen auf der Basis von (validierten) Modellvorstellungen;
- Sicherheitsindikatoren und natürlichen Analoga.

2. Unsicherheiten und ihre Eingrenzung

Ein allgemein akzeptiertes Schutzziel für die Langzeit-Sicherheitsbewertung ist, daß der Schutz der Gesundheit zukünftiger Generationen denselben Maßstäben genügen muß, die heute gültig sind. Die meisten Länder folgen bei der Konkretisierung den ICRP-Empfehlungen und haben als Schutzziele Individualrisiken/Individualdosen festgelegt. Quantitativ liegen die Mortalitätsrisiken zwischen $10^{-5}/a$ - $10^{-6}/a$ und die Dosen zwischen 0,1 mSv/a - 0,3 mSv/a. Die USA haben auch probabilistische Freisetzungsraten auf der Basis von Bevölkerungsrisiken festgelegt. Risiken und Dosen beruhen jedoch auf Annahmen z. B. über zukünftige Biosphären und menschliche Verhaltensweisen; ihre Berechnungen sind daher langfristig mit z. T. erheblichen

Unsicherheiten behaftet. Hieraus haben Wissenschaftler auf breiter internationaler Basis den Schluß gezogen, daß Risiken/Dosen langfristig als Sicherheitsindikatoren, nicht als Beschreibung der zukünftigen Realität zu bewerten sind /2/. Vor diesem Hintergrund hat der Ausschuß "Prinzipien und Kriterien für die Endlagerung radioaktiver Abfälle" der Internationalen Atomenergie Agentur (IAEA) in seiner Sitzung vom 19. - 21. Oktober 1993 einen Bericht verabschiedet, in dem die Sicherheitsindikatoren Risiko/ Dosis durch weitere - von weniger Annahmen abhängende - Sicherheitsindikatoren für Teile des Endlagersystems ergänzt werden /6/ (s. Kap. 3).

Ein weiterer wichtiger Schritt für die Reduzierung von Unsicherheiten ist die Begrenzung der Zeiträume für Langzeit-Sicherheitsbewertungen; Prognosen über geologische, klimatologische, biosphärische und gesellschaftliche Entwicklungen und menschliches Verhalten betrachten nämlich unterschiedliche Arten von Unsicherheiten in unterschiedlichen Zeiträumen. Der o. a. IAEA-Bericht nimmt auch zu dieser Frage Stellung. Danach sollten die Langzeit-Sicherheitsbetrachtungen für die Zeiträume

- bis etwa 10^4 Jahren auf quantitativen Sicherheitsbewertungen auf der Basis von Dosis-/Risiko-Berechnungen beruhen; sie sollten durch Rechnungen mit anderen Sicherheitsindikatoren unterstützt werden;
- von etwa 10^4 bis etwa 10^6 Jahren auf quantitativen und/oder qualitativen Bewertungen des Endlagersystems durch unterschiedliche Sicherheitsindikatoren basieren. Mit Annäherung an einen Zeitraum von 10^6 Jahren sollte der Schwerpunkt auf qualitative Bewertung verlagert werden.

Für Zeiträume größer als etwa 10^6 Jahre stellen integrale Sicherheitsbetrachtungen keinen verlässlichen Bewertungsmaßstab mehr für das Endlagersystem dar.

Diese zeitlichen Möglichkeiten und Grenzen sind im Einklang mit den in Deutschland entwickelten Vorstellungen /3;7-9/.

Die zur Eingrenzung von Unsicherheiten erarbeiteten sicherheitstechnischen Anforderungen basieren in allen Ländern insbesondere auf dem Mehrbarrierenkonzept. Es stellt die beste Möglichkeit dar, Unsicherheiten zu redu-

zieren. Die Einhaltung der diesbzgl. Anforderungen ist daher eine notwendige Voraussetzung für jede quantitative und qualitative Langzeit-Sicherheitsbewertung.

Die quantitativen Langzeit-Sicherheitsbewertungen selbst stützen sich vorrangig auf mathematische Modelle, die u. a. auf subjektiven Annahmen über zukünftige Entwicklungen mit ihren Unsicherheiten beruhen (s. z. B. /10/).

Zur Abschätzung dieser Unsicherheiten sind grundsätzlich zwei Wege eingeschlagen worden:

Die deterministische Vorgehensweise beruht auf Annahmen, die als realistisch/konservativ eingeschätzt werden. Die Betrachtung unterschiedlicher Annahmen und Entwicklungen kann hier zu einer weiteren Eingrenzung von Unsicherheiten führen. Die probabilistische Vorgehensweise beruht auf der Annahme von Wahrscheinlichkeitsdichtefunktionen für Parameter, Modelle und Szenarien. Die Validierung der benutzten Modelle hat sich für die Eingrenzung von Unsicherheiten und damit auch zur Erhöhung der Akzeptanz z. T. als nützlich erwiesen; sie ist jedoch für einige Teilbereiche einer Langzeit-Sicherheitsbewertung (Grundwasserbewegung, Migration, Szenarienauswahl) nur mit Einschränkung oder nicht möglich.

Die Ausführungen verdeutlichen den subjektiven Anteil einer Langzeit-Sicherheitsbewertung und begründen, weshalb sie wesentlich auf menschlichem Ermessen, nicht aber auf Beweis beruht.

Vor diesem Hintergrund kommt den bereits erwähnten Sicherheitsindikatoren vor allem in Verbindung mit natürlichen Analoga eine besondere Bedeutung zu.

3. Sicherheitsindikatoren und natürliche Analoga

Die erwähnten Sicherheitsindikatoren und ihre diesbzgl. Bewertungsmaßstäbe können hinsichtlich ihrer Bedeutung für das Endlagersystem wie in Tab. 1 hierarchisch gegliedert werden. In Tab. 2 werden die Vor- und Nachteile der einzelnen Indikatoren stichwortartig miteinander verglichen.

Die als Indikatoren betrachteten Größen sind überwiegend bekannt oder in ihrer Bedeutung einsichtig. Der Stofftransport in und durch die Biosphäre (biosphärischer Stofftransport) bedarf jedoch noch ergänzender Erläuterungen.

Dynamische Prozesse wie Erosion durch Wasser und Wind, Lösungs- und Fließvorgänge und Sedimentation führen zu einem kontinuierlichen Transport z. B. natürlicher Radionuklide vom Land, durch Flüsse und Seen, in das Meer. Wenn deren Aktivität, gemittelt über große Gebiete und lange Zeiträume, mit der entsprechenden Aktivität aus einem Endlager verglichen wird, besteht die Möglichkeit, die radiologische Bedeutung des Endlagers zu bewerten. Neben dem Problem der künstlichen Nuklide muß hierbei untersucht werden, in welcher Form (gelöst oder in Mineralstrukturen gebunden) die natürliche Aktivität vorliegt; die aus dem Endlager austretenden Nuklide werden in der Regel als in Lösung befindlich betrachtet.

Die in dem Beispiel angesprochene Vergleichbarkeit bei der Nutzung von Sicherheitsindikatoren und damit auch von natürlichen Analoga ist eine entscheidende Frage, deren Beantwortung sich die Endlagerforschung in Zukunft verstärkt stellen sollte. Diesbzgl. Nachweise werden erleichtert, wenn sie auf wirtsgesteins-/standortspezifischen natürlichen Analoga beruhen, da hier insbesondere das Problem der Übertragbarkeit von Erkenntnissen auf andere geologische Verhältnisse teilweise oder ganz entfällt.

Ganz allgemein sind die verlässlichsten Sicherheitsindikatoren diejenigen, die mit Daten aus der Untersuchung natürlicher Analoga verglichen werden können. Der Grund hierfür ist, daß verlässliche Prognosen zukünftiger Entwicklungen nur auf der Basis von Daten und Modellen möglich sind, die die heutige geologische Gesamtsituation eines Endlagerstandortes aufgrund der dynamischen Entwicklung des geologischen Systems in der Vergangenheit erklären. Die oben erwähnten Prognose-/Isolationszeiträume erstrecken sich dabei in der Regel nur auf einen sehr kleinen Bruchteil der Zeiträume, in der die durch natürliche Analoga charakterisierten dynamischen Entwicklungen abgelaufen sind. Das menschliche Ermessen kann sich daher weitestgehend auf objektive, nachprüfbare naturwissenschaftliche Sachverhalte stützen. Auf diese Zusammenhänge hat Herrmann bereits vor über 10 Jahren hingewiesen /11/. Ihre Beachtung hat die heutige Langzeit-Sicherheitsbewertung für die deutschen Endlagerprojekte Konrad und Gorleben auf eine feste

Basis gestellt.

In Tab. 3 sind Beispiele für die Nutzung von Sicherheitsindikatoren in Verbindung mit diesbzgl. Bewertungsmaßstäben/natürlichen Analoga und ihr Beitrag zur Langzeit-Sicherheitsbewertung stichwortartig aufgeführt. In der angegebenen Literatur werden die Untersuchungen und ihre Ergebnisse detailliert beschrieben und diskutiert.

4. Schlußfolgerungen

1. Die Ergebnisse von Sicherheitsbewertungen in Form von Risiken/Dosen können für längere Zeiträume nur als Indikatoren für die Sicherheit eines Endlagersystems angesehen werden.
2. Die Nutzung einer Kombination von Sicherheitsindikatoren in Verbindung mit natürlichen Analoga kann einen wesentlichen Beitrag zur Reduzierung von Unsicherheiten bei der Langzeit-Sicherheitsbewertung leisten.
3. Der Nachweis, daß die Sicherheitsindikatoren/natürlichen Analoga das betrachtete Endlagersystem im jeweils betrachteten Zeitraum repräsentieren, ist von entscheidender Bedeutung für die Langzeit-Sicherheitsbewertung und ihre Akzeptanz.
4. Wirtsgesteins-/standortspezifische Analoga stellen beim Nachweis ihrer Übertragbarkeit auf das Endlagersystem in der Regel geringere Ansprüche.
5. Untersuchungen an wirtsgesteins-/standortspezifischen Analoga für die deutschen Endlagerprojekte Konrad und Gorleben weisen ein Isolationspotential nach, daß von der Entstehung des Wirtsgesteins und des geologischen Systems bis zur Gegenwart reicht. Vergleichbare Untersuchungen anderer Standorte können daher zu keinen diesbezüglich besseren Befunden führen.

Literaturverzeichnis

- /1/ Appel, D.: Kann die Langzeitsicherheit von Endlagern für radioaktive Abfälle zuverlässig nachgewiesen werden? Methodische Probleme beim Umgang mit langen Zeiträumen. In "Sicherheitstechnische Aspekte bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle" (Ed.: R. Gömmel), GSF-Bericht 6/92, Braunschweig (1992) 17- 22

- /2/ Disposal of radioactive waste: Can long-term safety be evaluated? A collective opinion. OECD/NEA, Paris (1991)

- /3/ Röthemeyer, H. (Ed.): Endlagerung radioaktiver Abfälle. Wegweiser für eine verantwortungsbewußte Entsorgung in der Industriegesellschaft. VCH-Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim (1991)

- /4/ Radioactive Waste Repository Licensing, Synopsis of a Symposium sponsored by the Board on Radioactive Waste Management, National Academy Press, Washington, D. C. (1992)

- /5/ Röthemeyer, H.: Aspects of a confidence - building process in long term safety evaluation for HLW-repositories. Proc. Int. Conf. Safewaste 93, Avignon, 13.-18. Juni, 1993, Bd. 1, S. 290

- /6/ Safety indicators in different timeframes for the safety assessment of underground radioactive waste repositories. Entwurf, IAEA, Wien (1993), wird veröffentlicht.

- /7/ Ehrlich, D., Röthemeyer, H., Stier-Friedland, G., Thomauske, B.: Langzeitsicherheit von Endlagern. Atomwirtschaft 31 (1986) 231

- /8/ Herrmann, A.G., Knipping, B.: Waste Disposal and Evaporites - Contributions to Long-Therm Safety. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg 1993

- /9/ Zeitrahmen für die Beurteilung der Langzeitsicherheit eines Endlagers für radioaktive Abfälle. Gemeinsame Stellungnahme der Reaktorsicherheitskommission (RSK) und der Strahlenschutzkommission (SSK). 233. Sitzung der RSK am 22.06.1988, 84. Sitzung der SSK am 30.06.1988.

- /10/ Storck, R.: Langzeitsicherheitsnachweise unter Berücksichtigung von Unsicherheiten. Atomwirtschaft 4 (1993) S. 285.
- /11/ Herrmann, A.G.: Radioaktive Abfälle. Probleme und Verantwortung. Berlin; Heidelberg; New York: Springer, 1983.
- /12/ Knipping, B.: Basalt intrusions in evaporites. Lecture Notes in Earth Sciences, Springer-Verlag, Berlin - Heidelberg - New York - Tokyo (1992)
- /13/ Brammer, K.-J.: Stoffbestand und Lanthanidenverteilung der wasserunlöslichen Mineralfraktion in marinen Zechsteinevaporiten. Dissertation, Technische Universität Clausthal 1992.
- /14/ Ehrlich, D.: Entsorgung radioaktiver Abfälle - Strahlenschutzaspekte bei der Endlagerung. Strahlenschutz (Hrsg. J. Hacke, A. Kaul, W. Kraus, R. Neider, H. Rühle), H. Hoffmann Verlag Berlin, 2. Auflage, 1991
- /15/ Sonntag, C.: Environmental isotopes and noble gases in brines from the Konrad iron mine, Salzgitter. Proc. Intern. Symp. on Isotope Techniques in Water Resources Development. IAEA-SM-319/14, IAEA Wien (1992)
- /16/ Brammer, K.-J., Knipping, B.J.: The origin of formation waters in the abandoned Konrad iron ore mine (Salzgitter, Germany). Eur. J. Mineral. 5, 1993, S. 787-797
- /17/ Delisle, G.: Permafrost in Nordeuropa und Genese glazialer Rinnen während Glazialstadien. BGR-Bericht, Archiv-Nr. 193 486. Hannover: BGR, Juni 1988. Genese glazialer Rinnen in Nordeuropa während Glazialstadien. BGR-Bericht, Archiv-Nr. 105 506. Hannover: BGR, Juli 1989
- /18/ Herrmann, A.G., Knipping, B.: Fluide Komponenten als Teile des Stoffbestandes der Evaporite im Salzstock Gorleben - Vorkommen, Herkunft, Entstehung und Wechselwirkungen mit den Salzgesteinen. Persönliche Information über ein Gutachten für das Niedersächsische Umweltministerium, 1993

Endlagersystem	Sicherheitsindikatoren	Bewertungsmaßstab
Mensch	Gesundheit (Dosis, Risiko)	Der Schutz der Gesundheit zukünftiger Generationen muß denselben Maßstäben genügen, die heute gültig sind (Grenzwerte, Richtwerte, ALARA)
Biosphäre Lithosphäre Endlagerbereich (Nahfeld)	Konzentration (z. B. Aktivität, Toxizität); biosphärischer Stofftransport; Stofftransport durch Barrieren; Zeit	Vergleich mit natürlichen Konzentrationen/ Stofftransporten; abgeleitete Maßstäbe wie Anforderungen an Freisetzungsraten und Laufzeiten
Abfall	Aktivität Toxizität	Vergleich mit natürlichen und/oder in einer Industriegesellschaft akzeptierten Aktivitäten/ Toxizitäten; abgeleitete Maßstäbe wie Zeitrahmen für Sicherheitsbetrachtungen

Tab. 1: Hierarchie von Sicherheitsindikatoren und Bewertungsmaßstäben für die Langzeit-Sicherheitsbewertung von Endlagern (nach [6] mit Ergänzungen vom Autor)

Sicherheitsindikator	V o r t e i l	N a c h t e i l
Dosis	direkter Indikator für menschliche Gesundheit; integraler Indikator für alle Expositionspfade	Langzeitprognosen wegen Unsicherheiten (Biosphäre, Mensch) problematisch; kein direkter Indikator für Umwelt
Risiko	wie Dosis und zusätzlich: Wahrscheinlichkeit für Exposition wird berücksichtigt; direkter Vergleich mit anderen Risiken möglich	wie Dosis und zusätzlich: Risiko-bewertung von Wertorientierung abhängig; Bewertung von Wahrscheinlichkeiten subjektiv und wissenschaftlich problematisch; Berechnung kompliziert
Konzentration	konzeptionell einfacher Indikator; vom Menschen unabhängig; Maß für lokale Beeinflussung	kein direkter Vergleichsmaßstab für künstliche Nuklide; Probleme bei der Festlegung einer Vergleichsgröße
Biosphärischer Stofftransport	von lokaler Biosphäre und vom Menschen vergleichsweise unabhängig;	wie Konzentration und zusätzlich: konzeptionelle Probleme; kein lokaler Sicherheitsindikator
Stofftransport durch Barrieren	direkter Indikator für Barrierenfunktion	kein direkter Bezug zur Sicherheit; mögliche Minderung der Bedeutung des übergeordneten Schutzzieles
Zeit	wie Stofftransport durch Barrieren und zusätzlich: Verständnis einfach	kein direkter Bezug zur Sicherheit
Toxizität	Konzept einfach; Indikator für Zeitrahmen	unvollständiger und von Annahmen empfindlich abhängiger Indikator

Tab. 2: Vergleich von Sicherheitsindikatoren [6]
(Hinweis: Die wichtigsten Indikatoren sind diejenigen, die mit Daten von Untersuchungen an natürlichen Analoga verglichen werden können.)

Standortbezug	Sicherheitsindikator	Bewertungsmaßstab/ natürliches Analogon	Beitrag zur Langzeit- Sicherheitsbewertung
(standortunabhängig); salzspezifisch	Zeit; Stofftransport durch Barrieren	<p>Kreislauf des Salzes: mittlere zeitliche Massenänderungen von Salzgesteinen</p> <hr/> <p>Eindringen von ba- saltischen Schmelzen mit flüssigen und gas- förmigen Komponenten in Salzgesteine</p>	<p>Isolationspotential von Salzformationen für Endlager, $10^6 - 10^7$ Jahre; Freisetzungsrates nach Ausschöpfung des Iso- lationspotentials: 10^{-6} / Jahr; im Ein- klang mit Befunden in Gorleben /3/</p> <hr/> <p>Mineralreaktionen und Stofftransporte für Endlagerung hochaktiver Abfälle/ abgebrannter Brennelemente /8, 12, 13/</p>
standortunabhängig	Toxizität	Radio- und Chemotoxizi- tät natürlicher ober- flächennaher Gewässer: potentielle Veränderun- gen durch radioaktive Abfälle/abgebrannte Brennelemente (Radio- toxizität) und feste Reststoffe aus Kohle- verbrennung (Chemotoxi- zität)	Radiotoxizität nach etwa 10 000 Jahren vergleich- bar mit Chemotoxizität und am Ende des Isolati- ons-/Prognosezeitraums für Endlager vernachläs- sigbar; stützendes Argu- ment für Zeitrahmen für Sicherheitsbetrachtungen /7/

Konrad	Konzentration	natürliche Radionuklidkonzentrationen im oberflächennahen Grundwasser	nuklidspezifische Bewertung der natürlichen Barrieren /14/
	Zeit; Stofftransport durch Barrieren	Alter der natürlichen, tiefen Grundwasser	Deutung der Wässer als Formationswässer (etwa $1,5 \cdot 10^8$ Jahre alt); Grundwasserbewegung im Bereich mm / 1000 Jahre /15, 16/
	Toxizität	Radio- und Chemotoxizität natürlicher oberflächennaher Gewässer: potentielle Veränderungen durch Radiotoxizität der Endlagerformation und der radioaktiven Abfälle sowie durch Chemotoxizität (hypothetisch) endgelagerter Reststoffe aus Kohleverbrennung	natürliche Verhältnisse werden nach einigen 100 000 Jahren erreicht; die Chemotoxizität überschreitet die Radiotoxizität nach einigen 10 000 Jahren /14/

<p>Gorleben</p>	<p>Stofftransport durch Barrieren; Zeit</p>	<p>eiszeitliche Erosionsereignisse; natürlicher Stoffbestand des Kaliflözes Staßfurt; Gebirgslösungen und Lösungseinschlüsse</p>	<p>Modellierung der Naturbeobachtung und Prognose der Auswirkungen zukünftiger (eiszeitlicher) Erosionsereignisse /17/; Stoffbestand der untersuchten tieferen Bereiche des Kaliflözes und Steinsalzes seit 250 Millionen Jahren durch wäßrige Lösungen aus dem Deckgebirge und dem Nebengestein nicht verändert; i. e. für die Vergangenheit Nachweis eines Isolationspotentials von $2,5 \cdot 10^9$ Jahren /18/</p>
-----------------	---	--	---

Tab. 3: Beispiele für die Nutzung von Sicherheitsindikatoren in Verbindung mit Bewertungsmaßstäben/natürlichen Analoga und ihr Beitrag zur Langzeit-Sicherheitsbewertung

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Natürliche Analoga:
Eine zusätzliche Möglichkeit zum Langzeitsicherheits-
nachweis für geologische Endlager;
Überblick über bisherige nationale und
internationale Arbeiten**

**W. Brewitz
GSF-IfT**

Natürliche Analoga: Eine zusätzliche Möglichkeit zum Langzeitsicherheitsnachweis für geologische Endlager; Überblick über bisherige nationale und internationale Arbeiten

Dr. W. Brewitz

GSF-Institut für Tief Lagerung, Theodor-Heuss-Str. 4, D-38122 Braunschweig

Einführung

Der Begriff "Analogon" ist so eingängig, daß wir uns kaum die Mühe machen, ihn genau zu definieren und zu interpretieren. Der Begriff, der im Zusammenhang mit der Endlagerforschung aus dem Englischen zu uns gekommen ist, bedeutet soviel wie Entsprechung, Ähnlichkeit, Gleichheit von Verhältnissen. Er wird laut Duden auch gebraucht, wenn mathematische Probleme durch ein und dieselbe mathematische Beziehung beschreibbar sind oder ein Wert durch eine physikalische Größe dargestellt werden kann. Sinngemäß ist auch der Begriff "Analogieschluß" anzuführen, bei dem von der Übereinstimmung zweier Dinge in einigen Punkten auf Gleichheit auch in anderen Punkten geschlossen wird.

Im engeren Sinn werden als natürliche Analoga Prozesse im Zusammenhang mit dem Transport von Radioelementen in den vom Grundwasser durchströmten Bereichen der Geosphäre verstanden, die naturgegeben stattfinden und die mit den Prozessen Übereinstimmung zeigen, die langfristig nach der Einlagerung radioaktiver Stoffe in einer geologischen Formation erwartet werden können. Besonders im Hinblick auf die Endlagerung radioaktiver Abfälle in kristallinen Gesteinen haben verschiedene Länder entsprechende wissenschaftliche Studien durchgeführt.

Der jüngste Bericht von TVO, Finnland, faßt die Ergebnisse sehr anschaulich zusammen. Ich werde im Rahmen meiner Ausführungen auf die Arbeiten von Alligator River, Pocos de Caldos und Cigar Lake nur überschlüssig eingehen, da Herr Fuchs in seinem Vortrag die Lagerstätten und Mobilisierungsprozesse von Uran abhandeln wird - wie ich vermute. Überhaupt ist festzustellen, daß ich mich im wesentlichen auf die ausländischen Arbeiten beziehen und besonders auch aus den Schweizer Berichten zitieren werde.

Ich möchte im ersten Teil meines Vortrages noch einmal kurz auf das Ziel der Analogiestudien eingehen, nämlich die **Sicherheitsbeurteilung von Endlagern für die Nachbetriebszeit**. Dafür sind in den letzten 10 - 15 Jahren analytische Methoden zur numerischen Behandlung der die Langzeitsicherheit bestimmenden Prozesse und Effekte und zur Berechnung von möglichen Freisetzungen und deren Konsequenzen für den Menschen (Dosisbelastung) entwickelt worden. Für die Bundesrepublik ist vorzugsweise die PSE-Studie zu nennen, und innerhalb der EG war es das multinationale Projekt PAGIS, mit denen aufgezeigt wurde, daß eine ausreichende Isolierung der Radionuklide in der Geosphäre möglich ist. Damit steht eine Methode für die notwendige Sicherheitsbeurteilung von Endlagern zur Verfügung, die allerdings noch weiterzuentwickeln und durch Validierungsexperimente abzusichern ist.

Textzitate aus "Nagra informiert 2/85" sind durch kursive Schrift gekennzeichnet

Für die Endlagerung von stark wärmeentwickelnden Abfällen im Steinsalz sind aus Sicht des deutschen Konzeptes folgende Parameter und Prozesse bestimmend für die langfristige Isolierung der Abfälle:

1. Geologische und klimatische Veränderungen.
2. Salzstockhebung und Subrosion.
3. Verhalten der Barriere "Salzgestein" bei Wärmeeintrag.
4. Korrosion von Glasmatrix und Behältermaterialien.
5. Mobilisierung und Rückhaltung von Radionukliden im Nahbereich.
6. Radionuklidfreisetzung ins Deckgebirge.
7. Ausbreitung und Rückhaltung von Radionukliden beim Transport im Deckgebirge.
8. Radionuklidausbreitung in der Biosphäre.

Von besonderer Wichtigkeit sind dabei die Ereignisabläufe, die im Störfall zu einer Mobilisierung und Freisetzung von Radionukliden führen können. Diese Szenarien sind im Hinblick auf ihre Realitätsnähe zu überprüfen.

Neben der Ermittlung der entsprechenden Daten besteht das zentrale Problem, das Wesen und die Wirkung dieser Vorgänge und Phänomene weit in die Zukunft zuverlässig vorausszusagen. Die meist komplexen Rechenmodelle der Sicherheitsanalyse enthalten vereinfachende Annahmen und Extrapolationen in die Zukunft, deren Gültigkeit im Prinzip nur durch Vergleiche mit entsprechenden natürlichen Analoga geprüft werden können.

Solche Analoga haben wir in Deutschland bisher nicht systematisch untersucht. Vielleicht bieten aber verschiedene internationale Arbeiten dafür geeignete Ansätze. Von daher ist der Workshop sehr zu begrüßen, und vielleicht läßt sich dieses notwendige Forschungsthema in der Zukunft stärker strukturieren mit Hinblick auf die besonderen Verhältnisse der Endlagerung in Steinsalzformationen.

Wozu brauchen wir Analoga?

Natürliche Analoga sollten grundsätzlich möglichst quantitative Aussagen liefern, die in den sicherheitsanalytischen Modellen direkt verwertet werden können. Bis heute ist dies allerdings noch nicht gelungen. Man mußte sich bisher zumeist mit qualitativen und richtungsweisenden Ergebnissen begnügen.

Sofern überhaupt geeignete natürliche Analoga gefunden werden können, sind die Chancen für quantitative Ergebnisse um so größer, je enger der umschriebene Teilprozess ist und je präzisere Fragen das Analogsystem zuläßt. Der Extremfall eines natürlichen Analogons zur gesamten Endlagersituation existiert nur andeutungsweise (z. B. Oklo-Phänomen). Solche Erzlager haben als große und eindruckliche Demonstrationsobjekte viele interessante Aspekte, sind aber als Ganzes für die Validierung von sicherheitsanalytischen Modellen nicht verwertbar.

Der Transport von Radionukliden aus einem Endlager für hochradioaktive Abfälle in die Biosphäre wird durch eine Serie von Sicherheitsbarrieren verhindert bzw. verzögert.

Für das deutsche Konzept sind diese technischen und geotechnischen Barrieren

- die Glasmatrix (HAW)
- das Brennelement (DE)
- Bohrlochverfüllung und Bohrlochverschluß (HAW)
- der Stahlbehälter (DE)
- Streckenversatz
- Abschlußdämme
- Schachtverfüllung und Schachtverschluß

sowie die geologischen Barrieren, bestehend aus

- Steinsalzgebirge und
- Deckgebirge.

Aufgabe ist es nun, in der Natur nach Situationen und Prozessen zu suchen, welche das Langzeitverhalten der Barrieren bzw. diesbezügliche Einzelaspekte belegen und beschreiben. Das zu betrachtende Zeitintervall beträgt dabei 10^4 bis 10^6 Jahre.

Das Inventar eines Endlagers selbst kann mit vorhandenen oder denkbaren Inventaren natürlicher radioaktiver Stoffe verglichen werden.

Im Bereich der Biosphäre schließlich bilden die in Quell- und Oberflächenwässern enthaltenen natürlichen Radionuklide einen Grundpegel der Radioaktivität, mit dem mögliche, aus einem Endlager stammende Beiträge verglichen werden müssen.

Das zu erwartende Verhalten der technischen und geotechnischen Barrieren sowie ihre Lebensdauer kann aufgrund der bisherigen Kenntnisse und vieler Untersuchungen abgeschätzt und in sicherheitsanalytischen Modellen numerisch behandelt werden. Natürliche und archäologische Analoga sollten direkte Aussagen über das Langzeitverhalten der Barrierenmaterialien liefern und damit eine Beurteilung der Modellannahmen erlauben.

Korrosionsprozesse an technischen Barrieren

Für die **Beurteilung verglasteter Abfälle** sind folgende Prozesse wichtig:

- Reaktionen mit Salzlösungen (Mechanismen, Kinetik)
- Oberflächenschichtung (Bildung und Stabilität)
- Fixierung ausgelaugter Elemente in Glaskorrosionsprodukten
- Langzeitstabilität von Gläsern (Rekristallisation)

Natürliche Analoga sind vulkanische Gläser und - im weiteren Sinne - auch archäologische Glasproben. Vulkanische Gläser sind meist jünger als $2 \cdot 10^6$ Jahre. Sie haben ein breites Spektrum der Zusammensetzung zwischen ryolitischen Obsidianen (ca. 80% SiO_2) und basaltischen Gläsern (ca. 50% SiO_2), die der Zusammensetzung von Abfallborosilikatglas (abgesehen vom Borgehalt) ziemlich nahe kommt. Eine Rekristallisation erfolgt bei niedrigen Temperaturen (< 100 °C) erst nach 10^6 - 10^7 Jahren. Falls nur wenig Wasser verfügbar ist, bilden sich Hydratisierungsschichten, die verkrusten und das Glas vor schneller Korrosion schützen.

Derartig bekannte natürliche Prozesse sind nicht auf das deutsche HAW-Endlagerkonzept übertragbar, einerseits weil die Temperaturen bei der Einlagerung noch ca. 200 °C erreichen und weil, insbesondere in der ersten Phase nach der Einlagerung, noch konzentrierte Na-Mg-Cl-Lösungen auf die Gläser einwirken können. Die Standzeit der Gläser unter derartigen Störfallbedingungen ist deutlich reduziert. Ohne derartige Annahmen spielt die Korrosion der HAW-Gläser allerdings keine besondere Rolle für die Endlagersicherheit, da sich nach kurzer Zeit die Resthohlräume unter dem Einfluß der Wärme schließen und die Verschlußkörper in den Bohrlöchern kompaktieren.

Dadurch verheilt die geologische Barriere "Steinsalz" um das Endlagerbohrloch herum. Wegen der Kurzfristigkeit dieser komplexen Vorgänge, für die es keine Analoga gibt, erscheint es wesentlich wichtiger, das Isolationsverhalten des Steinsalzes unter Wärmeeinfluß zu untersuchen. Dafür gibt es neben den einschlägigen Labor- und In-situ-Versuchen auch natürliche Analoga, die es wert sind, näher analysiert zu werden. Ich denke dabei an die Basaltintrusionen, die in Hessen und Thüringen die flachliegenden Salzlagerstätten durchschlagen haben. An diesen geologischen Situationen kann man studieren, ob und wie weit eine hohe Wärmebelastung die Eigenschaften des Steinsalzes nachhaltig verändert haben.

Auf Analoga, die die Barrierefunktion des Steinsalzes deutlich belegen, gehe ich später noch näher ein. Davor noch einmal zurück zu den Abfällen, die im Salz eingelagert werden. Für die **Eisenbehälter bei der direkten Endlagerung** von Brennelementen gilt im Prinzip das gleiche wie für das HAW-Konzept. Salzlauge kann nur so lange die Behälter erreichen, bis die Resthohlräume im Versatz durch die schnell fortschreitende Konvergenz und die damit einhergehende Materialkompaktion geschlossen sind. Neben der Frage, ob das begrenzte Laugendargebot überhaupt zur Korrosion bis zur Versagensgrenze ausreicht, interessieren Kinetik und Mechanismus der Eisenkorrosion unter den zu erwartenden geochemischen Bedingungen. Auch hier ist die Frage, ob es überhaupt Analoga, die eine Abschätzung der langfristigen Prozesse zulassen, gibt. Vielleicht eignen sich noch am ehesten archäologische Analoga für die Ermittlung bzw. Bestätigung von Langzeit-Korrosionsraten.

So zeigen Eisenobjekte unter verschiedensten Umgebungsbedingungen recht einheitliche Korrosionsraten von 0,1 - 10 µm/Jahr. Römische Eisenobjekte aus dem Schutt einer alten Quelle, vermutlich unter Luftabschluß korrodiert, zeigten Raten von 1 µm/Jahr.

Korrosion von Abfällen und Mobilisierung von Radionukliden

Das eigentliche Nahbereichsproblem für ein Endlager im Salz liegt weniger im Bereich der Korrosionsbeständigkeit von Glasprodukten oder Pollux-Behältern, da der Wärmeeintrag in das Gebirge für eine schnelle Konvergenz, d. h. für ein schnelles Schließen der umgebenden Hohlräume, sorgt, so daß ein Laugenkontakt nur in begrenztem Umfang und für einen begrenzten Zeitraum in Betracht gezogen werden braucht. Anders liegen die Verhältnisse in Einlagerungsfeldern mit nur gering wärmeentwickelnden mittelradioaktiven Abfällen. Zum einen sind die Mengen - und damit das in Anspruch genommene Hohlraumvolumen im Endlager - wesentlich größer, zum anderen dauern die Konvergenzvorgänge wegen der fehlenden "Wärmebeschleunigung" erheblich länger (ca. 500 bis 1000 Jahre). Unsere bisherigen sicherheitsanalytischen Arbeiten haben aufgezeigt, daß die **Korrosion der schwach- und mittelradioaktiven Abfälle** mit ihrer Zementmatrix durch NaCl- oder Q-Laugen

und die Bildung eines stark von diesen Prozessen abhängigen chemischen Milieus die Mobilisierung der Radionuklide bzw. die Bildung von Löslichkeitsgrenzen und die Ausfällung mit der Bindung an Korrosionsprodukte bestimmt. Die Frage ist, welche Radionuklide in welchen Konzentrationen letztlich in Lösung bleiben und über Auspreßvorgänge in das überlagernde Deckgebirge freigesetzt werden können. In einem ersten Ansatz haben wir im Rahmen unseres FE-Vorhabens "Langzeitsicherheitsbewertung" versucht, für derartig komplexe chemische Systeme Analoga zu identifizieren. Wichtiger erster Prozess ist die Zementkorrosion durch zutretende NaCl- oder Q-Lauge, wobei durch die Hydrolyse von Bestandteilen des Zements sich pH-Werte von ~ 12 bzw. 6,6 einstellen. Die Eh-Werte der Salzlösungen werden um 200 bis 300 mV abgesenkt. Im direkten Kontakt mit α -Strahlern tritt durch Radiolyseeffekte eine Verschiebung zu niedrigeren pH-Werten mit höheren Eh-Werten auf. Dadurch wird die Lösegeschwindigkeit im allgemeinen erhöht. Für den Übergang ins Deckgebirge ist davon auszugehen, daß eine substantielle Verdünnung der Lösung stattfindet (Faktor $> 10^4$) und daß sich dadurch die herrschenden chemischen Bedingungen im Deckgebirge nicht ändern. Wie sich diese am Standort Gorleben darstellen, ist von Herrn Kim eingehend bearbeitet worden. Danach liegen die pH-Werte zwischen 6,5 und 9 und die Eh-Werte unterhalb 600 mV, meist zwischen -70 und -200 mV. In Abhängigkeit von der Teufe wurden vier hydrochemische Hauptgruppen gefunden: CaSO_4 -, CaHCO_3 - und NaHCO_3 -Wässer, und in großen Tiefen Salzlösungen bis max. 100 000 mg/l NaCl. Zusammenfassend ist zu sagen, daß ein Analogon für ein System mit einer hohen Alkaliintensität und vermutlich reduzierenden Bedingungen zu identifizieren ist. Die Kombination von hohem pH und tiefem Eh ist in der Natur jedoch unüblich, da beide Parameter sehr schnell auf kleinste Mengen Luft reagieren.

Freisetzung von Radionukliden in die Geosphäre

Vor diesem Hintergrund wären für den Endlagernahbereich und den Übergang zum Deckgebirge folgende geologische Prozesse auf ihre Analogiefähigkeit zu überprüfen:

1. Fällungs- und Lösungsreaktionen von Schwermetallen (auch Uran) im Atlantis-II-Tief im Roten Meer.
2. Schwermetallhaltige, heiße saline Lösungen in sedimentären Lockergesteinen im Salton Sea Geothermal System.
3. Vorkommen von natürlichen heißen Salzlösungen im Cheleken Geothermal System.
4. Vorkommen von stark alkalischen Wässern in der Semaildecke von Oman.
5. Uranvorkommen in sedimentären Fazies wie Sandsteinen und braunkohlehaltigen Sedimenten.

Im einzelnen wäre festzustellen, inwieweit das chemische Milieu den Verhältnissen in der Umgebung eines Endlagers entsprechen und wie sich das spezifische Verhalten der verschiedenen Radionuklide in einem derartigen Milieu darstellt. Dazu sind im einzelnen noch Laborversuche sowie die Untersuchung der natürlichen Gegebenheiten notwendig, um eine konkrete Aussage treffen zu können. Die Arbeiten von Herrn Kim deuten jedenfalls in diese Richtung. Insbesondere geht es dabei um die Löslichkeit und Speziation von solchen Radioelementen (U, Th, Np, Am, Tc), deren Kon-

zentrationen in Formationswässern stark durch Löslichkeitsgrenzen bestimmt werden. Die Konzentrationsverteilung der gelösten Spezies (Speziation) hängt vom Laugenangebot ab und läßt sich durch Modelle des thermodynamischen Gleichgewichts berechnen, sofern die chemische Zusammensetzung des Wassers bekannt ist.

Als natürliches Analogon für den Transport derartiger Radioelemente im Deckgebirge kann z. B. eine wasserdurchströmte Anreicherungszone von Uran und Thorium dienen, in der Sättigung erreicht ist. Die Konzentrationsmessung des betreffenden Radioelementes erlaubt dann im Prinzip eine Überprüfung entsprechender thermodynamischer Rechnungen. Die oft unbefriedigende Übereinstimmung zwischen Rechnung und Analyse, z. B. für Th (Morro do Ferro, Th-Vererzung), ist meist eine Folge ungenügender analytischer Charakterisierung des Formationswassers. So ist es z. B. sehr leicht möglich, einen hochwirksamen, aber in sehr niedriger Konzentration vorhandenen organischen Komplexbildner zu übersehen.

Vielleicht ist es möglich, entsprechende Analoga für den Geosphärentransport, z. B. von U in den neuen Bundesländern, zu identifizieren und zu bearbeiten. Dazu müssen folgende Voraussetzungen erfüllt sein:

- a) Eine definierte Quelle der interessierenden Elemente (z. B. eine Uranvererzung);
- b) eine geeignete und definierte hydrogeologische Struktur;
- c) ein aus der Nuklidmigration resultierendes meßbares Konzentrationsprofil.

Isolierung und Rückhaltung der radioaktiven Stoffe im Wirtsgestein

Neben den chemischen Prozessen spielen Verzögerungsmechanismen im Mehrbarrierenkonzept von Endlagern in geologischen Formationen eine bedeutende Rolle. Dies betrifft besonders die Endlagerung in Sediment- und Felsgesteinen, die grundsätzlich nicht absolut undurchlässig sind. Das Steinsalz spielt hier eine besondere Rolle, wie u. a. auch die sicherheitsanalytischen Arbeiten im Rahmen des EG-Projektes PAGIS gezeigt haben. Für den Fall, daß das Endlager in einer ausreichend mächtigen Steinsalzformation den Sicherheitserfordernissen entsprechend neu aufgefahren wird und speziell die Sicherheitsabstände zu Salzstockflanken und kritischen Bereichen eingehalten werden, verhindern die Eigenschaften des Steinsalzes eine Freisetzung von Radionukliden in das Deckgebirge. Voraussetzung ist allerdings, daß die Zugänge (Schächte etc.) dauerhaft verschlossen und andere mögliche Wasserwegsamkeiten nicht aktiviert werden.

Für die Rückhaltefunktion von Steinsalzformationen und Salzstöcken lassen sich verschiedene Analoga anführen, wie z. B. der Einschluß von Salzlaugen (Ursprungs- und Metamorphoselaugen), Gasen und Erdöl über geologische Zeiträume. Viele geologische und geochemische Arbeiten in Deutschland haben sich mit dieser Thematik beschäftigt. Es fehlt allerdings noch eine Quantifizierung und Zuordnung dieser Phänomene zu klaren Zeitmarken, mit der Möglichkeit der Extrapolation auf zukünftige geologische Entwicklungen.

Statt dessen wurden verstärkt Mechanismen untersucht, die die Isolationseigenschaften des Steinsalzgebirges bestimmen, bzw. unter besonderen Randbedingungen zu deren Abminderung führen können. Das beginnt bei der Verfüllung und Minimierung der

Resthohlräume. Durch Konvergenzvorgänge kann das Versatzmaterial über kürzere oder längere Zeit so kompaktiert werden, daß keine Dichteunterschiede zum umgebenden Steinsalzgebirge mehr bestehen. Insbesondere wärmeerzeugende Abfälle fördern diesen Prozess. Als Analogon aus der Zeit der Kalisalzgewinnung lassen sich verfüllte Abbaustrecken heranziehen, die heute nach ca. 70 - 80 Jahren sich kaum noch in dem wiederverfüllten Gebirgsverband erkennen lassen. Die Durchlässigkeit des Anhydrits wird m. E. zu voreilig als die Langzeitsicherheit eines Endlagers nachhaltig gefährdende Gesteinseinheit dargestellt. Diese Einschätzung bzw. Annahme geht von Erfahrungen aus, die beim Kalisalzabbau in den oberen Stockwerken eines Salzstocks gemacht worden sind. Vor zwei Jahren haben wir eine weitergehende Auswertung des bergmännischen Wissens vornehmen lassen, wobei sich gezeigt hat, daß mit zunehmender Teufe die Laugenzuflüsse aus dem Anhydrit stark zurückgehen, dagegen die Gasgehalte deutlich ansteigen. Diese Abhängigkeit deutet auf ein Analogon, das die Dichtheit der geologischen Barriere bestätigt.

Abseits von diesen einfachen und empirisch belegten Zusammenhängen bietet die detaillierte geochemische Analyse der Salzminerale und ihrer Spurenelementgehalte nicht nur die Möglichkeit, die geologische Entwicklung der Salzstrukturen nachzuvollziehen und wissenschaftlich zu erläutern, sondern auch Aussagen über die zukünftigen Prozesse in Abhängigkeit von den geologischen Randbedingungen zu treffen. Die Arbeiten von Herrn Herrmann sind in dieser Richtung weit fortgeschritten. Wir haben mikroanalytische Arbeiten an Flüssigkeitseinschlüssen im Steinsalz der Asse durchgeführt und dabei verschiedene Bildungsphasen identifizieren können, die synsedimentäre, frühdiagenetische Prozesse, diagenetische oder lösungsmetamorphe Veränderungen und Rekristallisationsprozesse belegen. Hieraus ergeben sich Erkenntnisse über das langfristige Verhalten der Salzminerale, woraus auch Schlußfolgerungen über die zukünftige Entwicklung des Steinsalzes als geologische Barriere abgeleitet werden können.

Eine wichtige Frage zielt auf die Langzeitstabilität der Salzstöcke selbst, wobei als mögliches Szenario, das zur Freisetzung des Radionuklidinventars eines Endlagers führen kann, Subrosionsvorgänge a priori nicht außer Betracht gelassen werden können.

Die niederländischen Kollegen um Herrn Prij haben das Wissen um die Subrosion von Salzstöcken aufgearbeitet und dabei Aufstiegsgeschwindigkeiten von 0,4 mm/a und Subrosionsraten von 0,15 mm/a ermittelt. Bei einer sehr konservativen Betrachtungsweise, d. h. unter der Annahme der Maximalwerte, lassen sich deutliche Expositionswerte berechnen. Wir wissen jedoch, daß eine derartige Annahme nicht realistisch ist, da die Aufstiegsgeschwindigkeit und damit Subrosion keine einheitliche Größe ist, sondern in Abhängigkeit von den geologischen und klimatischen Randbedingungen variiert. Neben der Untersuchung der regionalgeologischen und tektonischen Standortbedingungen bietet sich die Möglichkeit, durch die Aufnahme von feinpetrographischen und geochemischen Details im Gipshut und Ablaugungsbereich geochronologische Zusammenhänge zu erkennen. Die Kollegen der BGR werden darüber noch im einzelnen berichten. Genaue Kenntnisse über Aufstiegs- und Ablaugungsgeschwindigkeit bieten eine Möglichkeit für einen Analogieschluß im Hinblick auf die zukünftige geologische Entwicklung des Salzstocks, auch unter Annahme wechselnder geologischer Rahmenbedingungen. Hier ergibt sich m. E. noch ein wichtiges Gebiet für die Grundlagenforschung, um die Langzeitfunktion der Barriere Steinsalz zu belegen bzw. zu erarbeiten.

Radionuklidtransport (Migration) in der Geosphäre

Abgesehen von dem für das Salzkonzept besonderen Problem der Langzeitstabilität des Wirtsgesteins gilt es natürliche, wie für die Endlagerkonzepte in anderen Formationen auch, Analogien für den Geosphärentransport, d. h. den Transport der Radioelemente durch das Deckgebirge, auszuwerten. Studien sind an Gesteinskontakten mit einer Konzentrationsdiskontinuität für Elemente der Uran-, Thorium-Zerfallsreihe verschiedentlich durchgeführt worden. Kontakte zwischen Intrusionen und verschiedenen Wirtsgesteinen (z. B. Granit, Gneis, Sedimente) sind meist Zonen intensiver hydrothermalen Aktivität, in denen man auch eine ausgeprägte Wanderung vieler Elemente erwartet.

Es hat sich aber gezeigt, daß sehr viele Elemente, darunter die meisten Radionuklide, praktisch an Ort und Stelle bleiben, auch bei intensivem und weiträumigem Wasserdurchsatz. Die Ausbreitung der kritischen Elemente erreicht meistens nur cm oder dm, in Ausnahmefällen, bei porösen Gesteinen, m in 10^6 - 10^7 Jahren.

Allerdings handelt es sich dabei meist um Prozesse bei hohen Temperaturen (bis $500\text{ }^\circ\text{C}$), die nicht einer Endlagersituation entsprechen und bei denen Mineralneubildungen mit zusätzlichen Reaktionsmechanismen auftreten können.

Für Kontakte poröser Gesteine bei tiefen Temperaturen ist eine Studie über diffusive Migration verschiedener Elemente aus einer 6000 Jahre alten marinen Sedimentschicht in die angrenzenden Süßwassersedimente von Interesse (Loch Lomond, Schottland).

Wesentliche Informationen über die Nuklidmigration unter schwachen hydrothermalen Bedingungen liefern die natürlichen präkambrischen "Reaktoren" von Oklo. Dort wurden vor etwa $2 \cdot 10^9$ Jahren in mehreren Reaktionszonen rund 10 t U-235 gespalten, wobei neben mehr als 10 t Spaltprodukten auch etwa 4 t Plutonium entstanden. Ohne hier auf die komplexen Zusammenhänge näher einzugehen, ist festzustellen, daß die beobachteten Migrationsdistanzen für die einzelnen Elemente qualitativ den Erwartungen entsprechen. Die beobachtete hohe Beständigkeit von UO_2 (und damit auch von PuO_2 und NpO_2) unter reduzierenden Bedingungen ist nicht verwunderlich, da bei ähnlichen Bedingungen eine Uranabscheidung aus sehr verdünnten Lösungen stattfindet.

Ein anderes eindruckliches Analogon für die Immobilität von Aktiniden (Np, Pu, Am, Cm) ist das Eisen/Thorium/Seltene Erden-Erzvorkommen von Morro do Ferro, Minas Gerais. Der oberflächennah verwitterte Erzkörper wird stark von Niederschlägen durchsetzt. Die Auslaugung von Th und Seltenen Erden ist jedoch auch unter den sehr ungünstigen herrschenden Bedingungen äußerst gering.

Im Komplex der Uranerz-Lager der Alligator River Region konnten bisher interessante Ergebnisse zum Migrationsverhalten von Uran und Tochternukliden auch unter oxidierenden Bedingungen erhalten werden.

Ausblick und Analogieschlüsse zum Gefährdungspotential von Endlagern

Grundsätzlich ist zu sagen, daß wir in Deutschland all diese Arbeiten zum Migrationsverhalten der Radioelemente wenig beachtet bzw. sie nicht systematisch ausgewertet haben, mit dem Ziel, Analogien zu den in unseren Transportmodellen wich-

tigen Parametern und Prozessen zu identifizieren. Ein Grund liegt darin, daß, wie schon vorher erwähnt, die wesentlichen Effekte in hochsalinaren Lösungen stattfinden und daß der Übergang in eine schwachsalinare Fazies mit den entsprechenden Konzentrationsänderungen noch wenig untersucht ist. Meines Erachtens müßte für diesen Vorgang ein geochemisches Modell entwickelt und das Migrationsverhalten für die wesentlichen Radionuklide berechnet werden, um mit diesem Wissen nach geeigneten Analogien in der Geologie zu suchen. Auf die Bedeutung der geochemischen Modellierung haben wir seit Jahren hingewiesen, ohne daß sich allerdings etwas Entscheidendes geändert hätte. Vielleicht ist es ja ein Ergebnis dieses Workshops, in Zukunft stärkeres Gewicht auf die Bearbeitung diesbezüglicher Fragestellungen zu legen. Wir sind darauf eingestellt, uns daran zu beteiligen und auch das bisher im Ausland erarbeitete umfangreiche Wissen aufzuarbeiten.

Ich möchte meine Ausführungen nicht schließen, ohne darauf hinzuweisen, daß im Hinblick auf das Gefährdungspotential eines Endlagers auch Vergleiche mit Uranerz-lagerstätten zulässig sind, da 99% der Toxizität in den ersten 1000 Jahren bereits abnehmen. Für die wesentlich darüber hinausgehenden Zeiträume lassen sich verschiedene natürliche Uranerzlagerstätten als Analogon heranziehen. Wichtig ist, daß diese Lagerstätten durch rein natürliche Phänomene seit Jahrmilliarden wirksam von der Biosphäre isoliert sind. So haben auch alle bisherigen Untersuchungen an natürlichen Analogsystemen die in den Sicherheitsanalysen für geologische Endlager gemachten Modellannahmen als mehr oder weniger konservativ erscheinen lassen.

Literatur

Baertschie, P.: Natürliche Analogsysteme. - Nagra informiert, Nr. 2, S. 8 - 18, Juni 1985.

Cramer, J. J., Smellie, J. A. T.: The AECL/SKB Cigar Lake Analog Study: Some Implications for Performance Assessment. - In: Proc. of 5th Meeting of CEC Natural Analog Working Group, Toledo, Spain, Oct. 6 - 9, 1992 (in Press).

Guntensperger, M. et al. (Ed.): Pocos de Caldas: Die Natur experimentiert mit. - Nagra informiert, Nr. 1, 52 S., 1993.

McKinley, I.: Natürliche Analoga in Oman. - Nagra informiert, Nr. 3, S. 38 - 44, Sept. 1987.

Brandberg, F.; Grundfelt, B.; Höglund, L. O.; Karlsson, F.; Skaglus, K.; Smellie, J.: Studies of Natural Analogues and Geological Systems - their Importance to Performance Assessment. - SKW Technical Report YJT-93-07, 166 p., April 1993.

Snelling, A. A.: Alligator Rivers Analogue Project. Geologic Setting. - Final Report, Vol. 2, OECD/NEA-Aust. Nucl. Sci. a. Technol. Org., DOE/HMIP/RR/92/072, 172 p., 1992.

Murakami, T. et al.: Alligator Rivers Analogue Project. Weathering and its Effects on Uranium Redistribution. - Final Report, Vol. 9, OECD-NEA/Aust. Nucl. Sci. a. Technol. Org., DOE/HMIP/RR/92/079, 138 p., 1992.

Fabryka-Martin, J. T., Curtis, D. B.: Alligator Rivers Analogue Project. Geochemistry of ^{239}Pu , ^{129}I , ^{99}Tc and ^{36}Cl . - Final Report, Vol. 15, OECD/NEA-Aust. Nucl. Sci. a. Technol. Org., DOE/HMIP/RR/92/085, 82 p., 1992.

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Grundlagen für die Bewertung tektonischer
Strukturen als natürliche Analoga mit
Hilfe geomechanischer Modelle**

**M. Langer
BGR**

Kurzfassung

Die Betrachtung und Bewertung natürlicher Analoga - z.B. eine tektonische Struktur - ist Kernstück der prognostischen Geologie. Sie ergänzen als *qualitative* Arbeitsweise quantitative Experimente bzw. sind, in Zahl und Maß ausgewertet, quantitativer Bestandteil von Berechnungs- und Prognosemodellen.

Für geomechanische Problemlösungen im Rahmen von Langzeitsicherheitsanalysen ist auch die *quantitative* Betrachtungsweise natürlicher Analoga erfolgversprechend. Voraussetzung dafür ist, daß die Naturbeobachtungen in quantitative konzeptionelle Modelle, in physikalische Modelle und in numerische Modelle eingesetzt werden können.

Quantitative strukturgeologische, geomechanische und numerische Methoden stehen dafür zur Verfügung.

Im Rahmen der Langzeitsicherheitsbeurteilung von Endlagern wird das geologische System durch die Prognose zukünftiger geochemischer, hydrogeologischer und tektonischer Vorgänge analysiert ("prognostische Geologie"). Durch Vergleich mit tektonischen Strukturen als natürliche Analoga (z. B. Salzstockbildung, halokinetische Langzeitdeformationsvorgänge) kann der Vertrauensbereich in die dafür notwendige Datenbasis wesentlich vergrößert werden. Dies gilt insbesondere für die Übertragbarkeit geomechanischer Labordaten auf größere Bereiche und für längere Zeiten. Quantitativ betrachtet dienen diese Untersuchungen dann vor allem auch der Validierung von geomechanischen Stoffgesetzen. Hauptziel ist dabei die Rückführung phänomenologischer gebildeter Stoffgesetze auf physikalisch begründete Stoffgesetze durch Betrachtung von Deformationen und Bruchmechanismen während der Verformungsvorgänge.

Am Beispiel "Interpretation der Genese von Salzstöcken" wird der Einsatz strukturrheologischer und numerischer Methoden für die Interpretation natürlicher geomechanischer Analoga erläutert.

1. Zielsetzung

Die Prognose über Eintritt und Verlauf zukünftiger geologischer Prozesse ist unverzichtbarer Bestandteil jeder Langzeitsicherheitsanalyse, sei es für die Endlagerung radioaktiver Abfälle oder die Ablagerung chemisch-toxischer Reststoffe in Untertagedeponien.

Solche "geoprospektive" Studien werden vor allem für die Szenarienbewertung und die Beurteilung der Langzeitwirksamkeit geologischer Barrieren gebraucht. Wichtige geologische Phänomene und Prozesse, die dabei in Abhängigkeit von Zeit und Raum zu betrachten sind, sind Tektonik (Erdbeben), Erosion (Subrosion), Vulkanismus und Eiszeiten (Klimaveränderungen). In allen diesen geologischen Prozessen spielen geomechanische Vorgänge eine wesentliche Rolle, entweder dominant oder als Teil von komplexen Interaktionen. Eine Analyse des Standes der Wissenschaft "Geomechanik" zeigt, wie im folgenden dargelegt wird, daß die entsprechenden Methoden und Erkenntnisse in der Geomechanik zur Verfügung stehen, den gestellten Aufgaben gerecht zu werden.

Die Betrachtung und Bewertung natürlicher Analoga - z.B. eine tektonische Struktur - ist Kernstück der prognostischen Geologie. Sie ergänzen als *qualitative* Arbeitsweise quantitative Experimente bzw. sind, in Zahl und Maß ausgewertet, quantitativer Bestandteil von Berechnungs- und Prognosemodellen.

Die qualitative Betrachtungsweise von natürlichen Analoga kann nützlich sein für die Bildung konzeptioneller Modelle geologischer Prozesse, die oft nichtlinear und in gekoppelten Systemen ablaufen. Auch für die öffentliche Diskussion von Endlagerproblematiken erscheint es sehr hilfreich, argumentativ auf zwei Beinen zu stehen, zumal quantitative Berechnungen mit numerischen Modellen für Prozesse über 10 000 Jahre anzweifelbar sind.

Die klassische Arbeitsweise der Geologie deckt sich mit dieser qualitativen Vorgehensweise: Vergleich von Beobachtungen an verschiedenen Lokalitäten und Situationen und Vergleich mit der geologischen Vergangenheit. In diesem Sinne ist für die prognostische Geologie die Vergangenheit der Schlüssel zur Zukunft. Unverzichtbar sind dabei verlässliche chronologische Daten und die Einordnung des Ablaufs von geologischen Prozessen in diesen Zeitablauf; ohne diese Daten wäre ein reiner phänomenologischer Vergleich nicht mehr aussagekräftig.

Für bestimmte Fragestellungen, wozu sicherlich auch die geomechanischen Problemlösungen gehören, ist auch die *quantitative* Betrachtungsweise natürlicher Analoga erfolgversprechend. Voraussetzung dafür ist, daß die Naturbeobachtungen in quantitative konzeptionelle Modelle, in physikalische Modelle und in numerische Modelle eingesetzt werden können.

Diese Modelle können dann im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalyse entweder zur Extrapolation des Gültigkeitsbereichs von Stoffgesetzen über lange Zeiten (in Ergänzung der Durchführungszeiten von Laborversuchen) und geologische Räume (in Ergänzung zur Probengröße bzw. Feldversuchbereiches) dienen oder gar Bestandteil von Validierungsprozessen sein. Werden solche Studien Bestandteil des Planfeststellungsverfahrens, z.B. als begleitende Unterlage, müssen sie sich transparenten -"uncertainty"- Studien und Qualitätssicherungsmaßnahmen unterziehen, wie es z. B. von der BGR im Konzept "Geotechnische Sicherheitskriterien" bzw. "Geoengineering confidence building" vorgeschlagen worden ist [1,2].

2. Physikalische Grundlagen

2.1 Strukturgeologie und Strukturrheologie

2.1.1 Strukturgeologie

Die Strukturgeologie untersucht Art, Geometrie und Kinematik tektonischer Gefüge in Gesteinen und Gebirgskörpern. Der Bildungsmechanismus der tektonischen Strukturen steht dabei oft im Mittelpunkt der Untersuchungen. Mit Hilfe strukturgeologischer Untersuchungen können Verformungsvorgänge, die in der Natur in der Vergangenheit abgelaufen sind und sich heute in Strukturen wie Falten, Störungszonen aber auch Salzstöcke zeigen, quantitativ nachverfolgt werden. Es ist erkannt worden, daß die Verformungen im Gebirge definierten physikalischen und chemischen Gesetzen gehorchen. Besonders hilfreich hat sich die Anwendung mathematischer Methoden auf der Basis der Finiten Elemente und der Stoffgesetzbildung erwiesen. Diese numerischen Methoden erleichtern die Analyse der Geometrie und der Kinetik natürlich verformter Gesteine und Gebirgskörper wesentlich bzw. machen sie erst möglich.

"Struktur" hat als Begriff mit unterschiedlichem Inhalt in vielen Disziplinen Eingang gefunden. Im deutschen Sprachgebrauch versteht man unter "geologischen Strukturen" nach K. METZ [3] "alle beschreibbaren Lagerungsformen der Gesteine als geologische Körper, unabhängig von der Art der sie erzeugenden geologischen Kräfte. Tektonische Strukturen sind dann alle durch tektonische Kraftereinwirkung entstandenen Lagerungsformen oder Verformungsbilder von Gesteinskörpern, gleichgültig, welchen Größenbereichen sie zugehören." Dementsprechend wird auch ein Sattel, ein Salzstock, eine große Verwerfung, ebenso wie ganze Orogene oder ozeanische Schwellen als "Strukturen" bezeichnet.

Für das Korngefüge wurden in der petrographischen Literatur zahlreiche Strukturbegriffe geprägt. Die Strukturen werden unter anderem typisiert nach der äußeren Gestalt, der absoluten Größe, der relativen Größe und der gegenseitigen Bindung der Gefügekörner.

In der Kristallographie bezeichnet man den inneren Aufbau einer Elementarzelle aus Atomen als Struktur. - In der Mathematik besitzt eine Menge eine Struktur, wenn für deren Elemente Verknüpfungen oder Relationen definiert sind. Häufig nennt man auch die Menge selbst eine Struktur.

H. CLOSS [4] definiert "Tektonik" folgendermaßen: "Tektonik ist die Forschung und die Lehre von dem Bau und den Bewegungen der Erdkruste und ihrer fest mit ihr verbundenen Teile. Die Tektonik ist somit die Lehre von den Lagerungsveränderungen bzw. -störungen der Gesteinsverbände in der Lithosphäre und der Entstehung ihrer Baustile. Die Aufgabenbereiche der Tektonik sind: 1. die geometrische Beschreibung des Baustils der deformierten Erdkruste im Großen und der Gesteine im Kleinen, 2. die Ermittlung der Kinematik des Bewegungsablaufes, 3. die Rekonstruktion der Dynamik der Formungsvorgänge, 4. die erdgeschichtliche Betrachtung der Tektonik".

Mit dem Begriff "Geotektonik" ist heute entweder die großregionale Betrachtung der verschiedenen Bautypen der Erdkruste gemeint, oder man versteht darunter - global gesehen - die Strukturen der gesamten Erdkruste und ihre Entstehung, sowie ihre Verknüpfung mit den geophysikalisch-geochemischen Vorgängen und Zuständen der innerirdischen Materie. Das findet seine Anwendung in den verschiedenen geotektonischen Hypothesen. Statt "Tektonik" wird heute auch die Bezeichnung "Strukturgeologie" als entsprechender Sammelbegriff verwendet. Quantitative Methoden der Strukturgeologie stehen zur Verfügung, z.B. in [5].

2.1.2 Strukturrheologie

Die Rheologie der Gesteine weist gegenüber anderen Stoffen, zum Beispiel Pasten, Gelatine, Kunststoffe, einige besondere Gesichtspunkte auf [6]. Der Aufbau der Gesteine und des Gebirges aus meist bereits makroskopisch sichtbaren diskreten Teilen (Minerale) bzw. Trennflächen (Schichtung, Klüftung, Schieferung) zwingt dazu, die rein phänomenologische (kontinuumsmechanische) Betrachtungsweise durch Untersuchungen zum Verformungsmechanismus aufgrund der strukturellen Gegebenheiten zu ergänzen. Ausgangspunkt einer solchen "Strukturrheologie" ist also das Gefüge der Gesteine, dessen Gesetzmäßigkeiten besondere Aufmerksamkeit gewidmet werden muß (Abb. 2).

Dort, wo einzelne Trennflächen unmittelbar und entscheidend die mechanischen Eigenschaften des Stoffes bestimmen, führt die Strukturrheologie zu einer Mechanik diskontinuierlich aufgebauter Körper (Diskontinuumsmechanik). Typisch für solche Körper ist der von Trennflächen aller Art durchzogene natürliche Fels. Im Gegensatz zum Gesteinsstück, das meist massige

"kontinuierliche" Ausbildung besitzt, wird der natürlich geklüftete und durchbrochene Fels als Gebirgskörper bezeichnet. Diese Unterscheidung ist von grundsätzlicher Bedeutung, weil ein zusammenhängender Körper (Gesteinsstück) trotz des gleichen Stoffaufbaus aus diskreten Teilchen andere rheologische Eigenschaften annimmt, wenn Trennflächen bestimmter Anzahl, Richtung und Güte mit berücksichtigt werden. Im allgemeinen sind die geomechanischen Diskontinuitäten derart ausgebildet, daß sie mechanische Kräfte durch elastische oder visko-elastische Deformationen übertragen können (Spannungsfeld, Deformationsfeld). Die Weiterleitung der von den Diskontinuitäten ausgehenden Spannungsänderungen erfolgt über sich kontinuierlich verändernde Größen. Dabei bleibt für eine Gebirgskörpermechanik in diesem Sinne zu untersuchen, welche Spannungs- und Verformungsfelder durch Diskontinuitäten bestimmter Art erzeugt werden und wie sich diese bei einer Folge von Diskontinuitäten (Trennflächensysteme) überlagern. Die modernen numerischen Rechenverfahren leisten hierbei wertvolle Hilfe, so daß man nicht mehr auf geschlossene Lösungen angewiesen ist.

Bei der strukturrheologischen Behandlung von zeitabhängigen Deformationen wird das Gestein bzw. der Gebirgskörper in seine ihn aufbauende Strukturelemente zerlegt betrachtet und die mechanischen Eigenschaften des Gesamtkörpers in Abhängigkeit von den Strukturelementen und deren Anordnung gedeutet. Dadurch ist ein Erfassen des Mechanismus der Verformung möglich. Homogenität und ständige Raumerfüllung sind Voraussetzung.

Als Strukturelemente werden diejenigen Elemente eines Körpers bezeichnet, durch die für eine bestimmte Größenordnung (Bereich) des Körpers dessen Struktur (Gefüge) gekennzeichnet werden kann, also z. B. Gitterebenen im Kristall, Mineralkörper im Gesteinsstück, Trennflächen im Fels, Faltungsachsen im geologischen Körper (Gebirge).

Man kann zeigen, daß die gut erforschten Deformationsvorgänge der Kristalle (vor allem Metalle) ihr strukturelles Analogon im Gestein und Gebirge haben, wobei die angesprochenen Strukturelemente entsprechend der Dimension des Bereichs vergrößert sind (Abb 3).

So können das Wandern von Versetzungen und Strukturkrümmungen im Kristall analog zu den plastischen Verschiebungen von Klufkörpern entlang Trennflächen und Rotation der Klufkörper im Fels gesehen werden. Dies führt zur Feststellung, daß der Bewegungsmechanismus von Strukturelementen bereichsunabhängigen Gesetzen folgt, wenn die jeweilige Wahl der Strukturelemente der Größe des Bereichs und der Ausdehnung der Beanspruchung angepaßt ist. Die Tatsache, daß die phänomenologischen Stoffgesetze von Kristallen - Fels - Gebirge - Erdkruste ähnlich aufgebaut sind, wenn auch mit unterschiedlichen Stoffkonstanten, bestätigt dies (Abb 4).

Der erweiterte Schofield-Scotblair-Körper (mit unterschiedlicher Fließ- und Kriechgrenze) stellt zur Zeit das allgemeinste der vorgeschlagenen idealen (linearen) rheologischen Stoffgesetze dar und erlaubt auch kompliziertes Kriechverhalten der Gesteine darzustellen.

Innerhalb der Rheologie der Gesteine spielen Strukturbetrachtungen also eine besondere Rolle. Sie haben eine doppelte Bedeutung:

a) Die Struktur kennzeichnet wesentlich das Ausgangsmaterial, an dem die rheologischen Eigenschaften unter bestimmten Druck-Deformationsbedingungen ermittelt werden sollen. Es ist dies die Fragestellung, wie sie in der Felsmechanik gegeben ist: Ein Gebirgskörper besitzt ein bestimmtes Kluftkörpersystem aus bekanntem Grundmaterial - wie sind seine mechanischen Eigenschaften einzuschätzen? Man wird hierbei zunächst die strukturellen Formen durch eine rein morphologische Betrachtungsweise zu erfassen und eine angemessene, d.h. der Aufgabenstellung angepaßte Klassifikation (z. B. Gliederung der Trennflächen hinsichtlich Größe, Richtung, Grad der Durchtrennung) zu erreichen suchen, ohne auf die Gesetzmäßigkeiten der Genese solcher strukturellen Formen näher einzugehen.

b) Dieser mehr beschriebenen Erfassung der Struktur als Grundlage für die Deutung des rheologischen Verhaltens der Gesteine mit jeweils vorhandener Struktur steht die genetische Analyse der Gesteinsstrukturen gegenüber, auf die besonders die tektonische Forschung angewiesen ist. Hierbei geht es wesentlich um die Klärung der Frage, welche besonderen elementaren Strukturen als Ergebnis bestimmter Gesteinsdeformationen entstehen, um daraus gewisse Gesetzmäßigkeiten abzuleiten (z. B. unter welchen Bedingungen entstehen Rupturen, wann Flexuren?). Aus den geschilderten Zusammenhängen läßt sich folgender zusammenfassender Satz ableiten, der als "strukturrheologische Arbeitshypothese" wie ein roter Faden die Rheologie der Gesteine durchzieht und als entscheidende Grundlage für die Interpretation und Bewertung von geomechanischen natürlichen Analoga zu gelten hat: *Der Mechanismus der Deformationsvorgänge in Gesteinen, deren Stoffgesetze und rheologische Konstanten lassen sich aus den mechanischen Eigenschaften der Teilkörper und aus deren spezifischer struktureller Anordnung ableiten;*

und umgekehrt:

Aus bestimmten Strukturen, die durch sekundäre mechanische Beanspruchung entstanden sind, läßt sich die Art und Größe dieser Beanspruchung ermitteln, wenn die rheologischen Eigenschaften des Grundkörpers bekannt sind.

Alle Forschungsergebnisse über das rheologische Verhalten von Gesteinen dienen letztlich dazu, die Gültigkeit dieser Arbeitshypothese nachzuweisen bzw. die Grenzen, Einschränkungen und Bedingungen aufzuzeigen, unter denen die Arbeitshypothese als richtig bezeichnet werden kann.

Einige Leitlinien der Strukturgeologie und Strukturrheologie lassen sich wie folgt zusammensetzen [7]. Sie sind Grundlage für die Interpretation von tektonischen Analoga.

1. Aus der Symmetrie des strukturellen Aufbaus der Gesteine läßt sich auf die Symmetrie einer evtl. vorhergegangenen rheologischen Beanspruchung schließen, derart, daß die Symmetrie der Anordnung von Strukturelementen in der Symmetrie der Beanspruchung enthalten sein muß.
2. Der Bewegungsmechanismus von Strukturelementen folgt bereichsunabhängigen Gesetzen, wenn die jeweilige Wahl der Strukturelemente der Größe des Bereichs und der Ausdehnung der Beanspruchung angepaßt ist.
3. Je kleiner die sich relativ gegeneinander bewegenden Teile, verglichen mit dem zu deformierenden Körper, den sie zusammensetzen, sind, desto geringer wird im allgemeinen ihre Verschiebung gegeneinander, der Weg der unmittelbaren Teilbewegung und damit auch, bei gleichbleibender Deformationszeit des Ganzen, die Geschwindigkeit der Teilbewegung. Unmittelbare Teilbewegung sind definitionsgemäß solche Bewegungen von Teilkörpern, die vorwiegend ohne Beteiligung einer Lösungsphase ablaufen.
4. Ist ein Körper in einem bestimmten Bereich strukturell homogen, dann ist er auch im physikalischen Sinne homogen; dagegen braucht ein strukturell inhomogener Körper nicht auch unbedingt in bezug auf die physikalischen Eigenschaften inhomogen zu sein.
5. Ist ein Körper in einem bestimmten Bereich strukturell isotrop, dann ist er auch im physikalischen Sinne isotrop; dagegen braucht ein strukturell anisotroper Körper nicht auch unbedingt in bezug auf alle physikalischen Eigenschaften anisotrop zu sein.
6. Gehören etwa 10 Trennflächen einer Schar zu einem Körper bzw. zum rheologisch beanspruchten Bereich eines Körpers ("homogenisierende Trennflächen"), dann kann dieser Bereich hinsichtlich dieser Trennflächen als homogen angenommen und als Quasi-Kontinuum behandelt werden.

7. Aus einer gegebenen Kombination von Kräften läßt sich der dazugehörige Spannungszustand bestimmen; jedoch von einem gegebenen Spannungszustand kann im allgemeinen Fall nicht auf das ihn erzeugende Kräftespiel geschlossen werden.
8. Die Zerlegung einer finiten Deformation in verschiedene infinitesimale Deformationsschritte, die durch progressive Deformation zum finiten Endzustand führen, ist nicht eindeutig.
9. Das rheologische Verhalten eines Stoffes kann hinsichtlich Volumenveränderung und volumentreuer Verzerrung getrennt untersucht und theoretisch/mathematisch erfaßt werden, im allgemeinen kann dabei, insbesondere bei Überwiegen der Gestaltsänderung, die Volumendeformation als elastisch angesehen werden.
10. Ideale Körper gibt es in der Natur nicht; jeder Stoff besitzt mehr oder weniger alle rheologischen Eigenschaften.

2.2 Tektonische Experimente (nach Langer, 1972 [8])

2.2.1 Historischer Überblick

Betrachtet man die historische Entwicklung tektonischer Experimente vom Blickwinkel der eigentlichen physikalischen Grundlage der jeweiligen Versuche bzw. ihrer besonderen Zielsetzung, so könnte man sechs verschiedene Stadien unterscheiden, wie aus Abb. 5 hervorgeht:

Der erste tektonische Experimentator war wohl Sir JAMES HALL. Er konstruierte Anfang des 19. Jahrhunderts einen einfachen Faltungsapparat. Diese, wie auch die weitergehenden Versuche von G. A. DAUBREE (1880) zur Nachahmung allgemeiner tektonischer Strukturen besaßen keinerlei physikalische Grundlage, sondern waren lediglich Demonstrationsversuche. Später, um 1900 wurde versucht, im kleinen Maßstab morphologische Ähnlichkeiten spezieller Gebirgstypen zu erzeugen, wie z. B. die Appalachen durch B. WILLIS (1893), oder das Juragebirge durch W. PAULCKE (1912). Auch diese Versuche waren noch reine Demonstrationsversuche, keine eigentlichen Modellversuche. W. PAULCKE (1912) gibt auch eine ausgezeichnete Übersicht über die damalige Literatur betreffend tektonische Experimente.

Die Illustration strukturbildender Vorgänge (im Gegensatz zur einfachen Nachahmung von Strukturen) begann mit H. CLOOS um 1930. Diesen Versuch zur Bruch- und Faltenbildung lag bereits ein qualitatives physikalisches Modell zugrunde: Auf der Basis einer Arbeit von J. KOENIGSBERGER und O. v. MORATH (1913) über die theoretischen Grundlagen der

experimentellen Tektonik wurde die Festigkeit des Versuchsmaterials entsprechender der Maßstabverkleinerung des Experiments ausgewählt.

Die besonderen Gesetze der Dimensionsanalyse und Ähnlichkeitsmechanik wurden jedoch erst seit M. K. HUBERT (1937) in tektonischen Experimenten berücksichtigt. So konnte man durch eigentliche Modellversuche zur physikalischen Deutung strukturbildender Prozesse kommen. Hier wären vor allem die bekannten tektonischen Modellversuche von H. RAMBERG, z. B. über die Salzdombildung, zu nennen (Literaturübersicht siehe H. RAMBERG, 1967).

Parallel mit dieser Entwicklung erfolgte auf der Basis der Kontinuumsmechanik, also rein phänomenologisch, die quantitative Berechnung tektonischer Strukturen. Hierzu gehören z. B. die Arbeiten von M. A. BIOT (1961) zur Faltenbildung. Oft werden diese Berechnungen unterstützt durch Modellversuche mit Materialien bestimmter rheologischer Eigenschaften (z. B. M. V. GZOVSKY, 1959)

In den 60er Jahren sind auch Ansätze vorhanden auf der Basis strukturrheologischer Hypothesen den Mechanismus der Deformationen von Gebirgskörpern in Abhängigkeit vom strukturellen Aufbau theoretisch zu analysieren (z. B. M. LANGER, 1969 a, OERTEL, 1965). Bei dieser strukturellen Behandlung der Deformationsvorgänge wird der Körper in seine ihn aufbauenden Strukturelemente zerlegt betrachtet, die rheologischen Eigenschaften in Abhängigkeit von den Eigenschaften der Strukturelemente und deren Anordnung festgestellt und gedeutet.

2.2.2 Modellmechanik und Dimensionsanalyse

Aus der gegebenen historischen Übersicht geht hervor, daß die Experimentatoren in der tektonischen Forschung spätestens seit H. CLOOS und M. K. HUBERT bemüht waren, ihre Versuche auf eine möglichst exakte physikalische Grundlage zu stellen. Der Nutzen, den man sich seit eh und je vom Experiment in der Tektonik erwartet, liegt in der Hoffnung, dem Geheimnis der Bildung bestimmter Strukturen der Erde auf die Spur zu kommen und wenigstens einen Teil der tektonischen Naturphänomene als einen logisch beschreibbaren Prozeß zwischen wohl definierten physikalischen Größen zu verstehen, eine unabdingbare Voraussetzung bei argumentativer Heranziehung von natürlichen Analoga in Langzeitsicherheitsanalysen. In der Natur ist ja im allgemeinen nur ein erstarrtes Bild gegeben, meist auch nur unvollständig abgeschlossen, ohne endgültigen Beweis für die tatsächliche Entwicklung hin zu diesem Bild.

Die besondere Bedeutung eines exakt konstruierten Modells liegt nun darin, daß das Modell im Verlauf der Beanspruchung eine Entwicklung durchmacht, die der Verformung im Original, also in der Natur, entspricht. Die Wissenschaft, die sich mit der Frage beschäftigt, inwieweit

Schlußfolgerungen aus Beobachtungen von Physikalischen Erscheinungen in einem System (hier Natur) auf ein ähnliches System anderen Maßstabes (hier Modell) möglich sind, ist die Modellmechanik bzw. Ähnlichkeitsmechanik (vgl. H. HOSSDORF, 1971; H. L. LANGHAAR, 1962).

Exakte Übertragungsgesetze vom Modell auf Vorgänge in der Natur und umgekehrt lassen sich jedoch nur finden, wenn sämtliche ein komplexes Phänomen beeinflussende Größen erkannt sind und die mechanischen Gesetze, d. h. die das Phänomen beschreibende Differentialgleichungen und Ausgangsbedingungen bekannt sind. Es sind dies

1. Differentialgleichung des Gleichgewichtes bzw. Bewegungsgleichungen.
2. Stoffgesetz (rheologische Gleichung).
3. Spannungsverteilung im Ausgangszustand.
4. Randbedingungen.

Je komplexer die Struktur, die simuliert werden soll, je größer die Anzahl der Größen, die für den Prozeß maßgebend sind, desto unwahrscheinlicher wird die exakte Konstruktion des Modells, desto weniger quantitativ die Versuchsergebnisse (Quasi-Modell).

Eine der wichtigsten dieser physikalischen Größen ist die Zeit. Die Zeit als unabhängige Variable beeinflusst den tektonischen Modellversuch in dreifacher Weise:

- a) als Zeitraffer (Zeitmaßstab des Modells);
- b) durch die Bewegungsgleichung (Trägheitskräfte durch Erdbeschleunigung in der Natur);
- c) im rheologischen Stoffgesetz (Zeitabhängigkeit der Deformationen).

Dies läßt anhand einiger Gleichungen der Dimensionsanalyse besonders verdeutlichen (vgl. Abb. 6). In der Ähnlichkeitsmechanik unterscheidet man drei Stufen der Ähnlichkeit:

1. die geometrische Ähnlichkeit, in der das Verhältnis zweier vergleichbarer Längen im Prototyp, also in der Natur (Index n in der Abb.6) und im Modell (Index m in der Abb.6) festgelegt wird. Dieses Verhältnis Δ wäre für tektonische Experimente z. B. zwischen 10^4 und 10^6 anzusetzen;

2. die kinematische Ähnlichkeit, bei der gefordert wird, daß das Modell zu jeder Zeit des Bewegungsablaufes geometrisch ähnlich bleibt, d. h. korrespondierende Teilchen stets korrespondierenden Punkten zuzuordnen sind. Das bedeutet, daß das Verhältnis korrespondierender Zeiten während des Bewegungsablaufes in der Natur und Modell konstant ist.

Dieses Verhältnis T entspricht damit der gewählten Zeitraffung des Modellversuches;

3. die dynamische Ähnlichkeit, die dann gewährleistet ist, wenn das Verhältnis zwischen den angreifenden Kräften (an korrespondierenden Punkten) in der Natur und Modell konstant ist.

Eine der Hauptaufgabe der experimentellen Tektonik vor der eigentlichen Versuchsdurchführung ist also

- a) die rheologischen Eigenschaften des zu modellierenden Gebirgsbereiches so genau wie möglich zu erfassen und
- b) nach Festlegung des Längenmaßstabes Δ bzw. der Zeitraffung T die passenden rheologischen Modellstoffe auszuwählen.

Es sind folgende Schlußfolgerungen zu ziehen:

1. Ein exaktes tektonisches Modell muß geometrisch, kinematisch und dynamisch ähnlich sein. Es hat den selben physikalischen Bedingungen wie der Prototyp Natur zu unterliegen; dies sind die Bewegungsgleichungen bzw. bei genügend langsam ablaufenden Bewegung die Gleichgewichtsbedingungen, die Bedingung der Kontinuität, das rheologische Stoffgesetz, die Ausgangs- und Randbedingungen. Ist das rheologische Verhalten der Natur und damit des Modellstoffes in erster Näherung nicht als rein elastisch (Hooke-Körper) oder rein plastisch (Bingham-Körper) anzunehmen, müssen diese Gleichungen in dimensionslose Form überführt werden, d. h. es müssen Referenzlängen, Referenzzeiten und Referenzmassen (bzw. Referenzdichten) angenommen werden (HAMILTON, 1962). Dies gilt auch, wenn inlineres Spannungs-Verformungs-Verhalten simuliert werden soll.
2. Die Forschung mit Hilfe tektonischer Experimente geht hin zur Quantifizierung der Versuchsergebnisse mit Hilfe der Modellmechanik und Strukturrheologie. Eine Möglichkeit der rechnerischen Überprüfung einfacher Modellversuche mit rheologischen Medien ergibt sich aus dem sog. Korrespondenzprinzip, mit dessen Hilfe viskoelastische

Grenzprobleme gelöst werden können, wenn eine entsprechende elastizitätstheoretische Lösung bekannt ist.

3. Wegen der bekannten Schwierigkeiten, die tektonischen Ausgangsdaten exakt zu ermitteln, kann man jedoch bis heute nur von Quasi-Modellen sprechen, die für viele Fragen keine eindeutigen Antworten geben können, jedoch hilfreich sind in der Verifizierung bestimmter tektonischer Hypothesen oder theoretisch abgeleiteter Zusammenhänge oder umgekehrt für die Ablehnung bestimmter hypothetisch angenommener Verformungsmechanismen. Es liegt beim Experimentator, vorhandene Unsicherheiten in der Annahme der naturgegebenen Ausgangsbedingungen abzuschätzen und in ihrer Bedeutung für die Aussagekraft der Ergebnisse des Experimentes kritisch zu beurteilen.

2.2.3 Geomechanische numerische Modelle

In unserer Zeit werden tektonische Modellversuche (mit Modellmaterialien) häufig durch geomechanische Modelle (mit numerischen Methoden, z. B. FEM) ersetzt und zur Interpretation tektonischer Strukturen herangezogen. Geomechanische Modelle sind Rüstzeug der modernen Felsmechanik und entsprechen als solche Stand der Wissenschaft und Technik. Im Rahmen der Sicherheitsbeurteilung von Endlagern und UTD sind sie Grundlage des Standsicherheitsnachweises und der Bewertung der Langzeitwirksamkeit geotechnischer Barrieren (z. B. Dämme, Schachtverschlüsse, Versatz) [9]. Diese Methode der Anwendung geomechanischer numerischer Modelle ist auch für die Bewertung tektonischer Strukturen als natürliche Analoga nutzbar, vor allem zur Analyse der Wirksamkeit der geologischen Barriere. Deshalb wird im folgenden die Methode kurz beschrieben.

2.2.3.1 Geotechnische Sicherheitsnachweise

Abgeleitet aus dem allgemeinen Ingenieurbau gliedert sich ein Sicherheitsnachweis in drei Stufen:

- Ermittlung der auf das Bergwerk einwirkenden Belastungen oder Beanspruchungen (Einwirkungsmodell);
- Ermittlung der Bauwerksreaktion auf eine bestimmte Beanspruchung (Widerstandsmodell);
- Nachweis der Sicherheit, d. h. Nachweis, wie weit eine bestimmte Beanspruchung von einem Grenzzustand entfernt ist:

- a) Grenzgleichgewicht im Fall des Tragversagens (Nachweismodell für die Standsicherheit),
- b) Grenzzustand für Funktionsfähigkeit (Nachweismodell für die Gebrauchstauglichkeit).

Der Begriff "Modell" ist gleichbedeutend mit Hypothese oder konsistenter technisch wissenschaftlicher Theorie.

In dem Einwirkungsmodell werden die maßgebenden Einwirkungen festgelegt. Die Annahme für die Größe der Einwirkungen bzw. ihres Streubereichs stützt sich in der Regel empirisch auf Beobachtungen oder Messungen.

Das Widerstandsmodell beschreibt die Tragwerkreaktion und unterliegt der Genauigkeit bzw. Gültigkeit der für das Modell zugrunde gelegten Theorie. Im Ergebnis zeigt die Berechnung die Abhängigkeit der Spannungen und Verformungen von den Einwirkungen.

Für das Sicherheitsmodell ist die quantitative Erfassung des Versagens (Verlust der Trag- und Funktionsfähigkeit) grundlegende Voraussetzung. Das Sicherheitsmodell soll Streuungen der Bemessungsvariablen und Modellunschärfen berücksichtigen.

Rechnerische Nachweise für geotechnische Problemstellungen beziehen sich von vornherein nur auf einen Ausschnitt des dreidimensionalen Gebirgskörper, in den bereits entscheidende vereinfachende Annahmen zur Geometrie sowie zu Rand- und Anfangsbedingungen einfließen. Einwirkungen und Widerstände werden nicht in zwei getrennten und ggf. mit Teilsicherheitsfaktoren belegbaren Modellen beschrieben sondern in einem geomechanischen Modell des Berechnungsausschnittes zusammengefaßt.

Die Simulation des gebirgsmechanischen Verhaltens im Berechnungsausschnitt, z. B. nach der Finite-Element-Methode, ist noch nicht der eigentliche Nachweis der Standsicherheit oder Gebrauchstauglichkeit. Die FEM-Berechnung liefert u. a. Temperaturen, Spannungen und Verformungen sowie Zonen mit Festigkeitsüberschreitungen, sie weist aber nicht a priori den Verlust der Trag- und/oder Funktionsfähigkeit aus. Zur Beurteilung der Berechnungsergebnisse sind Bezugsgrößen notwendig, die sicherheitskritische Zustände ausschließen.

Für die maßgebende Gefährdungsbilder für das Bergwerk bzw. die technischen Barrieren und das Gebirge sind Rechenmodelle aufzustellen und umfangreich Parameterstudien mit der Zielsetzung durchzuführen, den Einfluß der Parameter auf die Gefährdung festzustellen.

Den Einwirkungen setzt das Gebirge einen entsprechenden Widerstand entgegen. Die Abhängigkeit dieser Beanspruchung ist zu ermitteln, z. B. von:

- Materialkennwerten (Verformbarkeit, Festigkeit),
- Geometrie der Hohlräume oder Baukomponenten.

Die Rechenmodelle werden mit dem Ziel ausgewertet, Kriterien bzw. Maßnahmen zur Gefahrenabwehr für die einzelnen Bergwerksteile und die Komponenten des Mehrbarriersystems aufzustellen.

Quantitative Kriterien können dann formuliert werden, wenn

- Verlust der Tragfähigkeit,
- Verlust der Funktionsfähigkeit,

durch entsprechende Bezugsgrößen zu beschreiben. Wenn die Versagenszustände nicht direkt durch Bezugsgrößen angegeben werden können, soll alternativ zumindest versucht werden, Zustände, die mit Sicherheit nicht zum Verlust der Trag- oder Funktionsfähigkeit führen, durch entsprechende Kenngrößen zu quantifizieren. Ist nur eine qualitative Beschreibung des Verlustes der planmäßigen Aufgabe gemäß Nutzungsplan formulierbar, ist im Sicherheitsplan festzulegen, mit welchen geeigneten Maßnahmen den Gefahren begegnet werden soll.

2.2.3.2 Numerische Methoden

In den numerischen Methoden werden auf der Grundlage von Stoffgesetzen, die das Materialverhalten des Gebirges hinreichend genau beschreiben, die Spannungs- und Verformungsverteilung in einem Berechnungsausschnitt der zu behandelnden Problemstellung theoretisch ermitteln. Unter den in Frage kommenden Berechnungsverfahren hat die Finite-Element-Methode für gebirgsmechanische Aufgabenstellungen die weiteste Verbreitung erfahren.

Die Finite-Element-Methode ist ein computerorientiertes, numerisches Näherungsverfahren zur Lösung kontinuumsmechanischer Rand- und Anfangswertaufgaben. Eine ausführliche Darstellung der Grundlage dieser Methode ist in der Literatur zu finden [z.B. 10]. Die Grundgleichungen der Finite-Element-Methode zur Berechnung felsmechanischer Probleme sind für einfache Fälle auch im Tunnelbau-Taschenbuch 1980 hergeleitet.

Für die Lösung thermomechanischer Aufgabenstellungen nach der Finite-Element-Methode ergeben sich wegen des charakteristischen thermorheologischen Materialverhaltens der Gesteine bei tektonischen Verformungen einige besondere Probleme, auf die im folgenden eingegangen werden soll.

Bei den in der Praxis vorkommenden Problemen kann der Fall einer einseitigen thermomechanischen Kopplung angenommen werden. Das bedeutet, daß das Wärmeleitproblem vom herrschenden Spannungs- bzw. Deformationszustand praktisch nicht beeinflußt wird. Eine Temperaturerhöhung wirkt sich allerdings entscheidend auf die Spannungen und Deformationen aus:

- Die Temperaturerhöhung führt über den Wärmeausdehnungskoeffizienten zu einer Volumenänderung des thermisch beanspruchten Bereichs.
- Werden thermisch bedingte Volumenänderungen behindert, stellen sich thermisch induzierte Änderungen des Spannungszustandes ein.
- Das Spannungs/Verformungsverhalten d.h. insbesondere Kriechen, ist hochgradig nichtlinear von der Temperatur abhängig.

Thermomechanische Probleme sind maßgeblich durch die nichtlineare Abhängigkeit der rheologischen Eigenschaften des Gesteins sowohl von der Temperatur als insbesondere auch von der Spannung beeinflußt, so daß ein Finite-Element-Berechnungsverfahren die Berücksichtigung folgender Fakten erfordert:

- Zeitabhängigkeit
 - äußere Beanspruchung (Lasten, Temperatur)
 - Spannungs- bzw. Deformationsfeld
- Nichtlinearität
 - physikalische Nichtlinearität (Materialgesetz für Salzgestein; Kriechen, Bruch)
 - geometrische Nichtlinearität (große Verschiebungen bzw. Verzerrungen)

Die Zeitabhängigkeit muß im Rechenverfahren inkrementell, die Nichtlinearität inkrementell und iterativ behandelt werden. Dabei ergibt sich, daß in das Berechnungsverfahren folgende Anforderungen zu stellen sind:

- Die inkrementelle Lösung darf nicht von der exakten Lösung abdriften.
- Das numerische Verfahren muß stabil sein, um Oszillationen oder ein Divergieren der Lösung zu vermeiden.
- Das Verfahren muß rechentechnisch effektiv sein.

Durch die Entwicklung leistungsfähiger Großrechenanlagen ist die Anwendung numerischer Rechenverfahren begünstigt worden. Inzwischen steht eine Vielzahl ausgereifter Rechenprogramme zur Verfügung. Aufgrund der vielfältigen Diskretisierungsmöglichkeiten in der Finite-Element-Methode erlaubt dieses Rechenverfahren gegenüber den geschlossenen lösbaren Problemstellungen wirklichkeitsnähere Untersuchungen. Auf eine zu starke Idealisierung kann verzichtet werden. Dadurch lassen sich mit der Finite-Element-Methode insbesondere die geologischen Verhältnisse, beliebige Geometrien der Strukturen, das mechanische Verhalten unterschiedlicher Schichten um die wechselnden Beanspruchungsbedingungen in die theoretische Untersuchung mit einbeziehen.

Gebirgsmechanische Problemstellungen sind maßgeblich durch die nichtlineare Abhängigkeit der rheologischen Eigenschaften des Gesteins von der Temperatur und vom Deviatorspannungszustand beeinflusst. In dem Finite-Element-Berechnungsverfahren kommt daher der Berücksichtigung der physikalischen und geometrischen Nichtlinearität sowie der Zeitabhängigkeit der äußeren Beanspruchung besondere Bedeutung zu. Da die numerischen Verfahren bezüglich ihrer Matrizenoperation Linearität voraussetzen, muß angestrebte Lösung durch inkrementelle und iterative Rechenoperationen schrittweise approximiert werden. Hierfür bieten sich mehrere Lösungsalgorithmen an, auf die hier nicht im einzelnen eingegangen werden kann.

Bezüglich der zeitlichen Intergration der Materialgesetze wird zwischen expliziten und impliziten Berechnungsverfahren unterschieden. Während explizite Verfahren nur bei relativ kleinen Zeitinkrementen ausreichend genaue Ergebnisse liefern, ermöglichen implizite Verfahren auch die Berücksichtigung größerer Zeitschritte, wobei eine ausreichend numerische Stabilität gewährleistet ist. Die einzelnen Algorithmen unterscheiden sich bezüglich des Rechenaufwandes erheblich. Um bei vergleichsweise geringem Rechenaufwand auch genauere Lösungen zu erzielen, müssen die Verfahren optimiert werden.

Die richtige Beschreibung der Eigenschaften des Wirtgesteins und des umgebenden Gebirges in einem solchen Berechnungsmodell ist die eigentliche Basis realistischer Berechnungen. Das natürliche System muß dabei hinsichtlich seiner Eigenschaften (z. B. Durchlässigkeit, thermomechanisches Verhalten, tektonische Strukturen, in-situ-Spannungen) idealisiert werden. Es ist

offensichtlich, daß Modelle solcher Art nur ein gewisses Maß an Genauigkeit erreichen können, da die im allgemeinen komplexen geologischen Strukturen nur bis zu einem gewissen Grad quantifiziert werden können.

Geomechanische Modelle umfassen

- den geologischen Aufbau des Gebirgskörpers;
- Materialgesetze zur Beschreibung des zeit-, temperatur- und spannungsabhängigen Formänderungs- und Festigkeitsverhaltens des Gebirges und
- den Primärzustand des Gebirges (Spannungen, Temperatur);
- Geometrie (Erfassung des Tragverhaltens des Gebirges durch räumliche, ebene oder rotationssymmetrische Ersatzsysteme) und
- Beanspruchungszustände und deren zeitlichen Ablauf:
 - a) thermische Einwirkungen (z. B. Einlagerung wärmeentwickelnder Abfälle, Bewetterung) und
 - b) mechanische Einwirkungen (z. B. Solung, Verfüllung, statische Lasten u. ä.)

Insbesondere der Primärzustand des Gebirges, also der Spannungszustand in situ beeinflusst entscheidend die Rechenergebnisse und damit die ingenieurmäßige Sicherheitsaussage.

3. Interpretation tektonischer Strukturen im Rahmen der Langzeitsicherheitsanalysen

3.1 Bewertung der Wirksamkeit geologischer Barrieren

Für die Endlagerung radioaktiver Abfälle fordern die Richtlinien der Reaktorsicherheitskommission (RSK) und für die Endlagerung von chemischen Abfällen die neue TA-Abfall des BMU eine standortbezogene Sicherheitsbewertung. Das bedeutet, daß die Eignung des Gebirges für die Anlage einer Untertagedeponie durch entsprechende Nachweise belegt werden muß. Eine solche Sicherheitsbeurteilung hat das Gesamtsystem "Abfall-Untertagebauwerk-

Gebirgskörper" zu berücksichtigen. Grundlage der standortspezifischen Sicherheitsbeurteilung sind folgende Einzelnachweise:

- Geotechnischer Standsicherheitsnachweis
- Sicherheitsnachweis für die Betriebsphase
- Langzeitsicherheitsnachweis

Zu letzterem gehört die quantitative Bewertung der Barrierewirksamkeit von Wirtsgesteinen. Diese geologische Barriere muß bei einer Untertagedeponie wesentlich zur Langzeitisolierung der Abfälle von der Biosphäre beitragen [11].

Aus der Formulierung des Schutzzieles der Endlagerung folgt, daß eine Störung der Langzeitstabilität des Ökosystems in der Nachbetriebsphase ausgeschlossen werden muß, d.h. der Transport gefährlicher Mengen von Schadstoffen in die Biosphäre durch zirkulierendes Grundwasser muß verhindert werden. Um Gesundheit und Sicherheit der Menschen über diesen langen Zeitraum zu gewährleisten, werden mehrere unabhängige technische und natürliche Barrieren im System Abfall/Endlagerbergwerk/geologisches Medium zur Behinderung der Freisetzung von Schadstoffen herangezogen. Es sind dies die Abfallverpackung, die geotechnischen Endlagerbarrieren wie Bohrlochverfüllungen, Versatz von Strecken und Kammern, Dämme, Schachtverfüllung und -verschluß und die geologische Barriere, also das Wirtsgestein im Nahfeld sowie das weitere geologische Umfeld als geohydraulische Barriere.

Eine Möglichkeit des methodischen Vorgehens ist in Abb.7 dargestellt. Es beinhaltet die getrennte Analyse der einzelnen Barrierensysteme (technische, gebirgsmechanische, geologische), die Analyse der physikalischen und geochemischen im Nah- und Fernfeld des Endlagers sowie eine zusammenfassende Szenarien- bzw. Störfallbewertung. Für die Beurteilung technischer Barrieren steht die probabilistische Risikoanalyse zur Verfügung. Die Bewertung gebirgsmechanischer Barrieren erfolgt durch den geotechnischen Standsicherheitsnachweis. Das geologische System wird durch die Prognose zukünftiger geochemischer, hydrogeologischer und tektonischer Vorgänge analysiert ("prognostische Geologie"). Bei der Analyse der geochemischen und physikalischen Prozesse im Nahfeld müssen Umlösevorgänge und Migration sowie die damit verbundenen Permeabilitätsänderungen untersucht werden. Als Antriebsmechanismus für Schadstoffbewegungen bei bestimmten Störfallszenarien im Salzgebirge kommt die Konvergenz von Grubenbauen durch Kriechen des Salzgestein in Betracht. Relevante Prozesse im Fernfeld sind Salzstockhebung und Subrosion des Salzstockes durch Grundwasserbewegung, sowie Brucherscheinungen durch thermisch induzierte Spannungskonzentrationen. In der zu-

sammenfassenden Störfallanalyse wird das Zusammenwirken aller Barrieren bei bestimmten theoretisch denkbaren Ereignissen (Störfälle), die eine Gefahr der Freisetzung von Schadstoffen in die Biosphäre (Freisetzungspfade) bewirken könnten, untersucht (Abb. 8).

Die Störfallszenarien sind im einzelnen zu begründen und in ihren Randbedingungen festzulegen. Aus geologischer und geotechnischer Sicht ergeben sich diese Randbedingungen aus der untertägigen Erkundung. Die Erkundung hat auch die Daten zur Modellbildung für die standortspezifischen Sicherheitsanalysen zu erbringen. Die ermittelten Daten müssen eine ausreichend genaue Abschätzung der konservativen Annahmen, die dabei gemacht werden, erlauben. Es sind also insbesondere geologische Strukturdaten für die Störfallidentifikation, geochemische Daten zur Analyse der geochemischen Langzeitvorgänge im Wirtsgestein und quantitative thermomechanische Stoffdaten für die Modellberechnungen zur Schadstoffmobilisierung während der untertägigen Erkundung zu ermitteln (Abb. 9).

3.2 Bildung und Validierung geomechanischer Stoffgesetze

Für das Kriechen, d.h. das Langzeit-Verformungsverhalten von Gesteinen steht das sekundäre Kriechen im Vordergrund. Wesentliche Verformungsmechanismen sind Versetzungsgleiten, Polygonisierung, Diffusion und Korngrenzengleitung [12].

Für Untertagedeponien lassen sich Nachweise für die Langzeitsicherheit in Form geschlossener Lösungen im allgemeinen nicht angeben. Zur Analyse des Spannungs- und Verformungsverhaltens sind in der Regel numerische Modelle, z.B. auf der Grundlage der Finite-Element-Methode, erforderlich. Die an den Berechnungsmodellen durchgeführten (in der Regel numerischen) Untersuchungen müssen diejenigen Werte oder Zugstandsgrößen liefern, die aufgrund des gewählten Sicherheitskonzepts die Kriterien sind, mit denen Sicherheitsaussagen gemacht werden, z.B. Verformungen, Spannungen, Verformungsraten.

Die Aussagekraft der rechnerischen Nachweise wird durch die in die Berechnungsmodelle eingehenden Ansätze entscheidend beeinflusst (Abb. 10). Daher ist für die Beurteilung von Sicherheitsfragen notwendig, diese Einflüsse aufzudecken. Dazu sind u.a. im Rahmen des Validierungsprozesses [13]

- die Quellen von Ungenauigkeiten darzulegen: z.B. geometrisch unzureichende Abbildungen der Strukturen, mechanisch nicht voll zutreffende Stoffgesetze, mathematische Probleme der numerischen Berechnung (Konvergenzverhalten iterativer Lösungen, Zeitschrittverfahren),

- die Berechnungsmodelle zu überprüfen, z.B. durch Vergleich mit dokumentierten Erfahrungen, Plausibilitätskontrollen an überschaubaren Beispielen, Gegenrechnung mit anderen Programmen,
- die getroffenen Ansätze daraufhin zu überprüfen, inwieweit sie für den Sicherheitsnachweis in der Summe auf der sicheren Seite liegen,
- die Sensitivität der Ergebnisse gegen Änderung der Eingangsparameter durch Berechnungen mit Parametervarianten aufzuzeigen.

Da die geomechanischen Verhältnisse nicht in ihrer gesamten Komplexität erfaßt werden können, wird jedes Berechnungsmodell bestimmte Vereinfachungen enthalten. Dazu gehören:

- Reduktion des räumlichen Tragverhaltens auf ebene oder rotationssymmetrische Modelle,
- Beschränkung der geologischen Struktur auf Gebirgsausschnitte (Homogenbereiche) mit entsprechenden Randbedingungen sowie
- Idealisierung des thermomechanischen Verhaltens von Salzgestein auf die wesentlichen Materialeigenschaften (z.B. stationäres Kriechen für Langzeitprozesse).

Ziel der eigentlichen Validierung eines Berechnungsmodells ist der Nachweis, daß:

- die zeitliche und räumliche Idealisierung,
- die Rand- und Anfangsbedingungen sowie
- alle übrigen Berechnungsannahmen

so gewählt sind, daß das Berechnungsmodell trotz der notwendigen Vereinfachung zutreffende Ergebnisse liefert, und zwar in deren räumlichen Verteilung und deren zeitlicher Entwicklung.

Eine vollständige Validierung im Sinne eines wissenschaftlichen Nachweises ist vom Grundsatz nicht möglich, da auch vollständige und exakte Beschreibung der realen Verhältnisse im Regelfall nicht vorliegen werden. Abweichungen der Ergebnisse von Modellrechnungen zu im allgemeinen nur lokal vorhandenen Meßergebnissen eines realen Standortes werden sich zwangsläufig einstellen. Die Modellvereinfachungen müssen deswegen so vorgenommen werden, daß,

bei Reduzierung auf die wesentlichen Einflüsse, das gesamte Trag- und Verformungsverhalten noch ausreichend genau bzw. definiert konservativ beschrieben wird.

Die Modellvalidierung kann nicht allgemein erfolgen, sondern muß problembezogen vorgenommen werden. Die Gültigkeit des Stoffmodells für Salzgestein ist anhand geeigneter Laborversuche und charakteristischer Feldversuche aufgezeigt worden. In den Laborversuchen sind die Rand- und Anfangsbedingungen bekannt, so daß im wesentlichen die Vereinfachungen im Stoffgesetz überprüft werden können. Voraussetzung dafür sind nicht-triviale Laborversuche, d.h. solche Versuche, die nicht zur Bestimmung von Stoffgesetzkonstanten benutzt werden, sondern Versuche, die ein umfassenderes Spannungs-/Verformungsverhalten zeigen.

Die Validierung anhand von Feldversuchen soll die Gültigkeit einer Exploration auf größere Gebirgsbereiche nachweisen. Bei diesen Versuchen ergibt sich jedoch eine grundsätzliche Schwierigkeit. Da die vollständige Erfassung von Rand- und Anfangsbedingungen nicht möglich ist, sind Feldversuche nur zu einer Teilvalidierung heranziehbar. Um diese inhärenten Schwierigkeiten zu vermeiden, ist es zweckmäßig, in Feldversuche zu analysieren, bei denen eine Überbestimmtheit der Ergebnisse durch mehrere parallele Versuche oder Versuchsabläufe gegeben ist und natürliche Deformationsvorgänge (z.B. beim Salzstockaufstieg) als Analoga vergleichsweise heranzuziehen (vgl. nachfolgende Ausführungen).

3.3 Genese von Salzstöcken

Ein Beispiel soll die beschriebene Vorgehensweise der Deutung geologischer Strukturen mit Hilfe strukturreologischer und numerischer Methoden näher erläutern. Es dient gleichzeitig der Darlegung, wie Ergebnisse solcher Untersuchungen als Interpretation geomechanischer natürlicher Analoga bei Langzeitsicherheitsanalysen verwendet werden.

Den folgenden Ausführungen liegt eine ausführliche Arbeit von U. Hunsche [14] zugrunde.

Der Aufstieg der Salzstöcke im Laufe der Jahrtausende und die damit verbundene Bildung von Salzstockfamilien ist ein eindruckvolles salzmechanisches Experiment in der Natur. Der Aufstieg der Salzstöcke erfolgt im Idealfall aufgrund der inversen Dichteschichtung des dichteren Deckgebirges über dem weniger dichten Salz. Eine Anfangsstörung führt zu einem beschleunigten Wachstum dieser Störung, in deren Verlauf zunächst ein Salzkissen, später ein Salzstock entsteht. Der Salzstockaufstieg wiederum dient als initiale Störung für den zeitlich versetzten Aufstieg weiterer Nachbarsalzstöcke, die dann eine Salzstockfamilie bilden (Abb. 11).

Der Gesamtprozess und somit die Aufstiegsgeschwindigkeiten und der Abstand der Salzstöcke werden in erster Linie von den Schichtdicken des Deckgebirges und des Salzes sowie deren integralen Langzeit-Viskositäten gesteuert. Ein gutes Beispiel für einen derartigen Vorgang bilden die Salzmauern in Norddeutschland (Abb. 12).

Deren zeitlicher und räumlicher Entwicklung wurde bei Hunsche (1978) detailliert analysiert. Durch Vergleich mit entsprechenden Modellrechnungen konnten hieraus die integralen Langzeitviskositäten ermittelt werden. Für das Deckgebirge resultiert ein Wert von $\mu = 3 \cdot 10^{20}$ Poise, für das Salz ein Wert von $\mu = 3 \cdot 10^{18}$ poise. Diese können nicht durch Laborexperimente bestimmt werden, sind aber für Modellberechnungen für Langzeitsicherheitsaussagen erforderlich.

Die für den Vergleich herangezogenen Modellberechnungen wurden im übrigen zuvor mit Hilfe von Modellexperimenten mit inversen Dichteschichtungen im Labor validiert.

4. Ausblick

Geowissenschaftliche und geotechnische Methoden, den Vertrauensbereich bei Sicherheitsaussagen aufgrund numerischer Berechnungen abzugrenzen und nachprüfbar zu machen, stehen zur Verfügung. Charakteristische Züge dieser Methode sind: naturwissenschaftlich untermauerte modellhafte Erfassung geomechanischer, hydrogeologischer und geochemischer Prozesse und deren Kopplung, Validierung dieser Modelle und Überprüfung der Aussagen durch gezielte Kontrollmessungen am Standort (vgl. Abb. 10).

Die Bewertung von Unsicherheiten ist wesentlicher Teil des Vertrauensgebäudes. Die Unsicherheit von Parametern (Geometrie, Materialverhalten, Anfangsbedingungen, Belastungszustände) kann durch probabilistische Methoden und durch Parameterstudien eingegrenzt werden. Die Modellvalidierung muß zeigen, daß das Modell mechanische Reaktionen des Systems bzw. die Ausbreitungsvorgänge toxischer Partikel genügend genau und konservativ wiedergibt und vorhersagen kann. Modellvalidierung in diesem Sinne umfaßt

- eingehende Analyse der Diskrepanzen zwischen gemessenen und berechneten Ergebnissen aus Modellversuchen,
- Sensitivitätsuntersuchungen und Parallelberechnungen mit vorgegebenen Parametern,
- problemorientierte und standortspezifische Bestätigung.

Die folgende Zusammenfassung kann über das gegenwärtige Verständnis einer sicheren Untertagedeponie gegeben werden:

- Die Sicherheit muß durch quantitative Berechnungen mit Hilfe validierter Modelle nachgewiesen werden
- der Grad der Validierung ist nicht absolut vorgegeben sondern muß problemspezifisch bestimmt werden
- Modellvalidierung ist ein kontinuierlicher Prozess
- vom geotechnischen Standpunkt kann ein geomechanisches Modell als validiert gelten, wenn die Einschränkungen, die sich aus der Vereinfachung geologisch bedingter Strukturen oder Prozesse, bzw. die Vernachlässigung bestimmter Einflußparameter im Modell ergeben, als konservativ auf der sicheren Seite liegend genau genug eingeschätzt werden können.

Zur Analyse des Spannungs- und Verformungsverhaltens sind numerische Modelle, z. B. auf der Grundlage der Finite-Element-Methode, erforderlich. Um sicherzustellen, daß derartige Berechnungen zutreffende Prognosen liefern, ist es notwendig, daß die Berechnungsmodelle folgende Entwicklungsphasen durchlaufen haben:

- Nachweis der Richtigkeit der Rechenprogramme (verification),
- Nachweis der Gültigkeit der Berechnungsmodelle (validation),
- Nachweis der Übertragbarkeit validierter Berechnungsmodelle von einem Standort zum anderen (on site confirmation).

Schrifttum

1. **LANGER, M.** (1993): A comparison of protection aims and safety criteria for radioactive and toxic chemical wastes. Geofine 93, S. 431-436, Balkema, Rotterdam 1993
2. **DONG, Z. u.a.** (1993): Probabilistic structural analyses of thermomechanical response in rock salt. Proc. 3 Conf. Mech. Behaviour of Salt, Paris 1993 (preprint)
3. **METZ, K.** (1967): Lehrbuch der Tektonischen Geologie. 2. Aufl., Stuttgart (Verl. Enke), 1967
4. **CLOOS, H.** (1936): Einführung in die Geologie. Ein Lehrbuch der inneren Dynamik. Neudruck Berlin, Verl. Bornträger, 1963
5. **RAMSEY, J.G. UND HUBER, M.J.** (1983): The Techniques of Modern Structural Analyses. London, Verl. Academ. Press, Vol. 1 (1983), Vol. 2 (1987)
6. **LANGER, M.** (1979): Rheologisches Verhalten von Gesteinen und Fels. Generalbericht. - Proc. 4. Int. Congress on Rock Mechanics, Bd. III: 63-96, 30 Abb., 7 Tab., Montreux
7. **LANGER, M.** (1979): Rheologische Probleme im Felsbau. Z. dt. geol. Ges., 119, S. 71-95, Hannover 1969
8. **LANGER, M.** (1972): Rheologische und modellmechanische Grundlagen für tektonische Experimente. Geol. Rundsch. 61, H. 3, S. 803-823, Stuttgart 1972
9. **LANGER, M.** (1992): Geotechnische Barrieren und Sicherheitsnachweise bei Untertagedeponien. GSF Bericht 6: 31 - 36, Neuherberg 1992
10. **ZIENKIEWICZ, O.L.** (1977): The Finite Element Method, 3. Aufl., London, Verl. Mc Graw - Hill 1977
11. **LANGER, M.** (1990): Goewissenschaftliche und geotechnische Aspekte der Langzeitsicherheit von Endlagern. Atomwirtschaft A 3, S. 142-147, Düsseldorf 1990
12. **HAMPEL, A. u.a.** (1993): Wo steht die Salzmechanik in der BGR? In: Salzmechanik XIII, BGR, Hannover 1993
13. **WALLNER, M.** (1993): Die Entwicklung konzeptioneller Grundlagen für geotechnische Sicherheitsnachweise.
14. **HUNSCHKE, U.** (1978): Modellrechnungen zur Entstehung von Salzstockfamilien, Geolo. Jb. E 12, Hannover 1978

Rolle der NATÜRLICHEN ANALOGA in der LANGZEITSICHERHEITSANALYSE

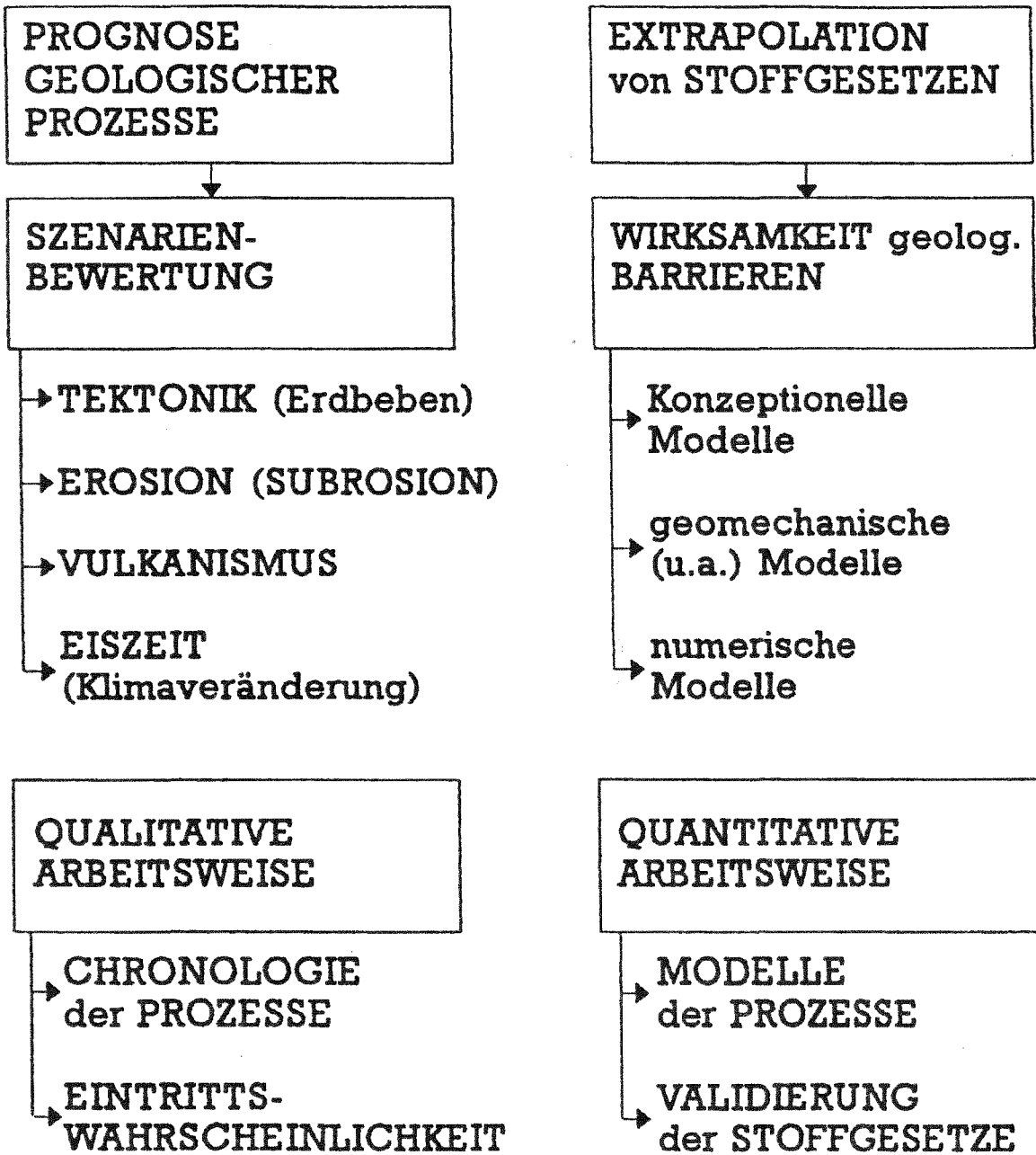


Abb. 1: Rolle der natürlichen Analoga in der Langzeitsicherheitsanalyse

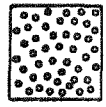
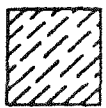

Trennflächentyp	Mechanisches Modell	Kennzeichen des Gefüges	Strukturelemente (Beispiel)	Theorie
Homogenisierende Trennflächen	Quasikontinuum			
		homogen/isotrop	 diskrete Teilchen	Mechanik rolliger Böden
		homogen/anisotrop	 Schieferungsfugen	Struktur-rheologie
Einzeltrennflächen	Diskontinuum			
		inhomogen	 Großklüfte	Gebirgskörper-mechanik

Abb. 2: Trennflächen und ihre mechanische Wirksamkeit

Bereich	Größe	Strukturelemente	Beispiele	Mechanismus der Verformung	
				elastisch	plastisch
Kristall	μ	Atom/Molekül (Gitterebene)	Spaltfläche, Gleitfläche	Verzerrung des Kristallgitters (Wärmeschwingung)	translative Gleitung auf Gleitflächen, Wanderung von Versetzungen
Handstück, Bohrkern	cm	Mineralkorn (Kornaggregate)	Absonderungs- fläche	Verzerrung des Mineralkornes (Hertz'sches Modell)	translatives Gleiten an Absonderungsflächen oder Kristallgleitflächen, Rotation der Mineralkörner
Gebirgs- körper	m	Trennflächen (Kluftkörper)	Schieferungs-, Schichtfläche, Kluft	Verzerrung des Kluftkörpers	Verschiebung und Umorientierung v. Kluftkörpern an Trennflächen, Vergrößern von Klüften
Geolog. Körper	km	Stratigraph. u. tektonische Einheiten	Faltungs-, Scherungs- achse Störungszone	—	Faltenbildung, Überschiebungen, etc.

Abb. 3: Mechanismus rheologischer Verformungen im Fels

Material/Bereich	Rheolog. Modell	Stoffgleichung	Bedingung	Mittlere Konstanten	Autor
Idealer allgem. rheolog. Gebirgskörper	Erweiterter BURGERS-K. m. Fließgrenze	$e(t) = e_{el} + e_{nel} + e_{pl}$ $= \frac{\sigma}{G} + \sigma \sum_{i=1}^n \frac{1}{G_i} \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{T_{ret,i}}\right) \right] + \frac{\sigma - \tau_{Fl}}{\eta^*} t$			LANGER 1969 a
Gestein (Handstück)	Empirischer visko-elast. Körper	$e(t) = e_{el} + e_{nel}$ $= \frac{\sigma}{G} + \frac{\sigma}{G} \cdot q \cdot \log(1 + \alpha t)$	$T < 0,2 T_m$	$\alpha = 6 \cdot 10^3 \text{ sec}^{-1}$	LOMNITZ 1956
		$e(t) = e_{nel} = \beta \cdot t^{1/3} \quad \beta = \sigma^2$	$T \approx 0,5 T_m$	$\beta = 3 \cdot 10^5 \text{ cgs - Einh.}$	MURELL 1967
	MAXWELL-K.	$e(t) = e_{visk} = \frac{\sigma}{\eta} t$	$T \geq 0,5 T_m$	$\eta = f(T)$	
Fels (Baubereich)	Erweiterter NAKAMURA-K.	$e(t) = e_{el} + e_{nel} \left \frac{t_i}{T_{ret,i}} - \text{const} = h \right $ $= \frac{\sigma}{G} + \sigma \sum_{i=1}^n \frac{1}{G_i} \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{T_{ret,i}}\right) \right]$	$e_{pl} \ll e_{el} + e_{nel}$	$G = 10^5 \text{ kp/cm}^2$ $G_i = 2 \cdot 10^4 \text{ kp/cm}^2$ $h = 10$	LANGER 1969 b
	BINGHAM-K.	$e(t) = e_{pl} = \frac{\sigma - \tau_{Fl}}{\eta^*} t$	$e_{el} + e_{nel} \ll e_{pl}$	$\eta^* = 5 \cdot 10^{12} \text{ kp sec/cm}^2$ $\tau_{Fl} = 100 \text{ kp/cm}^2$	LANGER 1972
Gebirge (tekton. Großbereich)	BURGERS-K.	$e(t) = e_{el} + e_{nel} + e_{pl}$ $= \frac{\sigma}{G} + \frac{\sigma}{G_K} \left[1 - \exp\left(-\frac{G_K}{\eta_K} t\right) \right] + \frac{\sigma}{\eta^*} t$		$G = 5 \cdot 10^5 \text{ kp/cm}^2$ $G_K = 5 \cdot 10^5 \text{ kp/cm}^2$ $T_{ret} = 1 \text{ h}$ $\eta^* = 5 \cdot 10^{14} \text{ kp sec/cm}^2$	GZOVSKY 1959
Erdkruste / Erdmantel	KELVIN-K. m. Bruchfestigkeit	$e(t) = e_{nel} = \frac{\sigma}{G_K} \left[1 - \exp\left(-\frac{t}{T_{ret}}\right) \right]$	$4 \text{ h} < t < 15 \cdot 10^3 \text{ Jhr.}$	$G_K = 2 \cdot 10^6 \text{ kp/cm}^2$ $T_{ret} = 2 \text{ Tage}$	SCHEIDEGGER 1962
	BINGHAM-K.	$e(t) = e_{pl} = \frac{\sigma - \tau_{Fl}}{\eta^*} t$	$t > 15 \cdot 10^3 \text{ Jhr.}$	$\eta^* = 10^{16} \text{ kp sec/cm}^2$ $\tau_{Fl} = 4 \cdot 10^3 \text{ kp/cm}^2$	

Abb. 4: Rheologische Stoffgleichungen für Gebirgskörper verschiedener Bereichsproben

Stad.	Zeit	Vertreter	Zielsetzung	Physikal. Grundlage
I	19. Jhrh.	HALL DAUBREE	Nachahmung <u>allgemeiner</u> tektonischer Strukturen (z.B. Falten)	Demonstrations - versuch
II	um 1900	WILLIS PAULCKE	Nachahmung <u>spezieller</u> Gebirgstypen im kleinen Maßstab (z.B. Juratypus)	Demonstrations - versuch: morpholog. Ähnlichkeit
III	um 1930	CLOOS NETTLETON	Illustration strukturbildender <u>Vorgänge</u> (z. B. Bruchbildung)	qualitatives physikal. Modell
IV	seit 1940	HUBBERT RAMBERG	Physikal. Deutung strukturbildender Prozesse durch Modellversuche (z. B. Salzdome)	Dimensionsanalyse, Ähnlichkeits- mechanik
V	seit 1950	BIOT GZOVSKI	<u>Phänomenologische</u> quantitat. Berechnung tektonischer Strukturen (z. B. Faltenregel)	Kontinuums- mechanik, Modellmechanik
VI	seit 1960	OERTEL LANGER	<u>Strukturheologische</u> theoret. Analyse des Mechanismus v. Deformationen im Gebirgskörper (z.B. Orientierung v. Formelementen)	Rheologie

Abb. 5: Entwicklungsgeschichte tektonischer Experimente

Ähnlichkeit	Definitionsgleichung	Größe	Modellgesetz	Größe	Modellgesetz	Größe	Modellgesetz ~
geometrisch (l = Länge)	$\frac{l_n}{l_m} = \Lambda$	Fläche A	$\frac{A_n}{A_m} = \Lambda^2$	Volumen V	$\frac{V_n}{V_m} = \Lambda^3$	Dehnung ϵ	$\frac{\epsilon_n}{\epsilon_m} = \Lambda^0 = 1$
kinematisch (t = Zeit)	$\frac{t_n}{t_m} = T$	Geschwindigkeit v	$\frac{v_n}{v_m} = \Lambda \cdot T^{-1}$	Beschleunigung a	$\frac{a_n}{a_m} = \Lambda \cdot T^{-2}$ - A	Frequenz f	$\frac{f_n}{f_m} = T^{-1}$
dynamisch (m = Masse) oder (F = Kraft)	$\frac{m_n}{m_m} = M$ $\frac{F_n}{F_m} = \Phi$	Kraft F Masse m	$\frac{F_n}{F_m} = M \cdot \Lambda \cdot T^{-2}$ - M · A · Φ $\frac{m_n}{m_m} = \Phi \cdot \Lambda^3 \cdot T^3$ - $\Phi \cdot A^3 \cdot M$	Dichte ρ Wichte γ	$\frac{\rho_n}{\rho_m} = M \cdot \Lambda^{-3}$ $\frac{\gamma_n}{\gamma_m} = \Phi \cdot \Lambda^{-3}$	Spannung σ	$\frac{\sigma_n}{\sigma_m} = M \cdot \Lambda^{-1} \cdot T^{-2}$ - M · A · $\Lambda^2 \cdot \Sigma$ $\frac{\sigma_n}{\sigma_m} = \Phi \cdot \Lambda^2 = \Sigma$
rheologische Stoff- kennwerte	$\Lambda, T, M = \text{const.}$ $a_n = g \neq a_m$ bzw. $F_{\text{Trägheit}}$ oder $F_{\text{Schwerkraft}}$ vernachlässigb.	Elastizität E Schubmod.G Kompress.- modul K Kohäsion c Festigkeit τ (Fließgrenze)	$\frac{E_n}{E_m} = \frac{G_n}{G_m} = \frac{K_n}{K_m}$ - $\frac{c_n}{c_m} = \frac{\tau_n}{\tau_m}$ $\frac{\sigma_n}{\sigma_m} = M \cdot \Lambda^{-1} \cdot T^{-2}$ - Σ	Viskosität η Plastizität η^*	$\frac{\eta_n}{\eta_m} = \frac{\eta_n^*}{\eta_m^*}$ - M · $\Lambda^{-1} \cdot T^{-1}$ - $\Sigma \cdot T$	Poissonzahl ν Harmonisierungs- Faktor h	$\frac{\nu_n}{\nu_m} = \frac{h_n}{h_m} = 1$

Abb. 6: Dimensionsanalyse

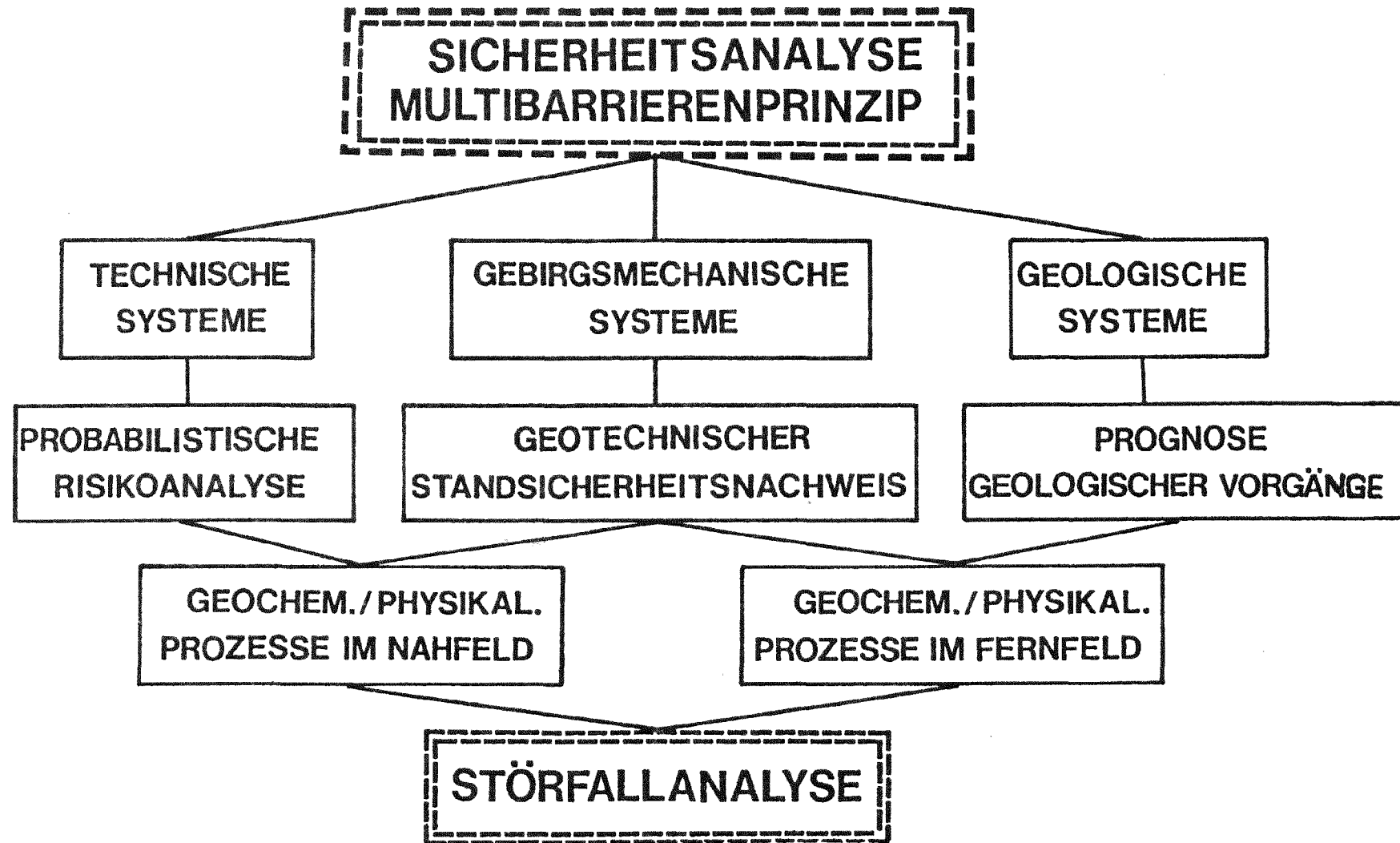


Abb. 7: Prinzip der Sicherheitsbeurteilung (Multibarrierenprinzip)

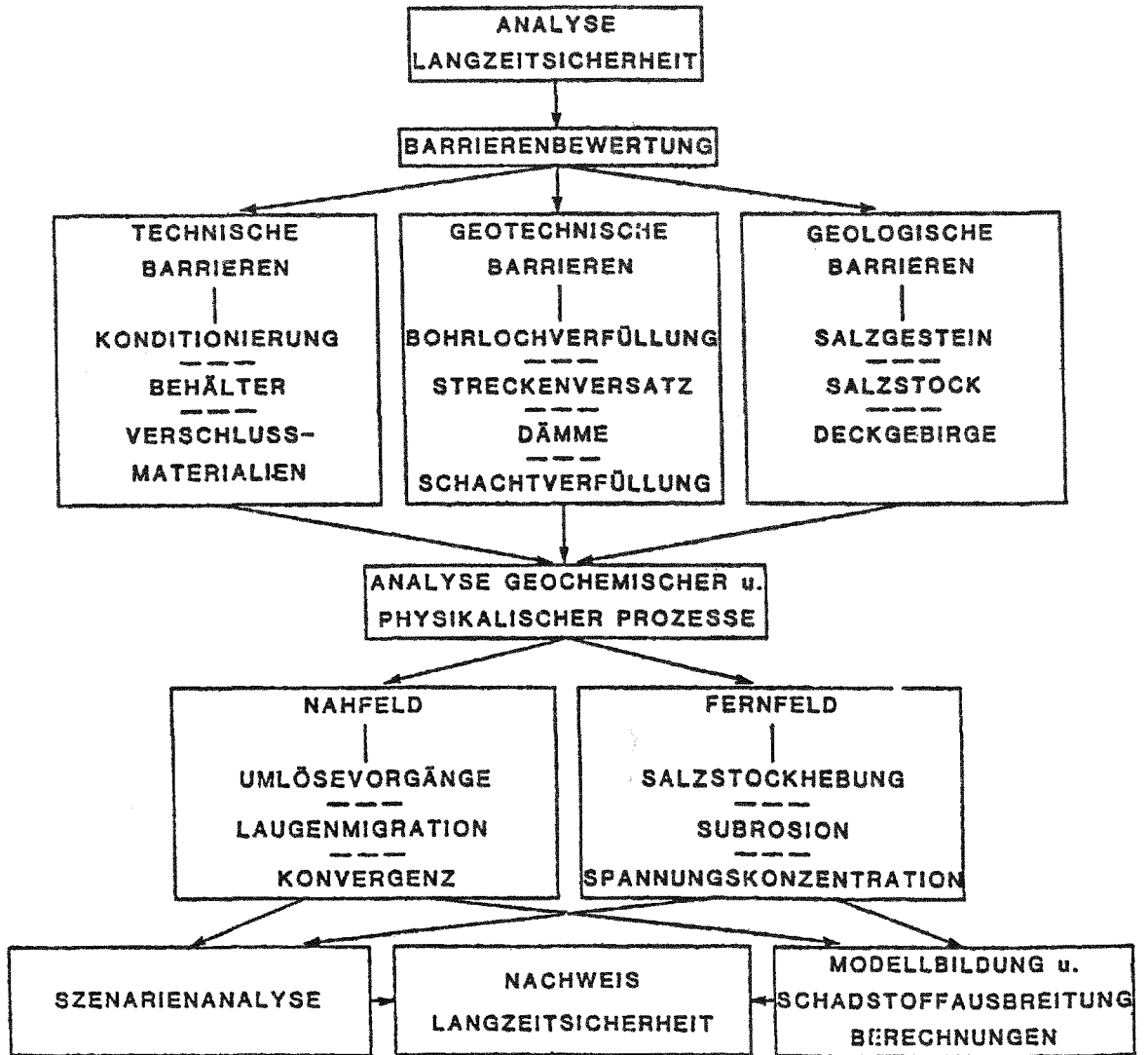


Abb. 8: Langzeitsicherheitsanalyse

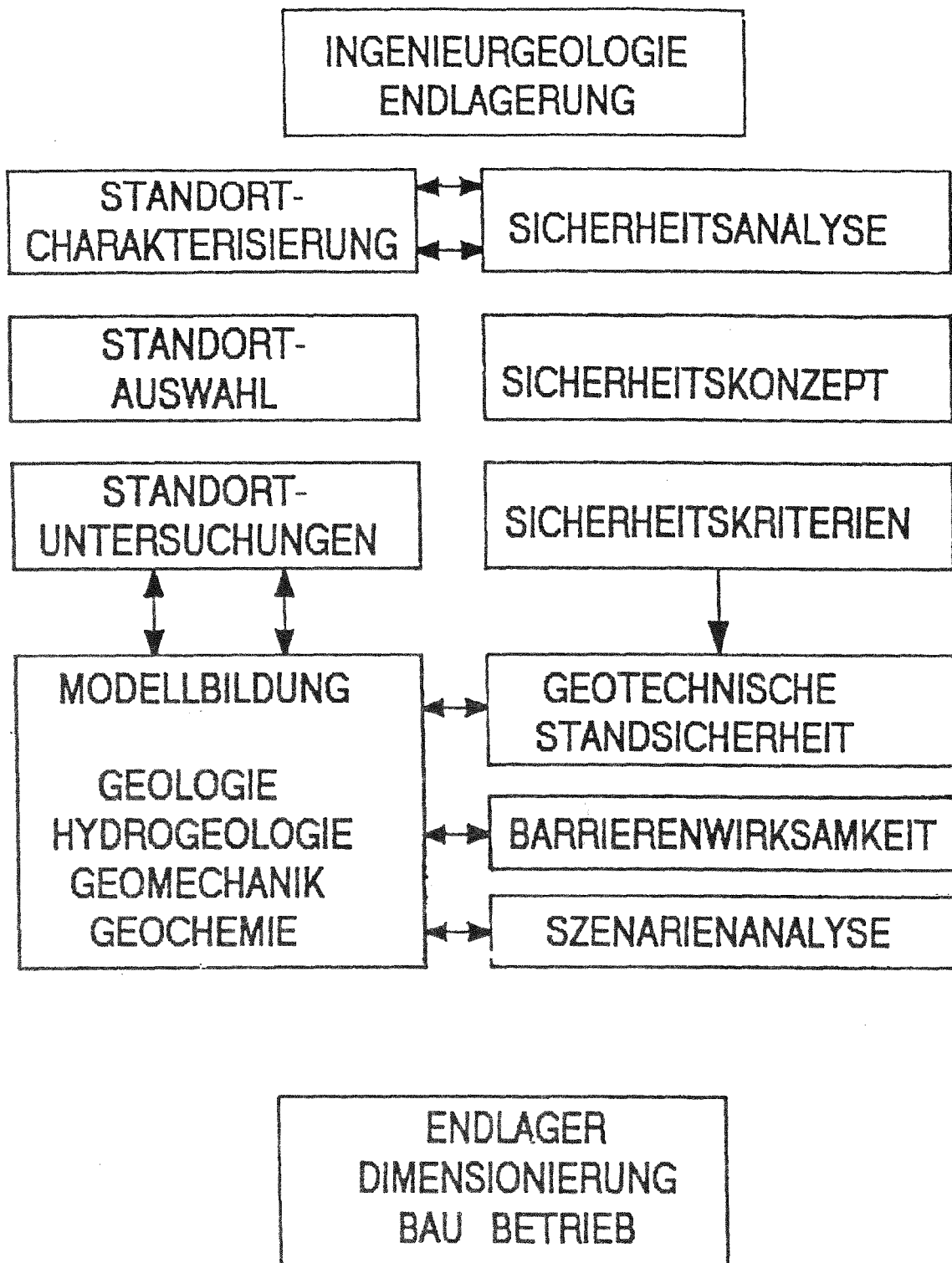


Abb. 9: Ingenieurgeologische Erkundung und Modellbildung

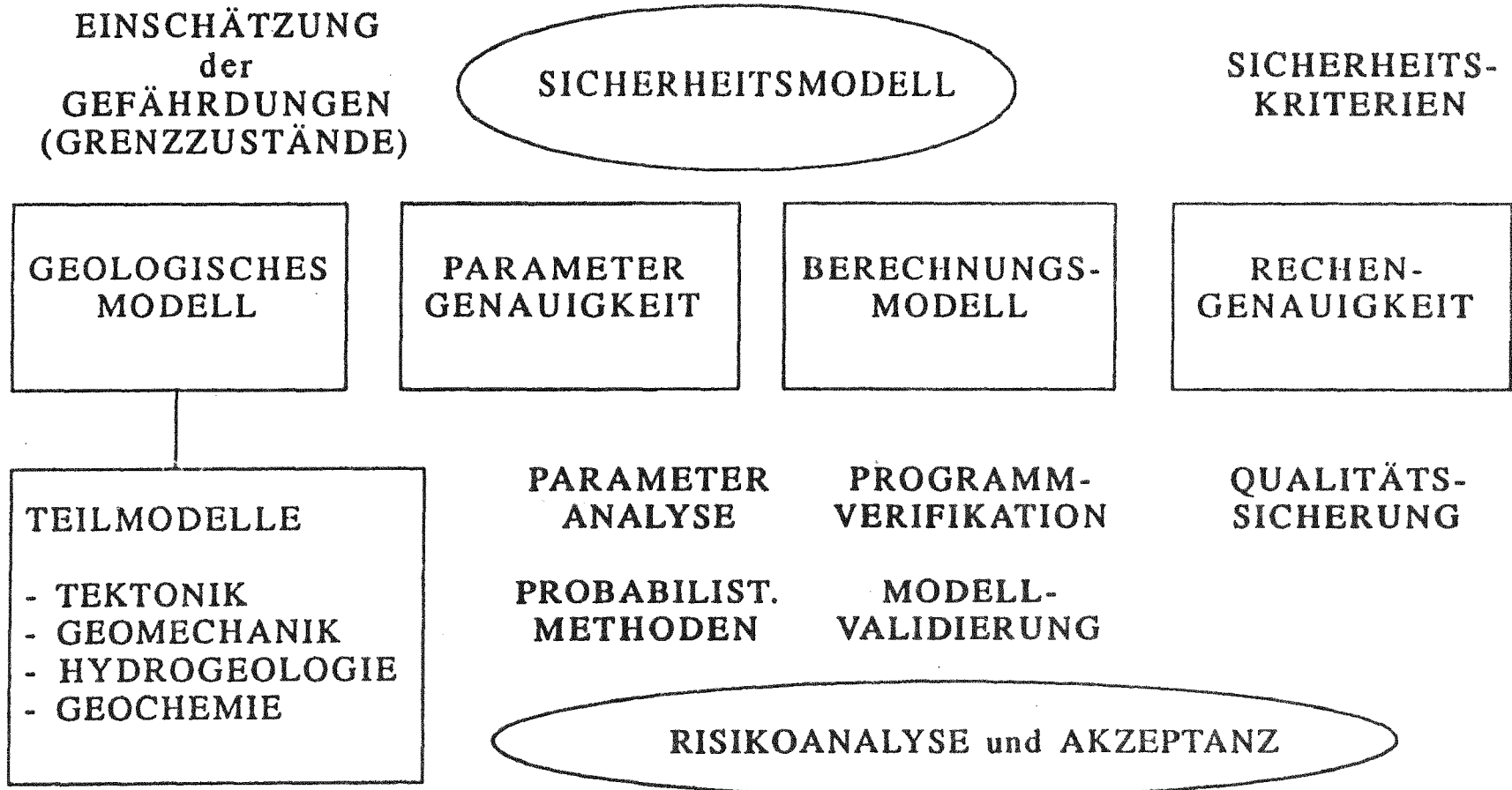


Abb. 10: Aussagegenauigkeit, Vertrauensbereich

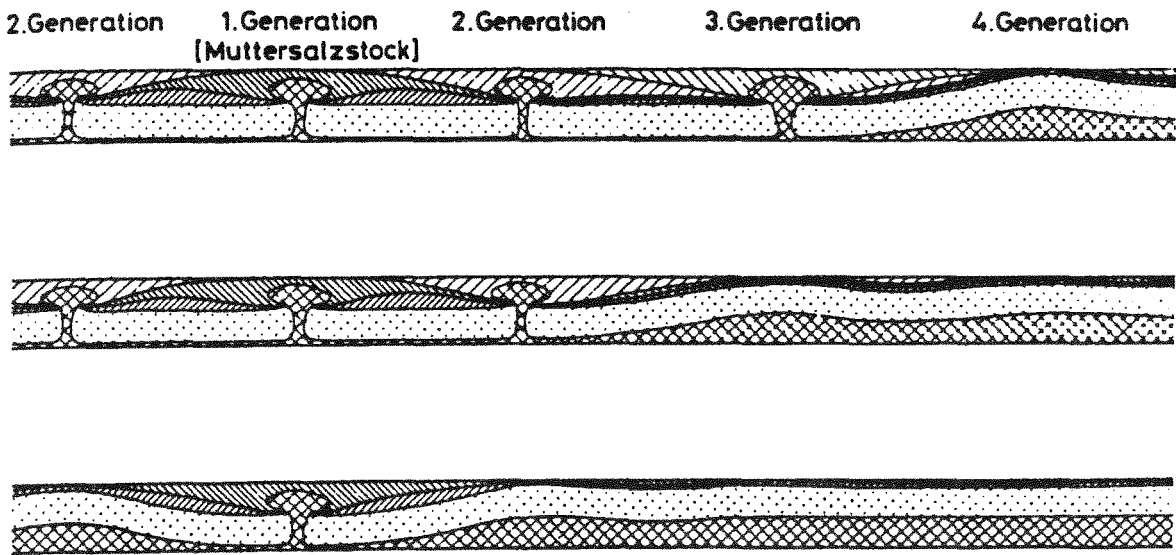


Abb. 11: Schema für die Bildung einer Salzstockfamilie

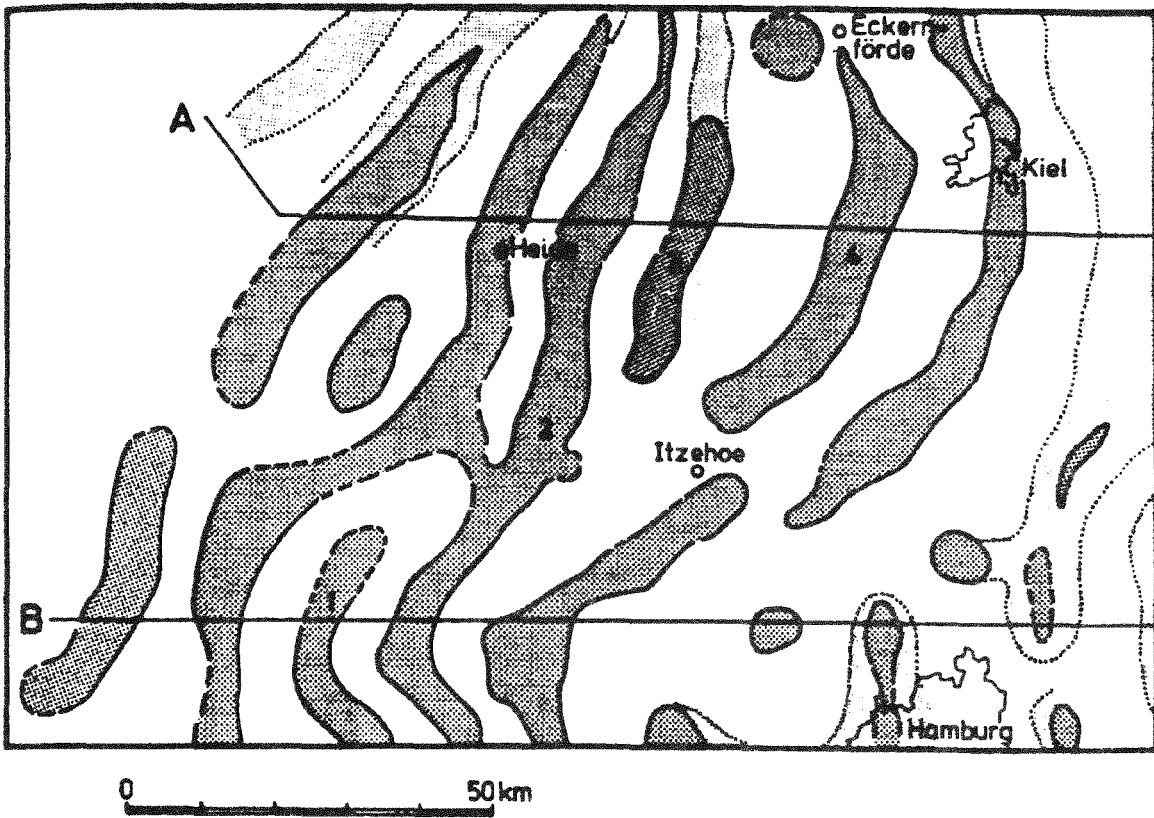


Abb. 12: Die schleswig-holsteinische Salzmauerfamilie des Permsalinars

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Die Entwicklungsgeschichte des Standortes
Gorleben als natürliches Analogon für das
Langzeitverhalten eines Barrierensystems**

**W. Jaritz
BGR**

DIE ENTWICKLUNGSGESCHICHTE DES STANDORTES GORLEBEN
ALS NATÜRLICHES ANALOGON FÜR DAS LANGZEITVERHALTEN
EINES BARRIERENSYSTEMS

Dr. W. Jaritz

Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe,
Stilleweg 2, 30655 Hannover

Kurzfassung

Folgende am Standort Gorleben abgelaufene Prozesse und ihre Wechselwirkungen werden in die erdgeschichtliche Zeitskala eingeordnet und in ihrem Ablauf dargestellt:

Tektonik und Epirogenese, Eustasie, chemisch-mineralogische Umwandlungen in der Salzlagerstätte, halokinetische Entwicklungsgeschichte, Subrosion am Salzstockdach, Entwicklungsgeschichte des Hutgesteins, Sedimentation und Erosion über dem Salzstock und die glazigenen Einwirkungen auf den Standort. Daraus läßt sich jeweils eine Prognose für die nähere geologische Zukunft ableiten.

1. Geologische Prozesse und ihre Analogien zur Endlagerung radioaktiver Abfälle

Die für die Endlagerung vorgesehenen radioaktiver Abfälle enthalten u.a. Isotope mit Halbwertszeiten, die über die in Experimenten verfügbaren Zeiten und z.T. auch über historische Maßstäbe weit hinausgehen. Sie erreichen geologische Zeiträume. Daher hat man sich, um solche Zeiträume beherrschen zu können, weltweit für die Inanspruchnahme geologischer Barrieren entschieden. Folglich müssen geologische Prozesse und die Betrachtung ihrer zeitlichen Abläufe wesentliche Bestandteile von Sicherheitsnachweisen für Endlager von langlebigen Abfällen sein.

Die Geowissenschaften haben im Laufe ihrer Entwicklung gelernt, wie und mit welchen Geschwindigkeiten Prozesse in der Erdkruste, wie Stofftransporte, Hebungen und Senkungen, Gebirgsbildungen u.a. ablaufen. Das umfangreiche allgemeine geowissenschaftliche Wissen ist Hintergrund für die Lösung der spezielleren Fragen nach Ereignisabläufen an konkreten Orten. Die Anwendung allgemeiner Kenntnisse auf den Einzelfall wird jedoch dadurch sehr erschwert, daß die Geschwindigkeiten der Prozesse in sehr weiten Grenzen schwanken.

Die Endlagerungsforschung sah sich daher vor die Frage gestellt, welche in der Natur anzutreffenden Befunde als Analoga ("natural analogues") für das Verständnis der Prozesse herangezogen werden können, die im Zusammenhang mit Endlagern für radioaktive Abfälle langfristig ablaufen können. Die Herausforderung wurde weltweit angenommen, internationale Arbeitsgruppen zu diesem Themenkreis wurden eingesetzt und Symposien wurden abgehalten (ORLOWSKI & CÔME, 1991).

Idealziel der Forschungen zum Thema der Analoga aus der Natur ist es, das Verhalten von natürlichen Endlagern in der Erdkruste und insbesondere die von Ihnen ausgegangene Ausbreitung von Radionukliden zu untersuchen. Bisher wurde ein einziges solches Objekt in der Natur gefunden. Es ist das sogenannte Oklo-Phänomen, ein ca. 2 Milliarden alter Naturreaktor, auf den man in Gabun in einem Uranbergwerk stieß. In seiner Umgebung konnten umfangreiche Untersuchungen zu Rückhaltung bzw. Ausbreitung von Radionukliden durchgeführt werden (IAEA, 1975).

Weitere umfangreiche Untersuchungen zu Mobilisierung, Transport und Rückhaltung von Actiniden und Lanthaniden wurden an verschiedenen Uranlagerstätten durchgeführt, wie

- Alligator Rivers (N-Australien; u.a. DUERDEN, 1992)
- Poços de Caldas (Brasilien; u.a. SMELLIE et al. 1987)
- Tono (Japan; OCHIAI et al. 1989) und
- Cigar Lake (Kanada; u.a. CRAMER et al. 1987).

All diese Studienobjekte befinden sich in kristallinen oder klastischen Gesteinen. Da es keine Uranlagerstätten gibt, die an Salzlagerstätten gebunden sind, kommen geochemische Konstellationen, die mit einem Endlager für hochradioaktive Abfälle vergleichbar sind, in der Natur nicht vor.

Aber auch aus der Untersuchung von Vorgängen, die an Salzlagerstätten abgelaufen sind, lassen sich Kenntnisse gewinnen, die für die Bewertung von Endlagern herangezogen werden können. Dabei ist zu unterscheiden zwischen Beobachtungen, die von anderen Untersuchungsobjekten auf einen zu bewertenden Standort übertragen werden und Untersuchungsergebnissen vom Standort selbst.

Zur ersten Gruppe gehört z.B. die Feststellung, daß Salzlagerstätten trotz ihrer guten Löslichkeit nach 10^8 Jahren noch existieren, aber auch, daß gewöhnlich im Laufe der Zeit große Salzmengen weggelöst wurden. Speziellere Analoga zur Endlagerung wärmeentwickelnder Abfälle zeigen Salzlagerstätten dort, wo Vulkanite intrudiert sind. Über die hierbei ablaufenden geochemischen Prozesse und deren Reichweite liegen detaillierte Untersuchungen aus dem Werra-Kalirevier (KNIPPING, 1987) sowie aus Neumexiko (u.a. BROOKINS, 1981) vor.

Verf. beschränkt sich in dieser Arbeit auf die zweite Gruppe, legt die am Standort Gorleben seit der Entstehung der Salzlagerstätten abgelaufenen Vorgänge zusammenfassend dar und diskutiert ihre zeitliche Zuordnung. Daraus sind Aussagen für die zukünftige geologische Entwicklung des Standortes und damit Beiträge für den Sicherheitsnachweis für das geplante Endlager abzuleiten: Von den am Standort in der näheren geologischen Zukunft zu erwartenden natürlichen Vorgängen ist zu erwarten, daß sie die Sicherheit nicht beeinträchtigen. Das gilt sowohl für die Zeitspanne des notwendigen rechnerischen Nachweises als auch für die sich anschließende Zeit bis etwa eine Million Jahre.

Die in Kapitel 2 bis 8 beschriebenen Prozesse sind teilweise stark miteinander gekoppelt. Daher bereitet die Gliederung des Stoffes Schwierigkeiten, und gewisse Wiederholungen sind nicht zu vermeiden.

Eine Gesamtübersicht über die Vorgänge, die zeitlich eingeordnet werden können, gibt Taf. 1. Hier werden auch die für die nähere geologische Zukunft aufgrund von Extrapolationen aus der Vergangenheit zu erwartenden Ereignisse angegeben.

2. Tektonik und Epirogenese in der Region, Eustasie

Die Region um den Salzstock Gorleben ist von Bruchtektonik nur wenig betroffen worden. Die mit maximal 500 m Versatz bedeutendste Sockelstörung verläuft im W des Gebietes unter dem Salzstock Gülden-Braudel. Hier hob sich während des Unteren und Mittleren Buntsandsteins die W-Scholle und senkte sich anschließend in der Zeitspanne Oberer Buntsandstein bis Keuper (ZIRNGAST, 1991). Später fanden keine nachweisbaren Aktivitäten mehr statt. Sockelstörungen unter den Salzstöcken Dannenberg und Groß-Heide-Siemen sind weniger bedeutend, und die Zeit ihrer Aktivität kann nicht bestimmt werden. Unter dem Salzstock Gorleben konnte keine Sockelstörung festgestellt werden, obwohl zur Klärung dieser Frage drei Salzstock- bzw. Salzstockflankenunterschießungen durchgeführt wurden (ZIRNGAST, 1991). Es ist jedoch eine schwache Aufwölbung des Sockels erkennbar.

Epirogenetisch ist das Gebiet vom Zechstein bis heute durch das Vorherrschen von Senkung gekennzeichnet. Die durchschnittliche Senkungsrate war im Zechstein und Buntsandstein mit ca. 0,1 mm/a am größten. (Bei Annahme einer geringeren Dauer des Zechsteins als in Taf. 1 dargestellt, ergäbe sich für den Zechstein ein größerer Wert). In der Folgezeit betrug die durchschnittliche Senkungsrate maximal einige hundertstel Millimeter pro Jahr. Zudem wurde die Senkung durch mehr oder weniger große Hebungsperioden unterbrochen. Deren größte umfaßt mit der Zeit vom höheren Mittleren Jura bis zur tieferen Unterkreide ca. 50 Millionen Jahre, wobei die durchschnittliche Hebungsrate zwischen ca. 0,005 und 0,01 mm/a lag. Eine weitere bedeutende Hebungsperiode gab es mit einer Dauer von ungefähr 15 Millionen Jahren an der Kreide-Tertiär-Grenze. Innerhalb und gegen Ende des Tertiärs gab es nochmals Hebungen, doch handelte es sich dabei um geringere Beträge. Über das gesamte Tertiär gemittelt ergibt sich eine Senkungsrate von etwas weniger als 0,01 mm/a.

Während des Quartärs wurde weltweit das Niveau des Meeresspiegels überwiegend durch Speichern und Abtauen von Eis beeinflusst (Eustasie). Der Meeresspiegel lag zeitweilig mehr als 100 m tiefer und zeitweilig auch einige Meter höher als heute. Die Erosionskraft der Elbe wurde zwar durch die Meeresspiegelabsenkungen erhöht, dieser Effekt hielt sich jedoch infolge der damit verbundenen Verlängerung des Unterlaufs in engen Grenzen, so daß sich daraus für die Region keine wesentlich verstärkte Erosion ergab.

Bei Übertragung der epirogenen Vorgänge des Tertiärs auf die geologische Zukunft ist mit weiteren geringen Senkungen und/oder Hebungen des Standortes zu rechnen. Rein rechnerisch betrachtet betrügen diese in 10 000 Jahren lediglich bis zu 100 mm, und über einen Zeitraum von 1 Millionen Jahre wäre auch nur mit einer Niveauänderung bis zu ca. 10 m zu rechnen. Das ist für ein Endlager am Standort Gorleben ohne Bedeutung. Auch künftige durch Kaltzeiten bedingte Meeresspiegelabsenkungen können keinen Einfluß auf ein Endlager haben.

3. Salzlagerstätte

Von den Vorgängen, die seit dem Zechstein in der Salzlagerstätte abgelaufen sind, können einige recht gut beschrieben werden. Aber nur wenige sind in befriedigender Weise der geologischen Zeitskala zuzuordnen.

Allgemein nimmt man an, daß Kompaktion und Diagenese der Salzlagerstätten unmittelbar nach deren Ablagerung ablaufen und daß auch die Dehydratation der Gipslager rasch erfolgt. Es ist jedoch nicht beweisbar, daß diese Vorgänge für die Staßfurt- und Leineformation am Ende des Zechsteins abgeschlossen waren. Unklar ist ferner, wie lange und in welchem Umfang Lösungen aus dem Liegenden der Salzformationen in bzw. durch die salinaren Sedimente migrieren konnten und was die Auswirkungen dieser Lösungsmigration waren.

Mit einer Verfaltung der Salzlagerstätte muß in Analogie zu anderen Salzlagerstätten bereits vom Beginn der Salzkissenbildung, also etwa vom Muschelkalk an, gerechnet werden. Sie schritt mit der Weiterentwicklung des Salzkissens in Keuper und Jura voran und erreichte ihren Höhepunkt im Diapirstadium im Oberen Jura und der Kreide.

Aus dem Innenbau des Salzstocks geht hervor, daß der Salzaufstieg besonders groß im Hauptsattel des Salzstocks war, so daß vor allem das Staßfurtsteinsalz unter Überfahung der jüngeren Formationen nach oben stieg. Da besonders die hohen Teile des Diapirs der Subrosion zum Opfer fallen (s. Kap. 5), veränderte sich infolge des besonders starken Salzaufstiegs im Hauptsattel die Zusammensetzung der Lagerstätte. Der Mengenanteil des Staßfurtsteinsalzes ist heute wesentlich geringer als im salinaren Sedimentstapel des Zechsteins vor Beginn der Strukturbildung.

An datierbaren Stoffumwandlungen konnte lediglich lokal in den Kiese-ritischen Übergangsschichten der Staßfurtformation die Entstehung von etwas Langbeinit festgestellt und altersmäßig bestimmt werden. Der Vorgang fand nach Bestimmungen in der BGR mit der K-Ar-Methode vor etwa 200 Millionen Jahren, nach neueren Untersuchungen in Gießen mit der Rb-Sr-Methode zwischen 140 und 135 Millionen Jahren statt (BGR 1991; PHILIPPE, frdl. mdl. Mitteilung). Datierungsversuche an anderen Salzmineralien führten nicht zu interpretierbaren Ergebnissen.

Auch an mineralgefüllten Klüften im Hangendsalz der Staßfurtformation läßt sich erkennen, daß Stoffumwandlungen stattgefunden haben. Die Bromgehalte der Kluftminerale und die des Halits der umgebenden Salzgesteine zeigen, daß die Kluftminerale nicht aus NaCl-Lösungen allein, sondern nur aus Mischungen dieser mit $MgCl_2$ -reichen Lösungen handeln kann. Diese können aus der inkongruenten Carnalliterersetzung oder aus der Auflösung von Bischofit stammen, oder es handelt sich um Restlösungen aus dem Zechstein (FISCHBECK & BORNEMANN 1993). In guter Übereinstimmung hiermit stehen die Ergebnisse von chemischen Untersuchungen, die an Flüssigkeitseinschlüssen von Klufthaliten durchgeführt wurden. Auch sie zeigen, daß an ihrer Entstehung wahrscheinlich keine

salzstockfremden Lösungen beteiligt waren. Die Kluftminerale und ihre Einschlüsse sind vielmehr aus Lösungen entstanden, die aus der Reaktion von stark NaCl-haltigen Lösungen und $MgCl_2$ -reichen Lösungen hervorgegangen sind. Letztere leiten sich entweder von aufgelöstem Bischofit oder hochkonzentriertem diagenetisch veränderten Meerwasser ab (HERRMANN & v. BORSTEL 1991, v. BORSTEL 1993). Da die Klüfte den Faltenbau durchschlagen und die Kluftkristalle kaum noch Deformationen erlitten haben, muß die Kristallisation dieser Kluftalite jünger sein als das Diapirstadium des Salzstocks, also vermutlich im wesentlichen tertiäres Alter haben. Es ist nicht bekannt, wieviel Zeit die Vorgänge in Anspruch nahmen.

Die jüngste datierbare Veränderung in der Salzlagerstätte erfolgte von der Oberfläche des Salzstocks her. Das am Salzspiegel ausstreichende Kaliflöz Staßfurt wurde unter dem Salzspiegel durch Lösungsmetamorphose in die sogenannten Hutsalze umgewandelt. Dieser Prozeß und seine Tiefenwirkung konnten an verschiedenen Stellen beobachtet und näher untersucht werden. An einer Stelle, an der die elstereiszeitliche Rinne das ausbeißende Kaliflöz Staßfurt überquert, war die Möglichkeit für eine besonders tiefgreifende Einwirkung von Wässern gegeben. Hier beginnt der unveränderte Carnallit erst zwischen 140 und 170 m unter dem Salzspiegel (BORNEMANN & FISCHBECK 1986, BORNEMANN 1991). In der Umgebung von Schacht 1 reicht die Umwandlung ca. 70 m tief (Richtbohrung 377) und umfaßt vom Hangenden zum Liegenden die typischen Umwandlungsbereiche Halitfazies, Sylvinfazies und Kainitfazies; zur detaillierten Beschreibung siehe BORNEMANN & FISCHBECK 1992 und 1993. Im gleichen Bereich ließ sich die Lösungsmetamorphose auch an Lösungseinschlüssen in neu gebildeten Halitkristallen untersuchen (v. BORSTEL 1993). Sie fand in der Bildungszeit der glazigenen Rinne (siehe Kap. 8) und in der sich anschließenden Zeit statt, ohne daß das Ende des Vorgangs zeitlich genau faßbar wäre.

Soweit zu den Umwandlungen, die die Salzlagerstätte betroffen haben. Wesentlich im Sinne eines natürlichen Analogons sind auch die Aussagen über die Nichtumwandlung so empfindlicher Gesteine wie der carnallitischen Kalisalze. Ihre durch Bohrungen nachgewiesene große Ver-

breitung im Inneren des Salzstocks ist der Nachweis dafür, daß in den jeweiligen Bereichen niemals an $MgCl_2$ untersättigte Lösungen zirkuliert sind (vgl. HERRMANN & KNIPPING, 1989).

Die genannten chemisch-mineralogischen Prozesse, die im Innern der Salzlagerstätte abgelaufen sind, können vom Prinzip her auch in Zukunft ablaufen. Es muß aber darauf hingewiesen werden, daß gefüllte Klüfte im Salzgebirge relativ selten anzutreffen sind. Außerdem ist zu bedenken, daß die Dynamik von Deformationsvorgängen im Laufe der Zeit immer mehr abgenommen hat, vgl. Kap. 4, so daß auch von daher wenig Stoffumwandlungen zu erwarten sind.

4. Halokinese

Die Entwicklungsgeschichte des Salzstocks wurde bereits von JARITZ, 1980, qualitativ beschrieben und später im Rahmen der Standorterkundung von ZIRNGAST, 1991, quantitativ analysiert. Dabei wurden von ZIRNGAST die halokinetischen und die epirogenen Anteile der Gesamtbewegung getrennt.

Erste Andeutungen für die Entstehung eines Salzkissens zeigen die Schichtmächtigkeiten der Zeitspanne Oberer Buntsandstein - Muschelkalk. Im Keuper bildete sich ein kräftiges Salzkissen heraus, das sich im Lias und Dogger noch weiterentwickelte. In der Zeitspanne Malm - tiefste Unterkreide trat die Struktur in das Diapirstadium. Dieses hielt mit starker Salzförderung während der gesamten Kreide an. Starker Salznachschub fand im Alttertiär und ein geringerer in der Zeitspanne Jungtertiär bis Quartär statt.

Mit Hilfe der quantitativen Randsenkenanalyse hat ZIRNGAST, 1991, Zahlenwerte für das Volumen des in den Salzstock gewanderten Salzes ermittelt. Es beginnt mit ca. 11 km^3 in der Zeitspanne Malm - tiefste Unterkreide und steigt rasch an über ca. 71 km^3 in der Zeitspanne

Hauterive - Alb auf ca. 115 km^3 in der Zeitspanne Cenoman - Unterpaläozän. Die Zuwanderung verringert sich auf ca. 54 km^3 im Alttertiär (ab Oberpaläozän) und auf schließlich ca. 19 km^3 in der Zeitspanne Jungtertiär - Quartär.

ZIRNGAST hat ferner Zahlenwerte für den durchschnittlichen Salzaufstieg im Bereich der Salzstockoberfläche ermittelt. Die Darstellung (s. Abb. 1) zeigt einen starken Anstieg der Aufstiegs geschwindigkeit vom Beginn des Durchbruchs bis zur Kulmination in der Kreide, sowie danach einen langsamen Abstieg bis zur Gegenwart.

Aus den von ZIRNGAST ermittelten Daten geht auch hervor, daß mit diesen Berechnungen die Grenzen der z. Zt. möglichen Aussagegenauigkeit erreicht werden. Bei einem Vergleich der nach zwei verschiedenen Zeitskalen berechneten Aufstiegsraten erkennt man, daß besonders bei den relativ kleinen geologischen Zeitspannen im Alttertiär die Werte entscheidend durch die in den Zeitskalen enthaltenen Abweichungen beeinflußt werden.

Der Versuch von JARITZ, 1991, den Verlauf der Aufstiegsraten durch Kurven über die Werte von ZIRNGAST darzustellen, ergibt für das Maximum der Salzaufstiegsrate im Diapirstadium - je nach verwendeter Zeitskala - $0,07$ bzw. $0,08 \text{ mm/a}$ (Abb. 1). Das ist etwas weniger als bei anderen nordwestdeutschen Salzstöcken, für die von JARITZ, 1980, Werte zwischen $0,1$ und $0,5 \text{ mm/a}$ angegeben wurden. Für die gegenwärtige Aufstiegsrate ergeben beide Kurven übereinstimmend Werte um $0,01 \text{ mm/a}$.

Infolge der weitgehenden Konstanz der dynamischen Verhältnisse, von denen der Salznachschub aus der Tiefe abhängt, ist damit zu rechnen, daß der künftige Salzaufstieg über mindestens eine Millionen Jahre ohne wesentliche Veränderung ablaufen wird. D. h., es ist in der Zukunft mit einer durchschnittlichen Aufstiegsrate von ca. $0,01 \text{ mm/a}$ zu rechnen, was für die nächsten $10\,000$ Jahre zu einer Hebung von ca. 10 cm und von ca. 10 m für die nächste 1 Million Jahre führt.

5. Subrosion

Verluste des in der Salzstruktur angehäuften Salzes durch Subrosion sind frühestens etwa vom Dogger an möglich. Zu dieser Zeit war das Salzkissen hoch aufgewölbt und die Deckschichten etwa bis auf das Niveau des Oberen Buntsandsteins abgetragen.

Während des Diapirstadiums setzte mit dem Salztransport zur Geländeoberfläche auch eine starke Subrosion ein. Subrosion fand während der gesamten Unter- und Oberkreide in großer Intensität statt, entsprechend der großen Mengen des aufsteigenden Salzes (s. Kap.4).

Vom Tertiär an wurde die Subrosion wesentlich geringer. Aus der Mächtigkeitentwicklung der Tertiärsedimente (s. Kap. 7) ist ablesbar, daß das Maximum der Subrosion im Paläozän und Untereozän im SE-Abschnitt des Salzstockdaches, im Mitteleozän dagegen im NW-Abschnitt lag (KÖTHE, 1991). Die mehr oder weniger gute Abdichtung hat das Ausmaß der Subrosion beeinflußt. Im Miozän und Pliozän fehlen Subrosionsbelege.

Lokale Subrosion beträchtlichen Ausmaßes fand im Altquartär in einigen zentralen Teilen des Salzstocks statt. Die Subrosionsvorgänge sind durch altquartäre Sedimente dokumentiert (s. Kap. 7). Wie MÜLLER (1986) gezeigt hat, handelt es sich um eine flache Senkungswanne sowie um zwei eng begrenzte Einsturzgebilde.

Gegen Ende der Elstereiszeit kam es durch den Kontakt von sehr großen Mengen von Wasser mit dem Salzstock in kürzester Zeit zu sehr starker Subrosion. Über den mehr oder weniger horizontalen Rißvorgang, bei dem die Hutgesteinsbrekzie erzeugt wurde (s. Kap. 6), konnte die Subrosion auch da große Wirkung entfalten, wo eine Überdeckung des Salzstocks durch Tertiär erhalten geblieben war.

Aus dem Geschichteten Gipsgestein (s. Kap. 6) kann die Subrosion erschlossen werden, die jünger ist als die o.a. elsterzeitlichen Vorgänge. Von der Subrosion, die sich nach Bildung von Rinne und Hutgesteinsbrekzie ereignete, kann ein Teil noch der zu Ende gehenden Elstereiszeit zugerechnet werden, denn das in das Gebirge eingetragene Süßwasser konnte noch eine erhebliche Menge Salz lösen. In Schacht 1 sind aber auch nebeneinander das Vorkommen und das Fehlen von Geschichtetem Hutgestein zu beachten (siehe Abb. 2). Nach der Bildung der Hutgesteinsbrekzie sind hier nur noch die höher aufragenden Teile des Salzgebirges subrodiert worden (BORNEMANN & FISCHBECK, 1991). Dabei ist ein ebener Salzspiegel entstanden. In den tiefer gelegenen Teilen des Aufschlusses hat dagegen seit der Elstereiszeit keine Subrosion mehr stattgefunden, das rauhe Relief des Risses ist hier erhalten geblieben. Offensichtlich kam es hier rasch zu einer Füllung der Gesteinsporen mit gesättigter Lösung.

Leider gibt es keine zuverlässigen quantitativen Kriterien für das Ausmaß holstein- und saalezeitlicher Subrosion. Der quantitativen Auswertung stehen glazialtektonische Schichtverstellungen sowie die Unkenntnis über das frühholsteinzeitliche Relief und das Ausmaß von Setzungen in Bereichen mit mächtigen Lauenburger-Ton-Schichten entgegen. Die Strukturen an der Basis der Elbeniederterrasse lassen keine Hinweise auf Subrosion erkennen. Daraus ist zu schließen, daß mindestens seit der Weichsel-Kaltzeit die Beträge der Subrosion so klein sind, daß sie mit geologischen Methoden nicht mehr feststellbar sind.

ZIRNGAST (1991) hat Zahlenwerte von ca. 4900 bis ca. 7000 m für die Höhe der insgesamt subrodierten Salzsäule ermittelt. Das Volumen des insgesamt weggeführten Salzes gibt er mit 248 km³ an. Das entspricht 47 % der im Einzugsbereich des Salzstocks primär vorhandenen Zechsteinmächtigkeit (oder von 57 % bei der weniger wahrscheinlichen Angabe von nur 1150 m primärer Zechsteinmächtigkeit).

Die überschlägige Berechnung der Subrosionsrate im Bereich der Gorlebener Rinne ergibt unter Einschluß der unmittelbar bei der Rinnenbildung erfolgten Subrosion einen Wert von 0,2 mm/a für die letzten ca. 900 000 Jahre. Betrachtet man dagegen nur die Postelster-Subrosion, erhält man einen Durchschnittswert von 0,04 mm/a bei allerdings erheblicher Bandbreite (BORNEMANN & FISCHBECK, 1986).

Aus der Tatsache, daß Subrosion auf dem Dach des Salzstocks Gorleben wenigstens für den Zeitraum der letzten 100 000 Jahre nicht mehr nachgewiesen werden konnte, darf gefolgert werden, daß seit 100 000 Jahren entweder gar keine oder nur eine sehr geringe Subrosion stattfand. Da sich die geologischen Verhältnisse im Bereich des Salzspiegels seither nicht mehr grundlegend geändert haben, folgt daraus für die Zukunft, daß Subrosion zwar möglich aber voraussichtlich sehr gering sein wird. Eine stärkere Subrosion wird lediglich an solchen Stellen möglich sein, an denen ungesättigte Lösungen in Kontakt mit dem Salzgebirge treten. Das wäre am ehesten dort zu erwarten, wo Salz relativ hoch liegt.

6. Hutgestein

Im allgemeinen kann die Entstehung des Hutgesteins eines Salzstocks nicht datiert werden, weil die Gesteinsfolge weder Faunen noch datierbare Minerale enthält. Am Salzstock Gorleben ist die Situation wesentlich günstiger, weil es zeitlich einstuftbare Ereignisse gibt. Die erste wichtige Zeitmarke ist die biostratigraphisch bearbeitbare Verfüllung von Karsthohlräumen, die zweite ist die elsterzeitliche Hutgesteinsbrekzie. Weiteres folgt aus der für die Hutgesteinsentwicklung typischen Abfolge, daß oben das Älteste und unten das Jüngste liegt.

Das klastische Füllmaterial von Karsthohlräumen, die in Schacht 1 angetroffen wurden (s. Abb. 2), ließ sich mit Hilfe von Dinoflagellaten und Kalk-Nannoplankton stratigraphisch bearbeiten. Es umfaßt Komponenten von der Oberkreide bis zum Mitteleozän, jedoch nichts jüngerer als die Dinoflagellatenzone 9 (KÖTHE, 1992). Die lithologische Bearbeitung erwies ebenfalls, daß es sich ganz überwiegend um alttertiäres Material handelt, vereinzelt

kommt jedoch auch Quartärmaterial vor, wie KNABE (frdl. mündl. Mitteilung) durch Bearbeitung von Korngrößen, Smektitgehalt und Schwermineralspektrum festgestellt hat. Vereinzelt war die Zugehörigkeit zum Quartär auch an nordischen Geröllen im Aufschluß erkennbar. - Die Interpretation ist verhältnismäßig einfach: Die Karsthohlräume wurden überwiegend im Alttertiär bei der Überflutung durch das transgredierende Meer verfüllt. Das könnte auch in mehreren Akten seit dem Oberpaläozän geschehen sein, auf jeden Fall wurde der Vorgang mit der Dinoflagellatenzone 9 im Mitteleozän abgeschlossen. Älteres Material, vor allem das in unmittelbarer Nähe anstehende Campan, ist durch Umlagerung in die Verfüllung der Hohlräume einbezogen worden. Das Quartärmaterial kann mit der Bildung der Hutgesteinsbrekzie in noch vorhandene Resthohlräume und/oder in zwischenzeitlich neu entstandene Hohlräume injiziert worden sein.

Ein Schritt zurück in der Erdgeschichte führt in die Entstehungszeit der Karsthohlräume, deren Füllmaterial oben beschrieben wurde. Der Transgression ging eine lange Festlandsperiode voraus, die große Teile des Maas-tricht und des Paläozäns umfaßte (Größenordnung 15 Millionen Jahre). In diese Zeit der Heraushebung fiel eine Erosion von erheblichen Teilen des Hutgesteins (s. u.) und die Verkarstungserscheinungen, die in Schacht 1 beobachtet wurden. (Ein noch größeres Alter für die Bildung der Hohlräume ist nicht möglich, da sonst die Verfüllung bereits bei der Transgression des Campans erfolgt wäre).

Von der Hohlraumbildung ist der gesamte Hauptteil des Hutgesteins, d.h. alles was oberhalb der Hutgesteinsbrekzie liegt, betroffen worden. Folglich muß dieser ganze Komplex älter als die Verkarstung sein und ist damit insgesamt in die Kreidezeit (und allenfalls in kleinen Teilen in den höchsten Oberjura) zu stellen. Innerhalb des Komplexes ergibt sich aufgrund der Abfolge von oben nach unten für die Reihenfolge der Entstehung der Einzelabschnitte: 1. Flaser-, Knollengips, 2. Liniengips, 3. Sprenkelgips (BORNEMANN & FISCHBECK, 1986). Die Überlieferung dieser Abfolge ist sicher unvollständig, denn in den meisten Fällen wird sie von transgressivem Ter-

tiär überlagert, und vor der Transgression ist eine nicht bekannte Menge Hutgestein erodiert worden. Es ist folgende Mengenbilanz aufzustellen: Die drei genannten Hutgesteinstypen erreichen zusammengenommen nur selten Mächtigkeiten um 40 m. Bei den üblichen Anhydritgehalten war zur Entstehung von so viel Hutgestein - unter Zugrundlegung einer nahezu vollständigen Überführung des Anhydrits im Hutgestein, s. BORNEMANN & FISCHBECK in BGR 1991, S. 168 f. - eine Säule von ca. 1 000 m Salzgebirge erforderlich. Demgegenüber beträgt nach ZIRNGAST (1991) die Mindesthöhe der bis zum Ende der Oberkreide subrodierten Salzsäule ca. 3 500 m, was unter den gleichen Annahmen zu 140 m Hutgestein führen sollte. Die Erosion von Hutgestein muß demnach erheblich gewesen sein. Dabei ist auch daran zu denken, daß nicht der gesamte erosive Verlust an Hutgestein in der Festlandsperiode vor dem Einsetzen der Tertiärtransgression eingetreten sein mußte. Erosion hat auch während verschiedener Zeiten des Diapirstadiums und z. B. auch vor der Campantransgression stattgefunden, wie an mehreren Stellen nachgewiesen wurde, wo Campan unter Ausfall von Flaser- und Knollengips über Liniengips transgredierte (BORNEMANN, 1991; BORNEMANN & FISCHBECK, 1991).

Mit dem Fortschreiten der Überdeckung des Salzstocks im Alttertiär erlahmten auch Subrosion und Hutgesteinsbildung. In geringeren Mengen muß sich weiter Hutgestein gebildet haben, dieses ist jedoch nicht zu identifizieren, da es sich dort befunden haben muß, wo es später bei der Bildung der Hutgesteinsbrekzie wieder zerstört werden konnte.

Die Hutgesteinsbrekzie ist die zweite wichtige Zeitmarke (s. Abb. 3). In der Brekzie herrschen die aus dem zertrümmerten Hutgestein stammenden Gipsbrocken vor. Daneben ist klastisches und karbonatisches Material vorhanden, das aus den Gesteinen der näheren Umgebung stammt. Die Brekzie enthält jedoch auch eindeutig nordische Geschiebe verschiedenster Größe. Damit ist ihre Entstehung im Quartär gesichert. Da ferner geklärt ist, daß die glazigene Tiefenwirkung nur während der Elstereiszeit bis zum Niveau des Salzspiegels reichte (s. Kap. 8), ist auch die Einstufung des Reißbildungsvorgangs und damit der Hutgesteinsbrekzie in die Elstereiszeit gesichert (BORNEMANN & FISCHBECK, 1986; HERBERT et al., 1989; BORNEMANN, 1991).

Aus der Einstufung der Hutgesteinsbrekzie ergibt sich auch, daß das von oben nach unten an die Hutgesteinsbrekzie angewachsene Geschichtete Gipsgestein spätest- bzw. postelsterzeitlich entstanden ist. Nicht gesichert ist, ob bzw. wo das Geschichtete Gipsgestein heute noch weiterwächst, vgl. Kap. 5.

Entsprechend den Ausführungen zur Subrosion in Kap. 5 ist für die nächste Zukunft nur eine geringe Bildung von Hutgestein möglich.

7. Sedimentation und Erosion über dem Salzstock

Geringmächtige karbonatische und tonige Ablagerungen über dem Hutgestein bilden die ältesten Sedimente auf dem Salzstockdach. Sie gehören in die Oberkreide und, soweit näher bestimmbar, in das Campan. Es handelt sich hierbei um Erosionsreste ehemals weiter verbreiteter Schichten.

Nach einer großen Schichtlücke setzt im Oberpaläozän wieder eine Überdeckung mit vorwiegend tonigen Sedimenten ein. Lokal gibt es auch Hinweise auf ältere Ablagerungen als sie in der Randsenkenbohrung GoHy 994 vorkommen (KÖTHE 1991, 1992). Das weist auf eine subrosionsbedingte Schutzposition dieser Ablagerungen hin.

Bei der detaillierten petrographischen Bearbeitung der Randsenkenbohrung GoHy 994 wurden im basalen Oberpaläozän (hier zusammen mit Negativkristallen von Halit), im oberen Untereozän und im Brüsselsand quarzumkrustete feinkörnige Anhydritkristalle angetroffen. Das sind jedesmal Hinweise auf Erosion auf dem Salzstockdach (DILL, frdl. mündl. Mitteilung).

Im Eozän und Oligozän entstand eine Tonüberdeckung des Salzstockdachs von sehr unterschiedlicher Mächtigkeit. Die einzelnen Schichten haben teilweise eine gegenüber den Ablagerungen in den Randsenken stark reduzierte Mächtigkeit. Dabei sind neben den in den Randsenken zu beobachtenden Schichtlücken, von denen die an der Oligozänbasis die bedeutendste ist, auch einige weitere anzutreffen. Auf dem Salzstockdach kommen aber auch einzelne

Abschnitte in Mächtigkeiten vor, die über denen in den Randsenken liegen. Eine sehr detaillierte Auswertung hat KÖTHER (1991, 1992) mit Hilfe der Dinoflagellatengliederung des Alttertiärs gegeben. Das generell gegenüber den Randsenken reduzierte Profil ergibt sich aus dem Salzaufstieg bei gleichzeitig übernormaler Mächtigkeit in den Randsenken. Die starken lokalen Mächtigkeitsschwankungen auf dem Salzstockdach beruhen auf dem im einzelnen sehr komplexen Wechselspiel von Teilabdichtung des Salzstocks und Subrosion, und sie wurden über längere Zeiten auch durch den unterschiedlich starken Salzaufstieg in verschiedenen Salzstockteilen beeinflusst.

Sedimente des Jungtertiärs wurden auf dem Salzstock nicht angetroffen, während in der Umgebung die Überlieferung bis zum Untermiozän reicht. Wahrscheinlich wurde ehemals vorhandenes Miozän infolge der Aufwölbung des Salzstockdachs später wieder abgetragen.

Die über dem zentralen Teil des Salzstocks im präglazialen Quartär einsetzende Subrosion bewirkte die Entstehung eines sehr flachen Sedimentationsbeckens (MÜLLER, 1986). Der Beginn der Sedimentation lag vermutlich im Menap. In der Bavel- und Cromerzeit dehnte sich das Becken etwas aus. An einer sehr eng begrenzten Stelle am Rand dieser Senke und an einer weiteren Stelle im NE des Salzstocks weisen besonders hohe Mächtigkeiten von bavel- und cromerzeitlichen Sedimenten darauf hin, daß hier Erdfallfüllungen vorliegen.

In der Elstereiszeit begann mit dem Heranrücken des skandinavischen Inland-eises eine neue Sedimentationsfolge. Sie besteht aus Kies, Sand und Geschiebemergel und aus tonig-schluffigen Beckensedimenten. Die einzelnen Einheiten sind anhand ihres Geröllspektrums wenigstens z. T. datierbar, dazu kommen palynologische Datierungen in den Tonen, Mudden und Torfen und im teilweise marinen Holsteinton. Die große Mächtigkeit der quartären Schichtenfolge ist an die Bildung der glazigenen Rinne mit ihrer Erosionswirkung und an die starke Tieferlegung des Salzstockdachs durch Subrosion gebunden.

Soweit in der näheren geologischen Zukunft keine Eiszeit stattfindet, ist nur mit geringer Erosion auf den Höhen sowie mit geringer Erosion und Sedimentation in den Senken, vor allem in der Elbaue, zu rechnen. Im Falle einer neuen Eiszeit wäre dagegen mit größeren Veränderungen an der Erdoberfläche zu rechnen (s. Kap. 8).

8. Glazigene Einwirkungen

In der Zeit zwischen ca. 400 000 und ca. 130 000 Jahren vor heute wurde das geologische Geschehen am Standort entscheidend durch glazigene Vorgänge geprägt.

Das Gelände wurde von den vorrückenden Inlandeismassen der Elstereiszeit kräftig umgestaltet. Dabei sind am Standort drei Rinnen entstanden. Die tiefste von ihnen, die über den Salzstock laufende sogenannte Gorlebener Rinne, ist darüber hinaus durch Schmelzwässer weiter sehr stark vertieft worden. Die größte Tiefe des Rinnenbodens liegt etwa 300 m unter NN. Auf einer Fläche von ca. 4,5 km² wurde das tertiäre Deckgebirge (und möglicherweise hier vorhandene Prälstersedimente) vollständig abgeräumt und das Hutgestein des Salzstocks erreicht. An mehreren relativ eng begrenzten Stellen schnitt die Rinne sogar bis ins Salzgebirge ein (BORNEMANN 1991, LUDWIG in BGR 1991). Als glazigene Einwirkung ist auch der Riß anzusehen, der von der Rinne ausgehend entlang des Salzspiegels, der eine Schwächezone bildete, horizontal in das Gebirge eingegriffen und die Hutgesteinsbrekzie geschaffen hat (vgl. Kap. 6). Zum Verständnis der bei der Entstehung von Rinne und Riß abgelaufenen Prozesse haben Modellrechnungen von DELISLE (1988, 1989) wesentlich beigetragen.

Nach der Verfüllung der Rinnen in der zu Ende gehenden Elster- und in der Holsteinzeit wurde das Gebiet des Standorts in der Saaleeiszeit noch dreimal vom Inlandeis überfahren. Dabei wurden die oberflächennah liegenden Sedimente der Holsteinzeit und die höheren Abschnitte des Lauenburger-Ton-Komplexes intensiv verschuppt (LUDWIG in BGR 1991). Tiefgreifende Rinnen sind saalezeitlich nicht entstanden.

Inlandeis der Weichseleiszeit hat den Standort nicht mehr erreicht. Die Eiszeit hat jedoch durch ihre klimatische Wirkung die Morphologie erheblich beeinflußt.

In der weiteren geologischen Zukunft kann es nach mehr als 10 000 Jahren zu einer erneuten Eiszeit kommen (s. DELISLE, 1991). Sollte dabei der Standort vom Inlandeis nicht überfahren werden, ist mit Veränderungen an der Geländeoberfläche zu rechnen, die mit denen der Weichseleiszeit vergleichbar sind. Sollte eine Überfahung durch Inlandeis stattfinden, so ist eine wesentlich größere Umgestaltung der Morphologie mit Erosion und Sedimentation in der Größenordnung mehrerer Zehner von Metern zu erwarten. Die Entstehung glazigener Rinnen mit einer Tiefenwirkung von mehreren Hunderten von Metern ist in Analogie zu den Verhältnissen in der Saaleeiszeit und nach Modellrechnungen von DELISLE (1988, 1989) nicht möglich. Der Grund dafür ist, daß bei den Inlandvereisungen der Saalezeit und bei denkbaren künftigen Vereisungen eine Abfuhr der Schmelzwässer durch permeable Sedimente erfolgen kann.

9. Literatur

- BGR (1991): Übertägige geowissenschaftliche Erkundung des Standortes Gorleben. Zusammenfassender Bericht, Stand 01.01.1990 - 369 S., 118 Abb., 62 Tab., 39 Anl., Hannover.
- BORNEMANN, O. (1991): Zur Geologie des Salzstockes Gorleben, mit einem Beitrag von R. FISCHBECK. - BfS-Schriften 4/91, 66 S., 13 Abb., 24 Anl., Salzgitter.
- BORNEMANN, O. & FISCHBECK, R. (1986): Ablaugung und Hutgesteinsbildung am Salzstock Gorleben.- Z. dt. geol. Ges., 137:71-83, 4 Abb, 1 Tab., 2 Taf., Hannover.

- BORNEMANN, O. & FISCHBECK, R. (1991): Geologische Bearbeitung der Schächte Gorleben 1 und 2 (Hutgestein und Salinar).- 2. Zwischenbericht BGR, Arch.-Nr. 108 349, 14 S., 9 Anl., Hannover.
- BORNEMANN, O. & FISCHBECK, R. (1992): Geologische Bearbeitung der Schächte Gorleben 1 und 2 (Hutgestein und Salinar).- 3. Zwischenbericht BGR, Arch.-Nr. 109 625, 31 S., 14 Abb., 11 Anl., Hannover.
- BORNEMANN, O., FISCHBECK, R. & MINGERZAHN G. (1993): Geologische Bearbeitung der Schächte Gorleben 1 und 2 (Hutgestein und Salinar).- 4. Zwischenbericht BGR, Arch.-Nr. 110 745, 25 S., 12 Abb., 9 Tab., 15 Anl., Hannover.
- BORSTEL, L. E. v. (1993): Lösungen im marinen Evaporiten.- BfS-Schriften 10/93, 314 S., 72 Abb., 74 Tab., Salzgitter.
- BROOKINS, D. G. (1981): Geochemical study of a lamprophyre dike near the WIPP site.- 3. Internat. Symp. Nucl. Waste Managem.: 307-314. (Plenum Press).
- CRAMER, J. J., VILKS, P. & LAROCQUE, J. P. A. (1987): Near-Field Analogue Features from the Cigar Lake Uranium Deposit.-In CÔME, B. & CHAPMAN, N. A. (ed.): Natural Analogues in Radioactive Waste Disposal.- Proc. Symp. Brussels, April 1987, S. 59-72,- EUR 11037 (Graham & Trotman).
- DELISLE, G. (1988, 1989): Permaforst in Nordeuropa und Genese glazialer Rinnen während Glazialstadien. Teilbericht I, BGR, Archiv-Nr. 103 486, 20 S., 10 Abb., Teilbericht II, BGR, 19 S., 16 Abb., Hannover.
- DELISLE, G. (1991): Causes and consequences of the advance of a continental ice sheet from Scandinavia to Northern Germany.- Geol. Jb., A 127: 507-517, 7 Abb., Hannover.

- DUERDEN, P. (Ed.)(1992): The international Intraval Project to Study Validation of Geosphere Transport Models for Performance Assessment of Nuclear Waste Disposal. Phase 1, Test Case 8, The Alligator Rivers Natural Analogue.- NEA/OECD, Paris.
- FISCHBECK, R. & BORNEMANN, O. (1993): Hinweise auf Stofftransporte im Salzstock Gorleben aufgrund von kleintektonischen Untersuchungen und Brombestimmungen an halitischen Kluftfüllungen.- Geol. Jb., A 142:233-256, 5 Abb., 9 Tab., 3 Taf., Hannover.
- HARLAND, W. B., COX, A. V., LLEWELLYN, P. G., PICTON, C. A. G. , SMITH A. G. & WALTERS, R. (1982): A geological time scale.- 131 S., 1 Abb., 1 Tab., Cambridge (Cambridge Univ. Press).
- HERBERT, H-J., BORNEMANN, O. & FISCHBECK, R. (1990): Die Isotopenzusammensetzung des Gipskristallwassers im Hutgestein des Salzstocks Gorleben - ein Nachweis für die elsterzeitliche Bildung der Hutgesteinsbrekzie. - Kali u. Steinsalz, 10, 7/8:215-226, 7 Abb., 4 Tab., Essen.
- HERRMANN, A. G. & BORSTEL, L. E. v. (1991): The composition and origin of fluid inclusions in Zechstein evaporites of Germany.- N. Jb. Miner. Mh., 1991, 6:263-269, 2 Abb., Stuttgart.
- HERRMANN, A. G. & KNIPPING, B. (1989): Stoffbestand von Salzstöcken und Langzeitsicherheit für Endlager radioaktiver Abfälle.- PTB informiert, 1/89:3-50, 21 Abb., 11 Tab., Braunschweig.
- IAEA (1975): The Oklo Phenomenon.- Proc. Symp. Libreville, Gabon 1975 - STI/PUB/405, Wien.
- JARITZ, W. (1980): Einige Aspekte der Entwicklungsgeschichte der Nordwestdeutschen Salzstöcke.- Z. dt. geol. Ges., 131:387-408, 8 Abb., Hannover.

- JARITZ, W. (1991): Langzeitverhalten von Salzstöcken.- In FÖRSTER, H. & HARTLEP, B. (Herausgeber): Nukleare Entsorgung am Beispiel eines Forschungsreaktors. Workshop Berlin 29.11.1991. S. 61-70, 4 Abb., Köln (TÜV Rheinl.).
- KNIPPING, B. (1987): Basaltintrusionen in Zechstein-1-Evaporiten (Werra-Lagerstättenbezirk).- Diss. Univ. Göttingen.
- KÖTHE, A. (1991): Biostratigraphische Untersuchung paläogener Proben des Salzstocks Gorleben anhand von Dinoflagellaten und deren geologische Interpretation.- Bericht BGR, Arch.-Nr. 108 391, 7 Abb., Tab., Taf., Hannover.
- KÖTHE, A. (1992): Biostratigraphische Untersuchung des tertiären Deckgebirges sowie der Hohlraumfüllungen des Hutgesteins der Schächte I und II des Salzstocks Gorleben anhand von Dinoflagellaten und Kalk-Nannoplankton.- Bericht BGR, Arch.-Nr. 110 038, 32 S., Abb., Tab., Taf., Hannover.
- MÜLLER, H. (1986): Altquartäre Sedimente im Deckgebirge des Salzstockes Gorleben.- Z. dt. geol. Ges., 137:85-95, 5 Abb., Hannover.
- OCHIAI, Y., YAMAKAWA, M., TAKEDA, S. & HARASHIMA, F. (1989): Natural Analogue Study on Tono Uranium Deposit in Japan.- CEC Natural Analogue Working Group Third Meeting, Snowbird near Salt Lake City (USA) June 15-17, 1988, Final Report, S. 126-138.
- ODIN, G. S. (1982): The phanerozoic time scale revisited.- Episodes, 1982, 3:3-9, 5 Abb., Ottawa.
- ORLOWSKI, S. & CÔME, B. (1991): The CEC Action in the Field of Geological Disposal: An Overview.- In WINTERSPOON, P. A. (ed.): Proc. Workshop W3B, 28th Internat. Geol. Congr., Washington, D.C., July 15-16, 1989., S. 209-221, 5 fig., 2 tab., Berkeley.

SMELLIE, J. A. T., BARROSO MAGNO Jr. L., CHAPMAN, N. A., MC KINLEY, I. G. & PENNA FRANCA, E. (1987): The Poços de Caldas Project Feasibility Study: 1986-7.- In CÔME, B. & CHAPMAN, N. A. (ed.): Natural Analogues in Radioactive Waste Disposal.- Proc. Symp. Brussels, April 1987, S. 118-132,-EUR 11037 (Graham & Trotman).

ZIRNGAST, M. (1991): die Entwicklungsgeschichte des Salzstocks Gorleben - Ergebnis einer strukturgeologischen Bearbeitung.- Geol. Jb., A 132: 3-31, 17 Abb., 2 Tab., 1 Taf., Hannover.

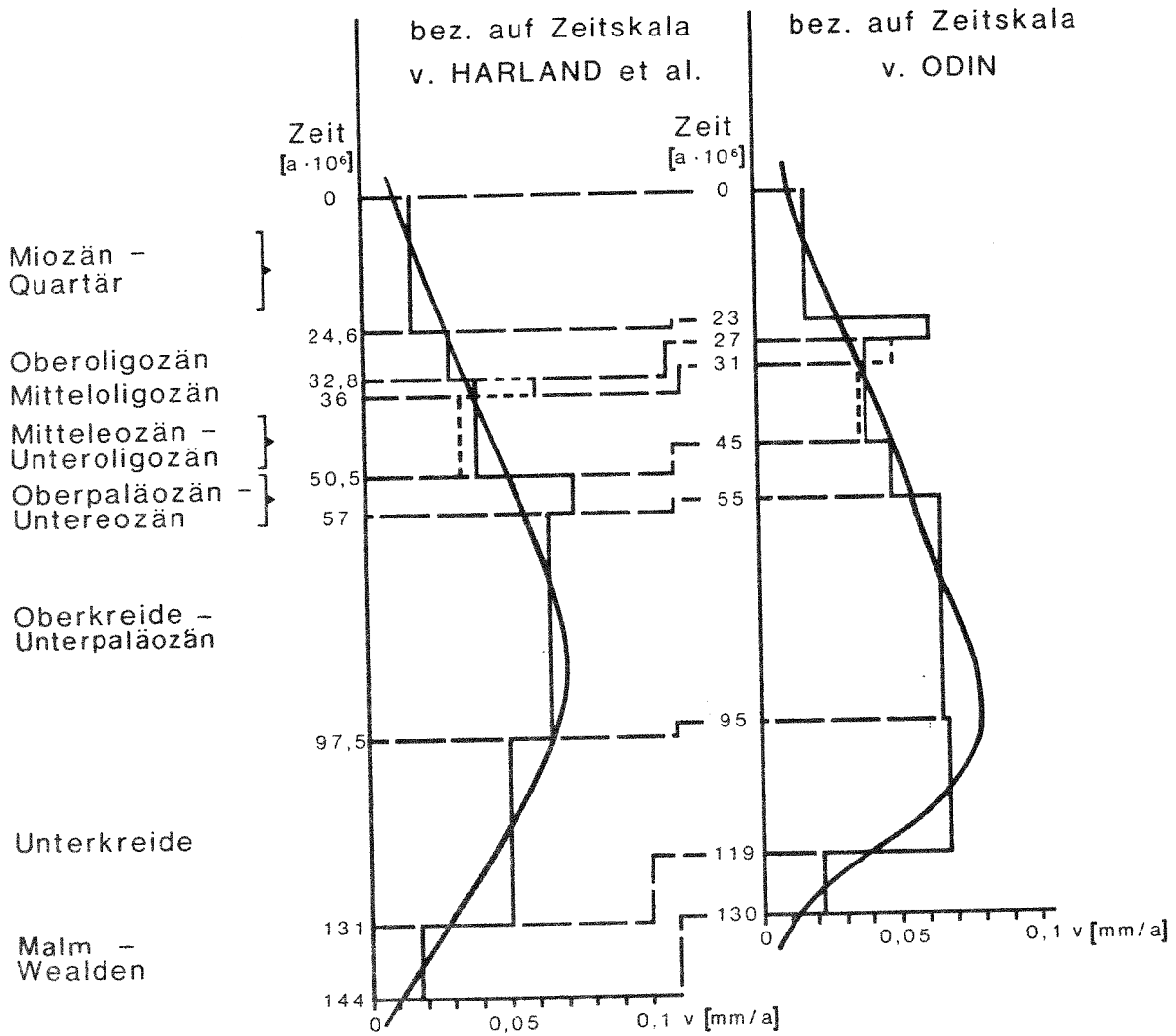


Abb. 1: Durchschnittliche Aufstiegs geschwindigkeiten des Salzes im Bereich der Salzstockoberfläche, nach ZIRNGAST aus JARITZ 1991.

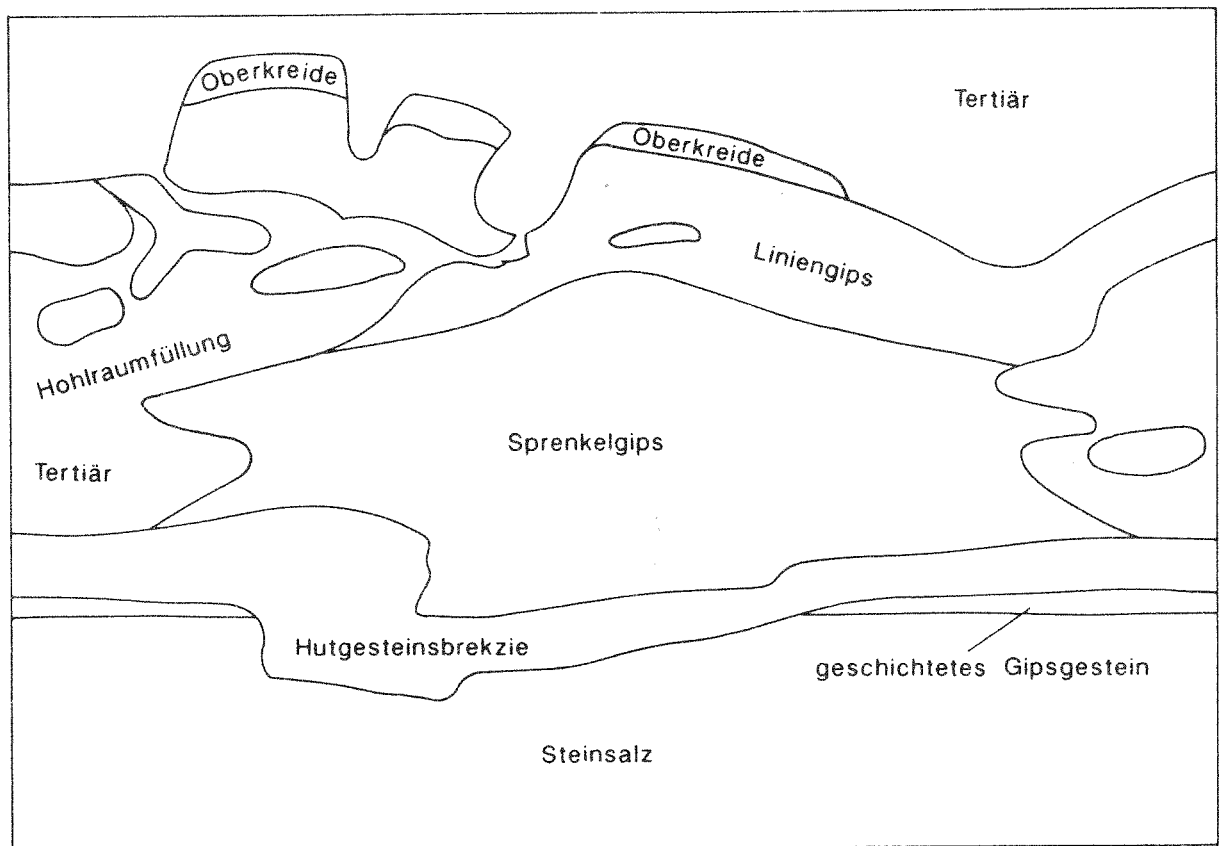


Abb. 2: Zeitmarken im Hutgestein von Schacht 1, schematisch. Hohlräume im Hutgestein wurden größtenteils im Alttertiär verfüllt. Hutgesteinsbrekzie ist elsterzeitlich. Bei Tieflagen der Hutgesteinsbrekzie wurde kein geschichtetes Gipsgestein gebildet.

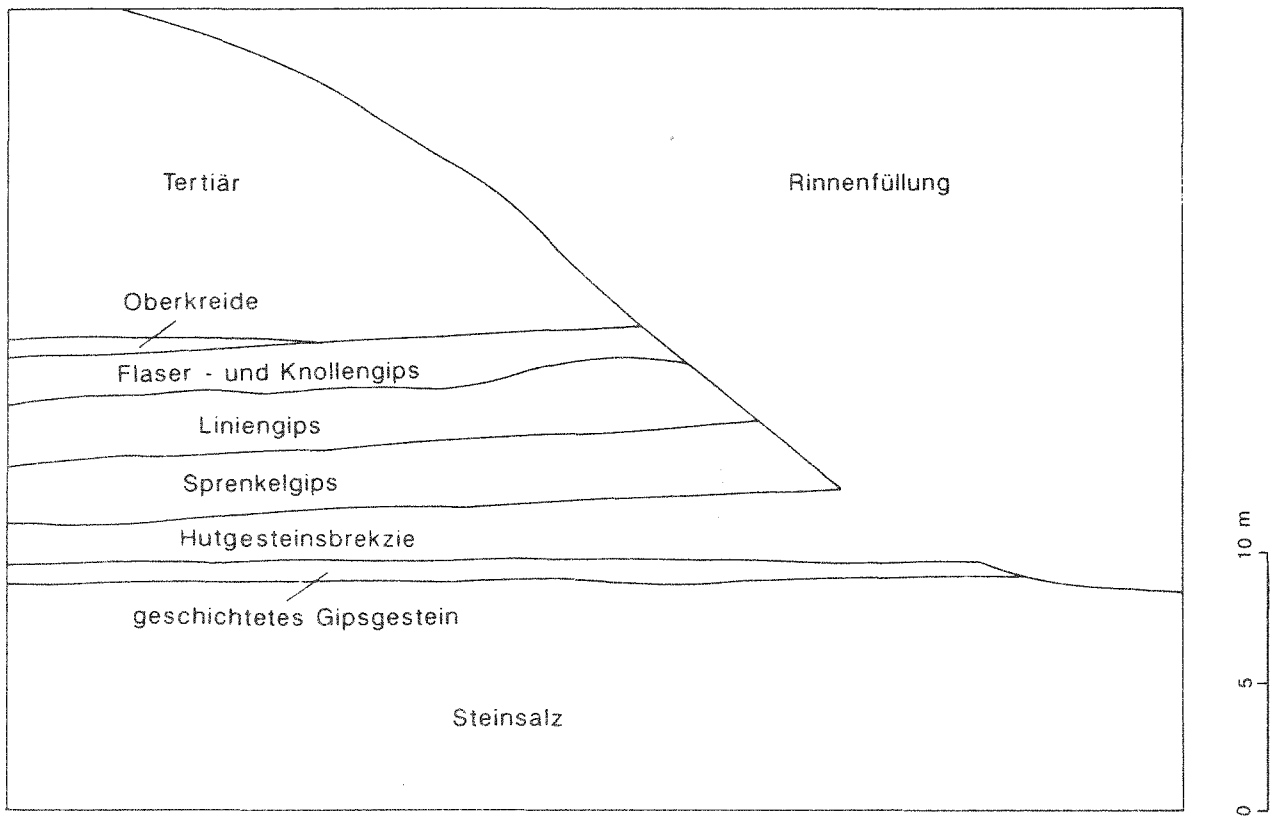
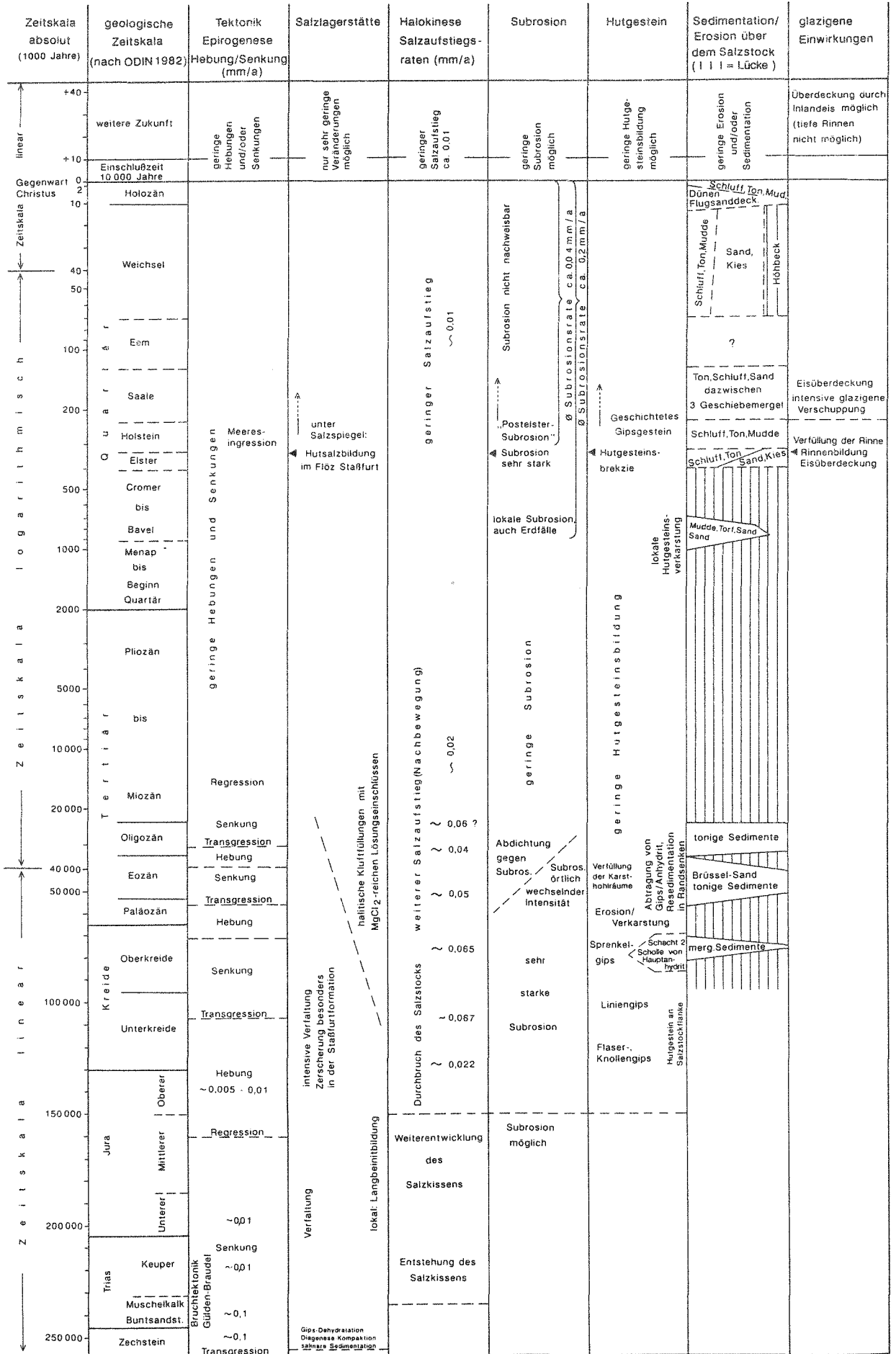


Abb. 3: Schema des von der elsterzeitlichen Rinne ausgehenden Risses, der die Hutgesteinsbrekzie geschaffen hat.



Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Natürliche Analoga zur Beurteilung der
Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien
in Evaporiten:
Stofftransporte und Immobilität spezifischer
Komponenten am Kontakt Basalt/Salzgestein**

**B. Knipping
TU Clausthal**

Natürliche Analoga zur Beurteilung der Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien in Evaporiten: Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

von Bernhard Knipping, Clausthal

„ Schon immer wollten die Menschen in die Zukunft blicken. In der Antike bedienten sich Feldherren des Orakels, um den Ausgang von Schlachten vorhersagen zu lassen. Auch heute noch werden Astrologen, Wahrsager und Kartenleger in der Hoffnung aufgesucht, einen Blick in die Zukunft werfen zu können.

Die Orakel unserer Zeit sind die Computersimulationen. Wir wissen zwar, daß sich zukünftige gesellschaftliche, politische und wirtschaftliche Abläufe nicht im voraus mit wissenschaftlichen Methoden prognostizieren lassen ... Dennoch benötigen wir ... in die Zukunft weisende Szenarien. Wir benötigen prognostische Modelle, um 'Wenn-dann-Szenarien' durchzuspielen, wobei wir jedoch stets die Unzulänglichkeiten der Modell-aussagen im Auge behalten müssen ...“

Michael F. Jischa (1993)

Den Überlegungen zu natürlichen Analoga liegt die Tatsache zugrunde, daß alle Gesteinskörper und damit auch die in ihnen befindlichen Deponien für anthropogene Abfälle in geologische Stoffkreisläufe von unterschiedlicher Dauer eingebunden sind (Bild 1; siehe auch Beitrag Herrmann, Bild 2). Die Berücksichtigung dieser natürlichen dynamischen Prozeßabläufe und ihrer Auswirkung auf geologische Systeme kann - richtig angewendet - wichtige Beiträge zu Aussagen über die Langzeitsicherheit von Endlagern liefern. Dies geschieht durch den Vergleich der Vorhersagen mit Beobachtungen an ähnlichen Prozessen, die in der Natur über lange Zeiträume hinweg abliefen (z.B. Chapman et al. 1993).

Die Aussage „The importance of natural analogs is based on the facts that nature has conducted the experiments, and man can make proper measurements, synthesize the data, and attempt an interpretation“ (Brookins 1984: 197) enthält wichtige Gesichtspunkte für die Arbeit mit natürlichen Analoga.

- Die Deponie von radioaktiven und nichtradioaktiven Abfällen in bestimmten Bereichen der Lithosphäre geschieht ohne vorhergehende Erfahrungen mit ähnlichen (Endlager-) Systemen (Martin et al. 1981). Mit anderen Worten: Ein Endlager wird als technisches Bauwerk konstruiert, ohne die volle Funktionsfähigkeit prüfen zu können.
- Die vom Menschen in Laboratoriumsversuchen durchgeführten Experimente sind zwangsläufig von kurzer Dauer. Auch sogenannte Langzeitexperimente über mehrere Jahre sind an geologischen Zeiträumen gemessen unendlich kurz (Bild 2).
- Bei der Anwendung von Modellrechnungen (Szenarienanalyse) bestehen häufig methodische Probleme einschließlich fehlerhafter Algorithmen. Unsicherheiten bei der Parameterwahl können zu mangelnder „Konservativität“ oder sogar „Überkonservativität“ führen, wodurch in beiden Fällen die Ergebnisse kaum eine Aussagekraft haben.

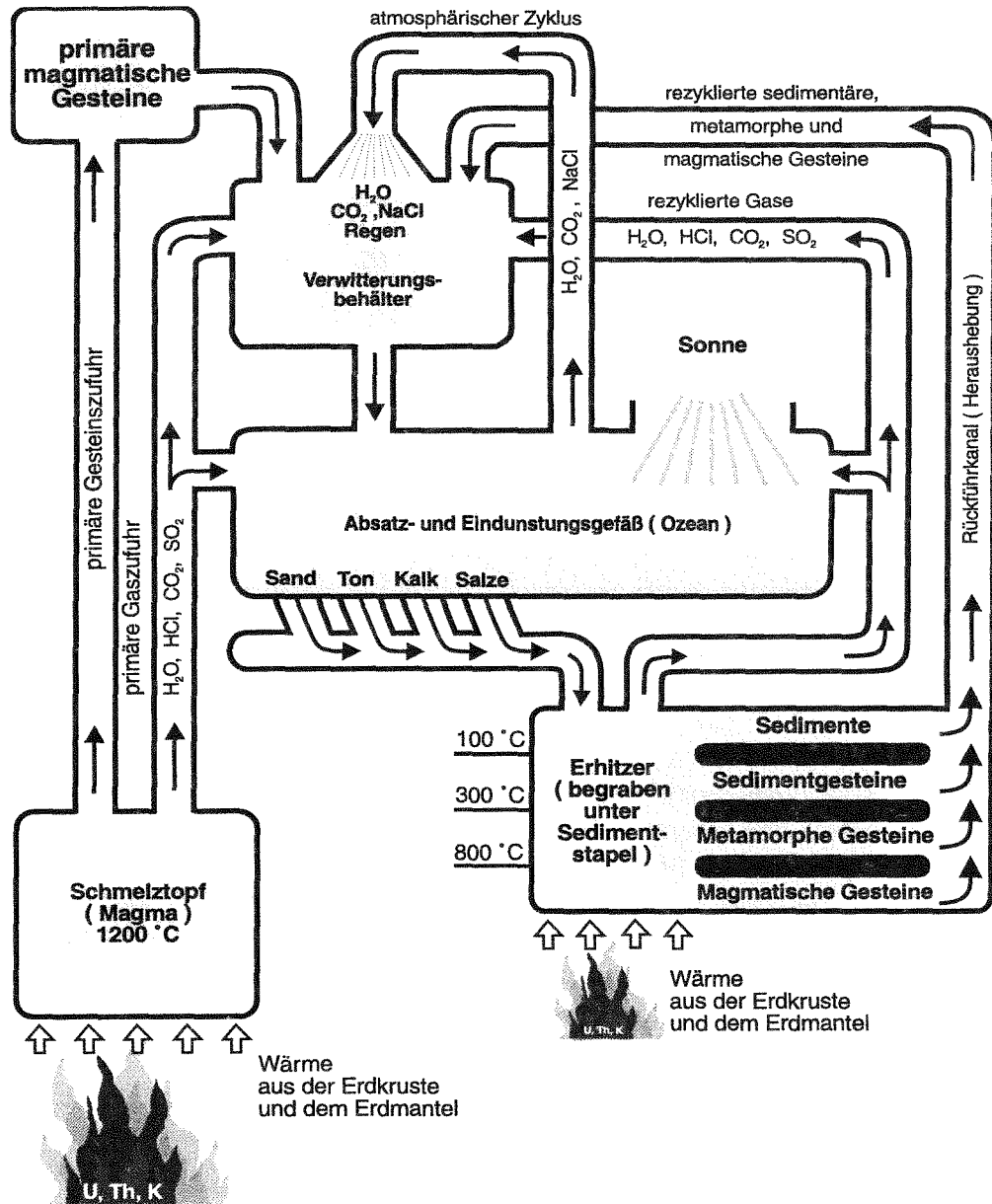


Bild 1 Schematische Darstellung der Wechselbeziehungen und Stoffkreisläufe zwischen den einzelnen Bereichen der Erde, die Erde als Recycling-Maschine (aus Herrmann & Knipping 1993b, nach Garrels & Mackenzie 1971: 330).

- Während Verifizierung und Sensitivitätsanalyse von Modellrechnungen meist keine Probleme aufwerfen, ist die Validierung der Modelle, d.h. die Überprüfung der Ergebnisse an natürlichen Stoffkreisläufen, meist eine offene Frage.

Nicht zuletzt deshalb sind die bisherigen Versuche der Errichtung eines Endlagers für radioaktive Abfälle im In- und Ausland meist an Widerständen in Politik und Öffentlichkeit gescheitert. Mit der stärkeren Einbeziehung natürlicher Analoga in die Endlagerforschung

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

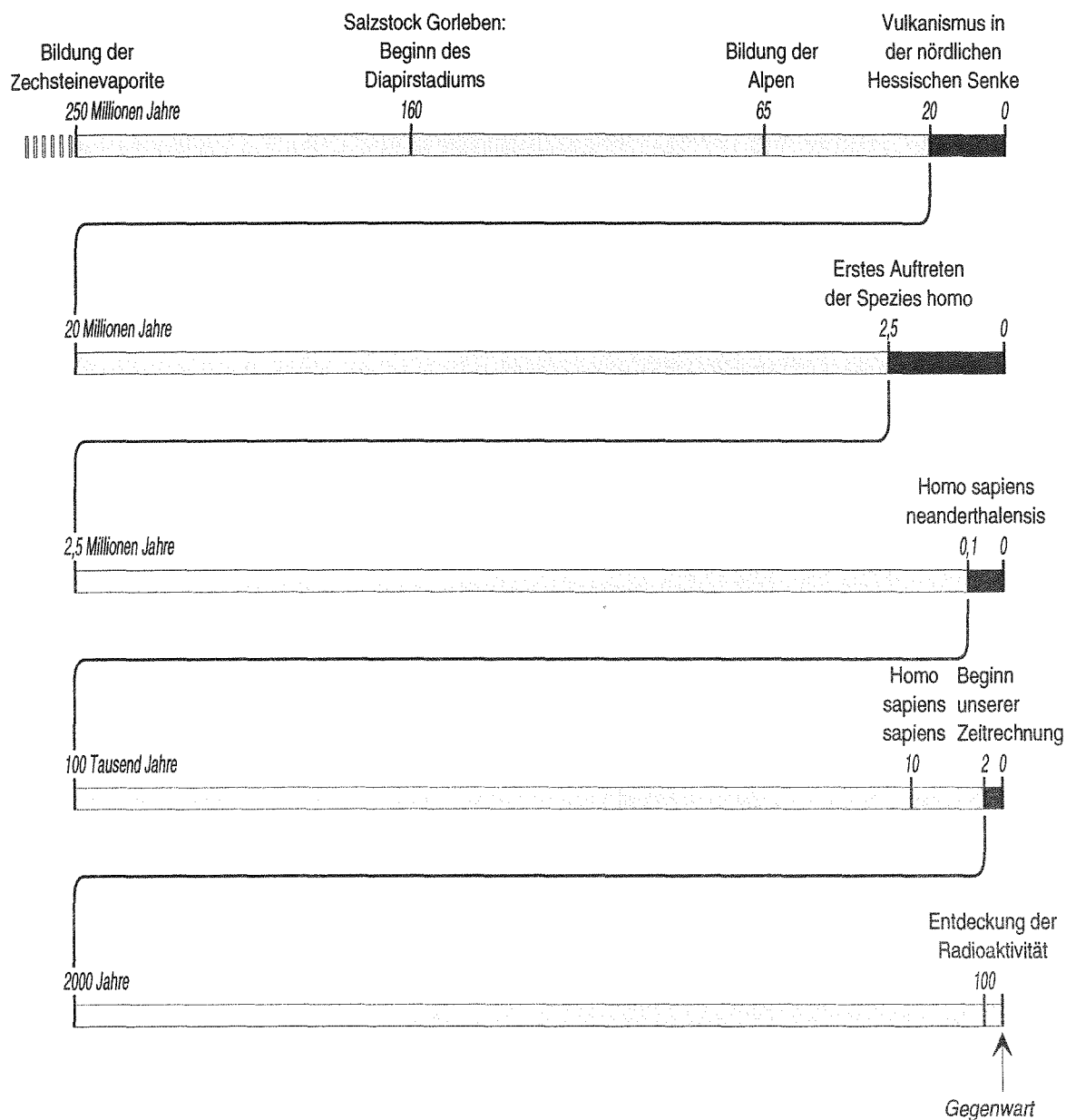


Bild 2 Darstellung der Zeit von der Entstehung der Zechsteinevaporite bis zur Gegenwart in mehreren Maßstäben. Der dunkle Teil eines Balkens ist jeweils der Teil, den der folgende Balken vergrößert darstellt.

könnte die Akzeptanz gegenüber Endlagerprojekten in der kritischen Öffentlichkeit und nicht zuletzt auch bei fachfremden Wissenschaftlern erhöht werden.

Aussagen über das langfristige Verhalten geologischer Endlagersysteme stützten sich in der Vergangenheit meist auf die einseitige Anwendung von Laboratoriumsversuchen und daraus abgeleiteter Modellrechnungen. Dafür wurde vor einiger Zeit der Begriff „Theoretische Geochemie“ geprägt. Die Basis für die Untersuchung und Anwendung natürlicher

Analoga muß jedoch die Naturbeobachtung auf der Grundlage standortbezogener geowissenschaftlicher Arbeiten und detaillierter Lagerstättenkenntnisse sein. Außerdem ist die Beachtung folgender Gesichtspunkte für die Anwendung natürlicher Analoga notwendig:

- Nicht für alle endlagerrelevanten Fragen sind natürliche Analoga vorhanden.
- Zunächst muß der Übertragung von Naturbeobachtungen auf die Endlagerung anthropogener Abfälle eine vollständige mineralogisch-petrographische und geochemische Klassifizierung des festen, flüssigen und gasförmigen Stoffbestandes vorausgehen. Dies muß unter der Berücksichtigung des aktuellen Kenntnisstandes der Genese der untersuchten Gesteinskörper geschehen.
- Zusätzliche Untersuchungen müssen häufig speziell auf die Belange der Erforschung natürlicher Analoga zugeschnitten sein.
- Nur mit dem sich daraus ergebenden tiefgründigen Systemverständnis lassen sich Ergebnisse von Naturbeobachtungen zur fachlich fundierten Interpolation oder gar Extrapolation von Laborexperimenten und theoretischen Überlegungen zur Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien verwenden.

Voraussetzungen für die Untersuchung natürlicher Analoga

Grundlage für die Untersuchung natürlicher Analoga ist die Erkenntnis, daß die Integrität von Endlagern radioaktiver und nichtradioaktiver Schadstoffe praktisch nur durch fluide Phasen (Wasser bzw. wäßrige Lösungen oder Gase) gefährdet wird (siehe auch Beitrag Herrmann). Diese potentielle Gefährdung ist unabhängig von der Art des Wirtsgesteins einer Deponie. Für Arbeiten im Bereich der Endlagerung anthropogener Schadstoffe in Evaporiten wurden am Fachgebietes Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien der TU Clausthal standortunabhängige Methoden entwickelt und angewendet. Diese gestatten beispielsweise auch die Übertragung der Untersuchungsergebnisse für Evaporitvorkommen in flacher Lagerung auf steilstehende Salzstrukturen vom Typ Gorleben.

Bei der Betrachtung der Barriere Salzgestein im Nahfeld einer Deponie stark wärmeentwickelnder Substanzen ist vor allem die Temperatureinwirkung auf das Wirtsgestein von Interesse. Unabhängig von der Art der Abfälle spielt außerdem die Mobilisierung spezifischer Elemente aus der technischen Barriere (Endlagergebäude) sowie die Immobilität bzw. Fixierung solcher Komponenten innerhalb der geologischen Barriere (Wirtsgestein) eine wichtige Rolle.

Um Analoga für diese endlagerrelevanten Parameter in der Natur untersuchen zu können, müssen die folgenden Fragen beantwortet werden.

- Wo haben in der geologischen Vergangenheit lokal erhöhte Temperaturen auf Salzgesteine eingewirkt?
- Welche Elemente eignen sich zur Untersuchung der Mobilisierung und Immobilisierung von Radionukliden?
- Welche natürlichen Verbindungen können diese spezifischen Elemente fixieren?

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

- Welche Rolle haben die fluiden Phasen bei Mineral-Neubildungen und -Umbildungen gespielt?
- Wie verhalten sich die Gesteine gegenüber der längerfristigen Einwirkung gesättigter Salzlösungen bei lokal erhöhten Temperaturen?

Als natürliche Analoga für die Einwirkung erhöhter Temperaturen auf Evaporitgesteine werden am Fachgebiet Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien der TU Clausthal die Basaltvorkommen in den Salzgesteinen des Werra-Fulda-Lagerstättenbezirkes untersucht. Der vorliegende Text gibt eine Übersicht über die bisher durchgeführten Untersuchungen und beinhaltet Fragen der Mobilisierung spezifischer Elemente und Elementgruppen aus den basaltischen Gesteinen. Deren teilweise stark verglaste Matrix kann als natürliches Analogon für verglaste radioaktive Abfälle dienen (z.B. Lutze et al. 1985), wobei die Zusammensetzung je nach Basalttyp und Grad der Rekristallisation in weiten Grenzen variiert (Tabelle 1).

Tabelle 1 Haupt- und Nebenkomponten im „nuclear waste glass“ R7T7 (nach Abdelouas et al. 1993) im Vergleich zu basaltischen Gläsern aus untertägigen Basaltvorkommen im Kontakt zu Evaporiten. Die basaltischen Gläser (43 Meßpunkte in 9 unterschiedlichen Basaltproben) enthalten mikrokristalline Phyllosilikate (Rekristallisation); Angaben Massenanteile in %; k.A., keine Angabe; n.g., nicht gemessen.

Element	R7T7	Basaltglas
SiO ₂	45,5	43 - 52
TiO ₂	k.A.	1 - 5
ZrO ₂	2,7	n.g.
Al ₂ O ₃	4,9	12 - 28
B ₂ O ₃	14,0	-
ΣFe als Fe ₂ O ₃	2,9	5 - 21
MgO	k.A.	4 - 16
CaO	4,0	4 - 15
Na ₂ O	9,9	1 - 4
K ₂ O	k.A.	0 - 1

Nebenbestandteile der eigentlichen, wasserlöslichen Salzgesteine sind immer auch Quarz und Schichtsilikate wie Talk oder Illit, Chlorit und Koenenit (4NaCl·4(Mg,-Ca)Cl₂·5Mg(OH)₂·4Al(OH)₃). Ein wesentlicher Punkt bei den im folgenden erläuterten Untersuchungen zur Mobilisierung bzw. Fixierung bestimmter Elemente ist die getrennte Betrachtung von wasserlöslichen Mineralen wie beispielsweise Halit (NaCl), Sylvin (KCl) oder Carnallit (KMgCl₃·6 H₂O) und den wasserunlöslichen Verbindungen. Die Ergebnisse lassen sich teilweise auch auf Fragen der Untertage-Deponie nichtradioaktiver Abfälle

übertragen. Die Tabelle 2 informiert über Elemente, die durch ihr vergleichbares geochemisches Verhalten als natürliche Analoga für die Mobilisierung bzw. Immobilität von Radionukliden aus radioaktiven Abfällen unter Endlagerbedingungen dienen können.

Tabelle 2 Einige wichtige Nuklide aus Wiederaufarbeitungsabfällen eines Druckwasserreaktors und Elemente, die durch ihr vergleichbares geochemisches Verhalten und ihr vergleichsweise häufiges Auftreten in Gesteinen als natürliche Analoga genutzt werden können (vergl. Brookins 1984). Die Verfestigung der Abfälle wird im vorliegenden Beispiel (nach Daemgen 1980) 7 Jahre nach Entnahme des Brennstoffs aus dem Reaktor durchgeführt. Deutlich wird die wichtige Rolle der Lanthanoiden (fett gedruckt). Zusätzlich sind für die Analog-Elemente ihre durchschnittlichen Anteile in Basalt und kontinentalem Tonschiefer angegeben (Turekian & Wedepohl 1961). Der mittlere chemische Stoffbestand der wasserunlöslichen Minerale in Evaporiten bzw. der Salztone entspricht mit Ausnahme der Mg- und Fe-Anteile einer mittleren Tonschieferzusammensetzung (vergl. Brammer 1992). Für die wasserlösliche Mineralfraktion der Evaporite existieren praktisch keine Meßwerte. Mit Ausnahme von Rb und Sr liegen die Konzentrationen der aufgeführten Elemente teilweise mehr als 5 Größenordnungen unter den für Basalten und Tonschiefer angegebenen Werten.

	Nuklide	Massenanteil in % im Wiederaufarbeitungsabfall	Analog-Elemente	Analog-Element [µg/g] in	
				Basalt	Tonschiefer
	Rb	1,08	Rb, K	30, 8300	140, 26600
	Sr	2,55	Sr, Ca	465, 76000	300, 22100
	Y	1,47	Y	21	26
	Zr	11,79	Zr	140	160
	Mo	10,97	Mo	1,5	2,6
	Tc	2,65	Mo	1,5	2,6
	Ru	6,86	Mo	1,5	2,6
	Cs	7,44	Cs, Rb	1, 30	5, 140
	Ba	5,48	Ba	330	580
Lanthanoiden	La	4,01	La	15	92
	Ce	7,85	Ce	48	59
	Pr	3,78	Pr	4,6	5,6
	Nd	13,04	Nd	20	24
	Sm	2,82	Sm	5,3	6,4
	Eu	0,56	Eu	0,8	1
	Gd	0,45	Gd	5,3	6,4
Actinoiden	U	5,54	U	1	3,7
	Pu	0,11	Th	4	12
	Am	1,48	Nd	20	24
	Cm	0,07	Nd	20	24

Basalte in Evaporiten

Die Kontaktbereiche zwischen magmatischen Gesteinen und angrenzenden Evaporiten sind ein natürliches Analogon für die Auswirkungen lokal erhöhter Temperaturen im Salzgestein, wie sie auch am Kontakt zu Gebinden mit wärmeproduzierenden Abfällen auftreten. Solche Vorkommen wurden weltweit nur von wenigen Lokalitäten beschrieben:

- Tertiäre Basaltgänge in den tertiären Evaporiten des Oberrheingebietes (z.B. Braitsch et al. 1964). Diese Vorkommen sind wegen Aufgabe des Bergbaus heute nicht mehr zugänglich.
- Permisch-triassische Basaltdecken über kambrischen Evaporiten in der Sibirischen Plattform (GUS; z.B. Grishina et al. 1992).
- Gangförmige tertiäre Alkali-Olivin-Basalte in den permischen Evaporiten der Salado Formation in New Mexico (USA; z.B. Brookins 1981).
- Basalte in kreidezeitlichen Evaporiten des Khorat-Plateaus in Thailand (z.B. Hite & Japakasetr 1979).
- Vorkommen von rhyolitischen und trachytischen (?) Silikatgesteinen in jurassischen (?) Evaporiten auf der Insel Hormuz im Persischen Golf (Iran; z.B. Jackson et al. 1990).

Ein weltweit einmaliges Vorkommen bezüglich der Vielzahl von Intrusivgängen, die ein Studium der Wechselwirkungen mit dem Nebengestein erlauben, sind jedoch die großflächig untertage aufgeschlossenen flachgelagerten Evaporite des Werra-Fulda-Lagerstättenbezirktes mit den darin auftretenden Basaltgängen (Bild 3). In diesem Gebiet sind vor 14 bis 25 Millionen Jahren etwa 1150°C heiße Basaltmagmen in Salzgesteine mit einer Gebirgstemperatur um 50°C eingedrungen (Knipping 1984, Knipping & Herrmann 1985, Knipping 1987a, 1987b, 1989, 1991). Die Intrusion der fluidreichen Schmelzen erfolgte entlang vorgezeichneter tektonischer Streiffelder in der Erdkruste durch Prozesse, die als „hydro fracturing“ (z.B. Shaw 1980) bezeichnet werden.

Der Kontakt der teilweise stark verglasten Basalte zum Steinsalz verläuft häufig gradlinig, wobei makroskopische Wechselwirkungen mit dem Halitgestein auf einen Bereich von 1 bis 2 cm beschränkt sind (Bild 4). Da Kalisalzgesteine, wie beispielsweise Carnallit, auf erhöhte Temperaturen und ungesättigte wäßrige Lösungen besonders empfindlich reagierenden, kam es im Bereich der Kalisalzgesteine zu dm bis m mächtigen Aufweitungen der Gänge (Bild 5). Die laterale Aufweitung eines Basaltes kann im Bereich der Kalisalzflöze im Einzelfall einige 10er m rechts und links der Zufuhrspalte erreichen (z.B. Dietz 1928). Der weitaus größte Teil der in den 80er Jahren von uns eingehend beprobten Gänge ist heute auf Grund des fortgeschrittenen Abbaus nicht mehr zugänglich.

Die mineralogisch-petrographische und geochemische Charakterisierung der Basalte ergab, daß es sich um Olivin-Nephelinite, Basanite, glasreiche Basanite (Limburgite) und Phonolith-Tephrite handelt. In einigen Fällen enthalten die Basalte noch Fragmente von Erdmantelgestein. Modellrechnungen zur fraktionierten Kristallisationsdifferentiation unter Verwendung von Elementverteilungskoeffizienten ergaben, daß die untersuchten Basalte teilweise gering differenzierte Schmelzen aus dem oberen Erdmantel repräsentieren, die nicht mit Material aus der Erdkruste kontaminiert sind (Knipping 1989). Das bedeutet, daß

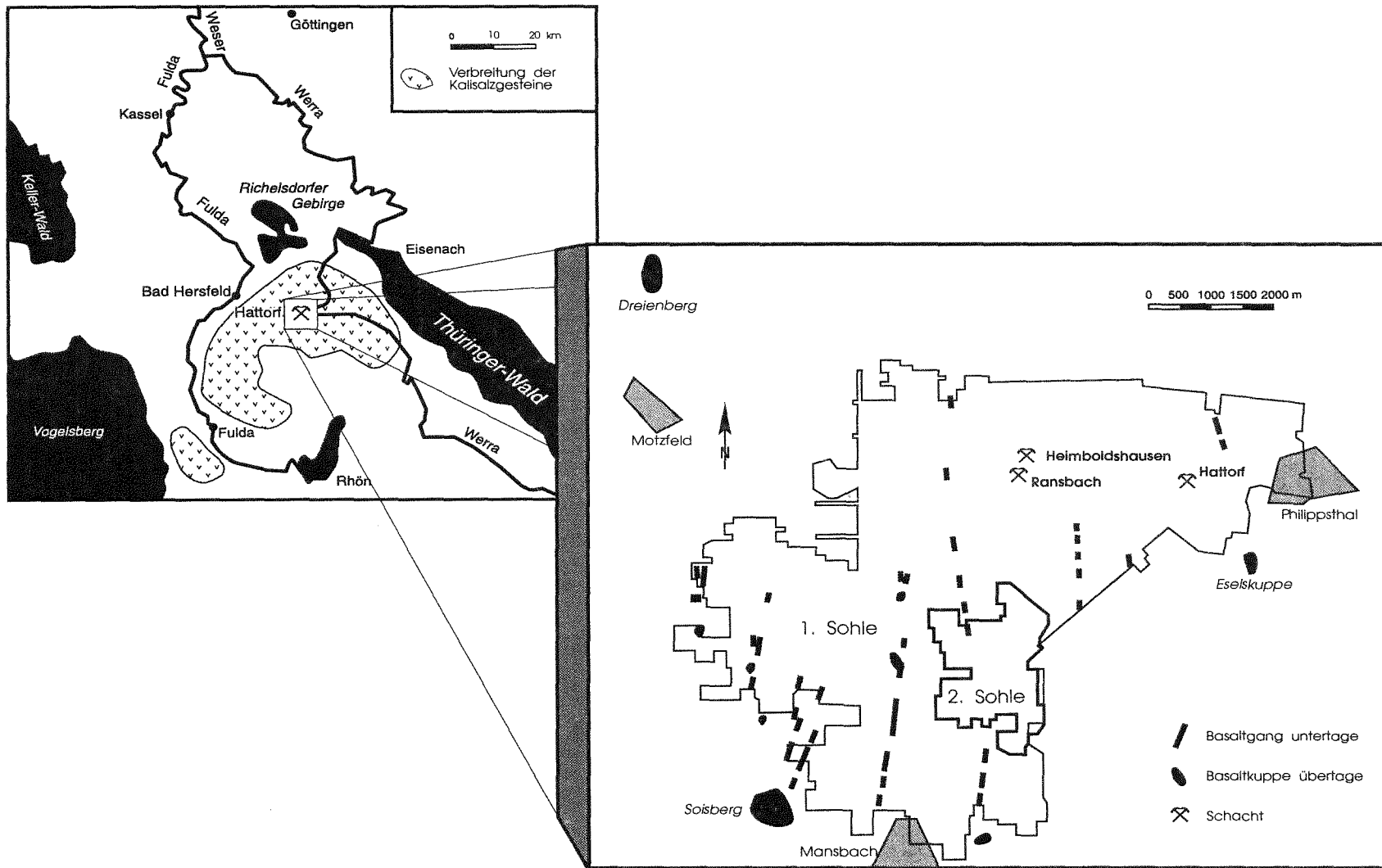


Bild 3 Der Werra-Fulda-Lagerstättenbezirk. Als Beispiel für das Auftreten der Basalte in dieser Region sind die Abbaugrenzen des Werkes Hattorf der Kali und Salz AG (Stand 1989) mit den dort vorkommenden Basaltgänge skizziert.

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

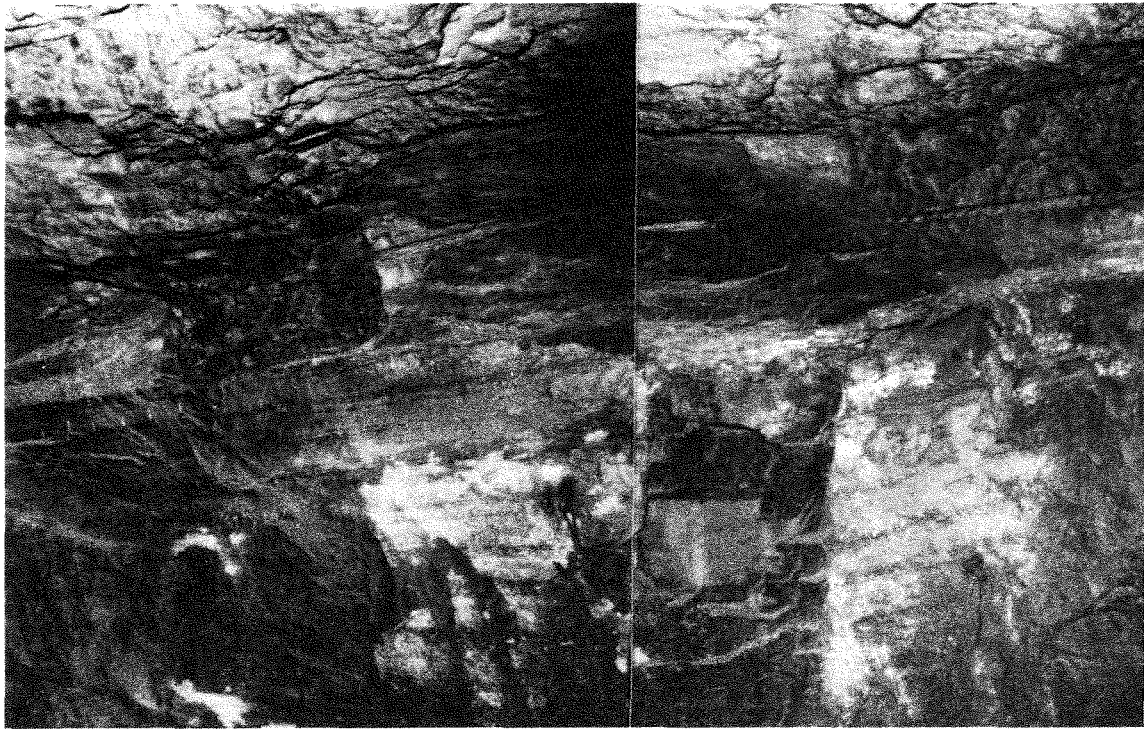


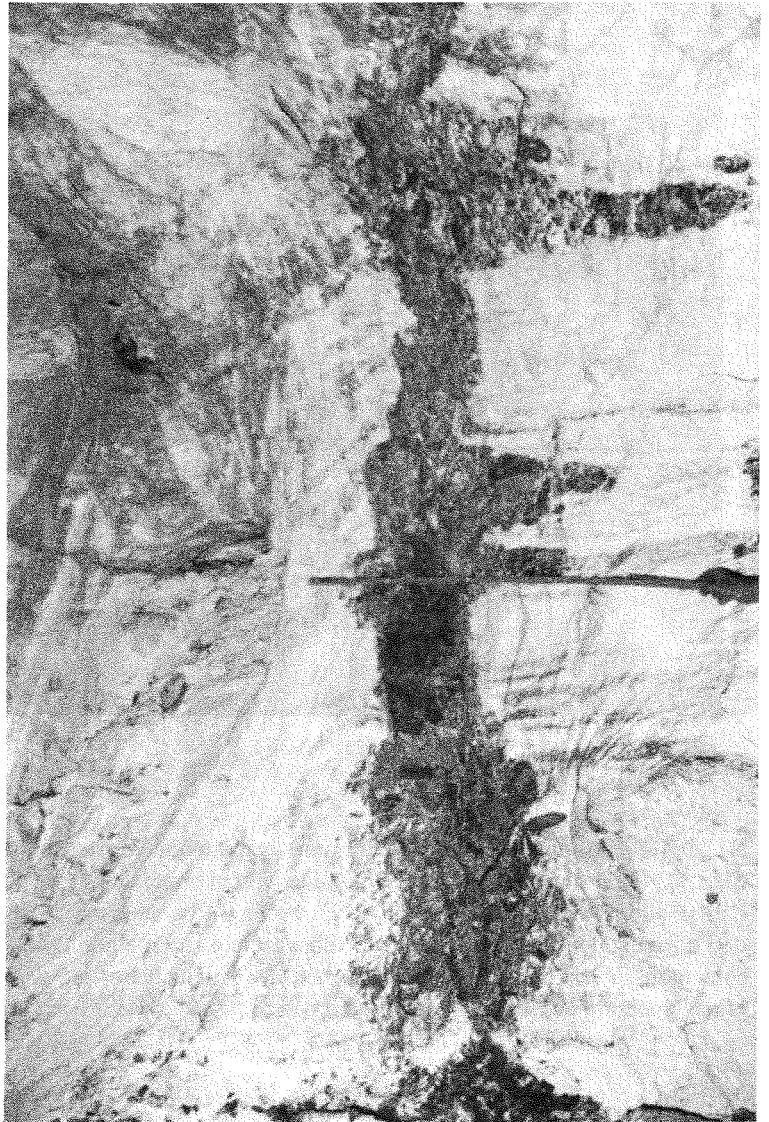
Bild 4 Basaltgang (Olivin-Nephelinit) im unteren Werra-Steinsalz ($\text{NaI}\alpha$), Werk Hattorf der Kali und Salz AG (Brammer 1992, Wolf 1992,). Der 50 cm breite Gang ist von waagrecht und senkrecht verlaufenden Rissen durchsetzt. Diese enthalten neben wenig Carbonaten vor allem Anhydrit (CaSO_4) und Halit (NaCl). An den horizontalen dunklen Lagen im Nebengestein ist eine geringfügige vertikale Verschiebung der Steinsalzschiechten zu erkennen. Eine Besonderheit des Aufschlusses ist, daß im Niveau einer Tonschicht eine flache Überschiebung den Basaltgang um einen Betrag von etwa 60 cm tektonisch versetzt.

der Aufstieg der Magmen aus dem Erdmantel aus Tiefen von mehr als 75 km innerhalb von Stunden oder Tagen erfolgte (z.B. Scarfe et al. 1980).

Durch Kristallisationsdifferentiation ist es in anderen Fällen auch zur Anreicherung beispielsweise von volatilen Phasen (z.B. H_2O , CO_2) gekommen. Dies zeigt sich im Auftreten von kristallwasserhaltigen Amphibolen in einigen Basaniten, die sich in Basalten nur unter erhöhtem hydrostatischen Druck bilden können.

Die Schmelzen sind meist in den Salzgesteinsschichten steckengeblieben und dort in Form von dm bis m mächtigen Gängen erstarrt. Dadurch war die Entgasung der Magmen behindert, so daß die mobilen Phasen auch in den Evaporitgesteinen wirksam werden konnten. Nur an wenigen Stellen sind die Magmen bis an die Erdoberfläche ausgetreten und haben dort Basaltkuppen gebildet.

Bild 5 Basaltgang (Limburgit) mit horizontalen Verbreiterungen im Bereich des Kalisalzflözes Hessen (K1Th), Werk Hattorf der Kali und Salz AG (aus Knipping 1989). Wie im Bild 4 sind auch hier die mit Salzmineralen verheilten Schrumpfrisse im Basalt zu erkennen.



Räumliche und zeitliche Temperaturverteilung am Kontakt Basalt/Steinsalz

Selbst mikroskopisch relativ frische Basaltproben weisen am Kontakt zum Nebengestein im Zentimeterbereich eine verglaste Zone auf. Ähnliche Beobachtungen werden auch an untermeerischen Magmenextrusionen („Pillow-Laven“) gemacht. Im Ganginneren sind größere Kristalle häufig angereichert (Pyroxene, Hornblenden). In vielen Proben besteht die Grundmasse zu einem größeren Teil, in den Limburgiten praktisch vollständig aus Gesteinsglas. Das Magma wurde während der Intrusion durch eine Temperaturdifferenz zwischen basaltischer Schmelze und Nebengestein von mehr als 1000°C offensichtlich „abgeschreckt“.

Für die im Kontaktbereich Basalte/Evaporite wirksam gewesenen Temperaturen gab es bisher nur Annahmen und Schätzungen. Bei der Betrachtung von Mineralreaktionen und Stofftransporten in wässrigen Lösungen und Gasen am Kontakt sind jedoch die Reaktions-

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

temperaturen von grundsätzlicher Bedeutung. Aus diesem Grunde wurde der Versuch unternommen, mit einem numerischen Rechenmodell die räumliche und zeitliche Temperaturverteilung im Steinsalz nach der Intrusion basaltischer Schmelzen zu berechnen (Knipping 1987a, 1987b, 1989, 1991). Dabei wurden die beteiligten fluiden Phasen zunächst nicht berücksichtigt.

An einem Beispiel sollen die Rechenergebnisse erläutert werden (siehe Bild 6). Nach der Intrusion der Schmelzen erreichte die Temperatur am Kontakt eines 1 m breiten Basaltganges zum Steinsalz maximal 790°C. Dabei ist zu berücksichtigen, daß die Schmelztemperatur von Halit 801°C beträgt (D'Ans et al. 1967). Daten über die Schmelztemperatur von Steinsalz (Halit + Anhydrit, Halit + Polyhalit usw.) stehen leider nicht zur Verfügung. 30 Tage nach dem Eindringen der Basaltschmelzen betrug die Temperatur am Kontakt der inzwischen zu Basalt erstarrten Schmelze noch etwa 400°C, nach einem Jahr war sie auf < 100°C abgesunken (Knipping 1989, 1991).

Wie die Modellrechnungen gezeigt haben, dürfen die Begriffe Intrusionstemperatur und Kontakttemperatur keinesfalls gleichwertig verwendet werden. Die Temperatur beträgt unmittelbar nach der Intrusion am Kontakt zum Nebengestein nur etwas mehr als die Hälfte der Intrusionstemperatur der Silikatschmelze. Der Maximalwert der Kontakttemperatur erreicht gerade 70 % der Intrusionstemperatur.

Bei Überlegungen zu Aufschmelzerscheinungen von Steinsalz am Kontakt Basalt/Salzgestein muß zwischen Salzgesteinsbruchstücken, die von der Silikatschmelze während der Intrusion mitgerissen wurden, und dem Halit am Salband der Basaltgänge unterschieden werden. Die vergleichsweise kleinen Halit-Xenolithe werden von der Silikatschmelze allseitig umschlossen. Da im Inneren der Basaltgänge aufgrund der latenten Wärme die Temperatur längere Zeit auf gleicher Höhe bleibt, könnten auf solche Steinsalzstücke unter Schmelzen des Halits durchaus Temperaturen von deutlich mehr als 800°C eingewirkt haben. Andere Bedingungen herrschten an der Kontaktfläche der Basalte zum Nebengestein. Hier blieb die Temperatur wegen der Wärmeabfuhr in das aus Steinsalz bestehende Nebengestein selbst bei der Annahme reiner Wärmeleitung unter 800°C und das NaCl wurde nicht aufgeschmolzen. Daraus folgt, daß das Schmelzen von Steinsalz ein nur lokal zu beobachtender Prozeß gewesen sein dürfte.

Bisher waren die Temperaturberechnungen beschränkt auf Steinsalz als Nebengestein der Basaltgänge. Außerdem geht das Rechenmodell von einer „trockenen“ Intrusion aus. Da dem Temperatúrausbreitungsmodell somit die reine Wärmeleitung ohne die Berücksichtigung der Wärmeausbreitung über fluide Phasen zu Grunde liegt, handelt es sich bezüglich der Maximaltemperaturen um einen „konservativen“ Rechenansatz. Zur Zeit wird mit Hilfe von wesentlich erweiterten numerischen Modellen im Rahmen einer Dissertation in Zusammenarbeit mit Ingenieurwissenschaftlern an der TU Clausthal an der Berechnung der Intrusionsmechanismen der basaltischen Magmen gearbeitet.

Mineralreaktionen und Stofftransporte in den Evaporiten am Basaltkontakt

Am Kontakt der Basalte zum Nebengestein, speziell zu den Kalisalzgesteinen, sind in vielen Fällen Aufweitungen der Basaltkörper zu Lagergängen, Lösungs- und vor allem Gaseinschlüsse in den Salzgesteinen, Mineralneubildungen, Volumenänderungen der Kalisalzflöze

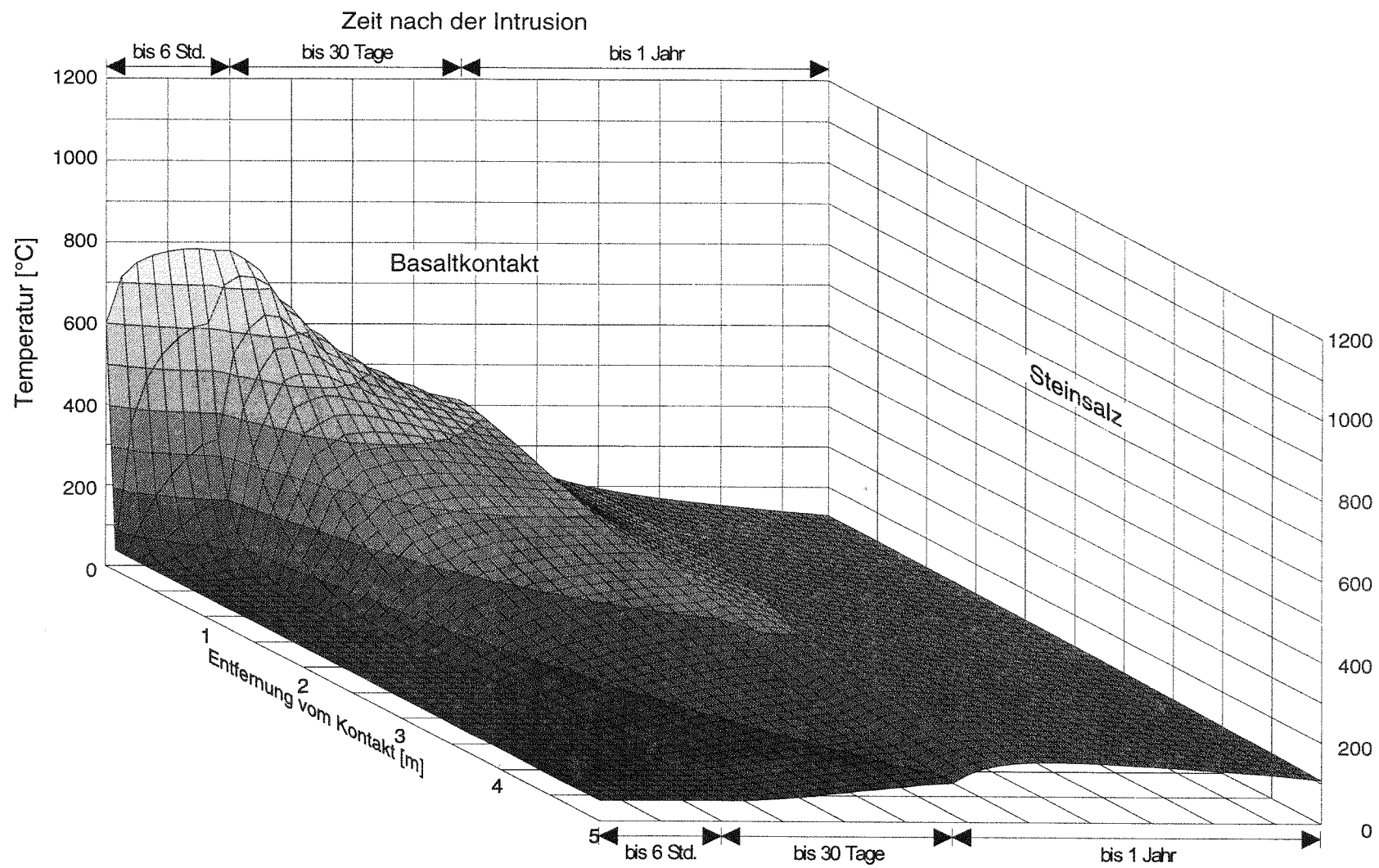


Bild 6 Kontakttemperatur und Temperaturfeld im Steinsalz an einem 1 m mächtigen Basaltgang bis 1 Jahr nach der Intrusion (nach Knipping 1989, 1991).

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

sowie zum Teil großflächige Vertaubungen zu beobachten. Durch mineralogische Untersuchungen und geochemische Modellrechnungen an einem Kontakt Basalt/Carnallit konnte gezeigt werden, daß die in der Nachbarschaft der Basaltgänge feststellbaren Mineralreaktionen und Stofftransporte auf Wechselwirkungen fluider wäßriger Phasen mit den Evaporitgesteinen zur Zeit des aktiven Vulkanismus zurückzuführen sind (Knipping 1984, Knipping & Herrmann 1985). Eine durch die hohen Temperaturen ausgelöste thermische Zersetzung von Salzmineralen ließ sich dagegen nicht eindeutig nachweisen. Das heißt, daß vor allem die wäßrigen Lösungen - zum Teil unter erhöhten Temperaturen - den Stoffbestand von Basalten und Salzgesteinen beeinflußt haben.

In der Natur treten „trockene“ Basaltmagmen nicht auf. Die primären Wasseranteile häufiger basaltischer Schmelzen dürften bei etwa 1 % liegen (z.B. Muenow et al. 1979, Byers et al. 1985). Da nur wenige Gänge im Werra-Gebiet an der Erdoberfläche austreichen und es sich teilweise um differenzierte Gesteine handelt, haben sich mobile Magmenbestandteile (z.B. H_2O , CO_2) sowie möglicherweise wäßrige Lösungen aus liegenden Schichten im Bereich der untertage erstarrten Schmelzen angereichert.

Mineralreaktionen und Stofftransporte können vor allem in den Kalisalzflözen durch den Vergleich der mineralogischen und chemischen Zusammensetzung des Evaporitgesteins am Basaltkontakt mit unbeeinflussten Gesteinspartien nachgewiesen werden. Im Gegensatz dazu sind in den Steinsalzschiechten Wechselwirkungen zwischen den mobilen Bestandteilen und dem Salzgestein nur im Zentimeterbereich wirksam gewesen. Diese Beobachtung erklärt sich durch die unterschiedliche temperaturabhängige Löslichkeit der K-Mg-Mineralen verglichen mit NaCl. Im System NaCl- H_2O steigt die Löslichkeit beispielsweise zwischen 50 und 100°C nur geringfügig an. Im System NaCl-KCl- $MgCl_2$ - H_2O nimmt dagegen die Löslichkeit von KCl und vor allem von $MgCl_2$ mit steigender Temperatur stark zu (Bild 7). Im Temperaturgefälle werden aus solchen Lösungen auch Minerale neugebildet. Quantitative Berechnungen einiger der in Bild 7 dargestellten Prozesse finden sich z.B. bei Knipping (1984), Knipping & Herrmann (1985) sowie in anderem Zusammenhang bei Herrmann & Knipping (1989, 1993a).

Umwandlungsbereiche in Kalisalzgesteinen können untertage laterale Ausdehnungen zwischen wenigen cm bis > 100 m haben. Ob diese Mächtigkeitsschwankungen auch vom Typ des eingedrungenen Basalts abhängig sind, ist noch nicht abschließend geklärt.

Bei der Vertaubung bzw. Umkristallisation der Kalisalzgesteine ist im Werra-Gebiet am Kontakt zu einigen Basaniten ein Teil der Salzgesteine durch Lösungen weggeführt und durch elementaren Schwefel ersetzt worden. Die Massen Schwefel reichen dabei von feinen Imprägnationen der Salzgesteine (Bild 8) bis zu deren vollständigem Ersatz durch gediegenen Schwefel. Wie Isotopenuntersuchungen gezeigt haben, handelt es sich hierbei um Schwefel aus dem oberen Erdmantel mit $\delta^{34}S$ -Werten von durchschnittlich -2,5 ‰. Eine Reduktion von Sulfatmineralen kommt dagegen nicht in Betracht, denn diese Minerale weisen alle für Schwefel aus dem Zechstein typische $\delta^{34}S$ -Werte von etwa 10 ‰ auf (Knipping 1986, 1987, 1991).

Ein Teil der die basaltischen Schmelzen begleitenden Gasgemische (überwiegend CO_2 , vergl. Tabelle 3) ist bei der Um- und Neubildung von Salzmineralen in den Kalisalzflözen in Hohlräumen auf Spalten und in Form von mikroskopisch kleinen Einschlüssen in Salzmineralen (Knistersalz) fixiert worden (Diskussion bei Knipping 1989). Die mineralgebun-

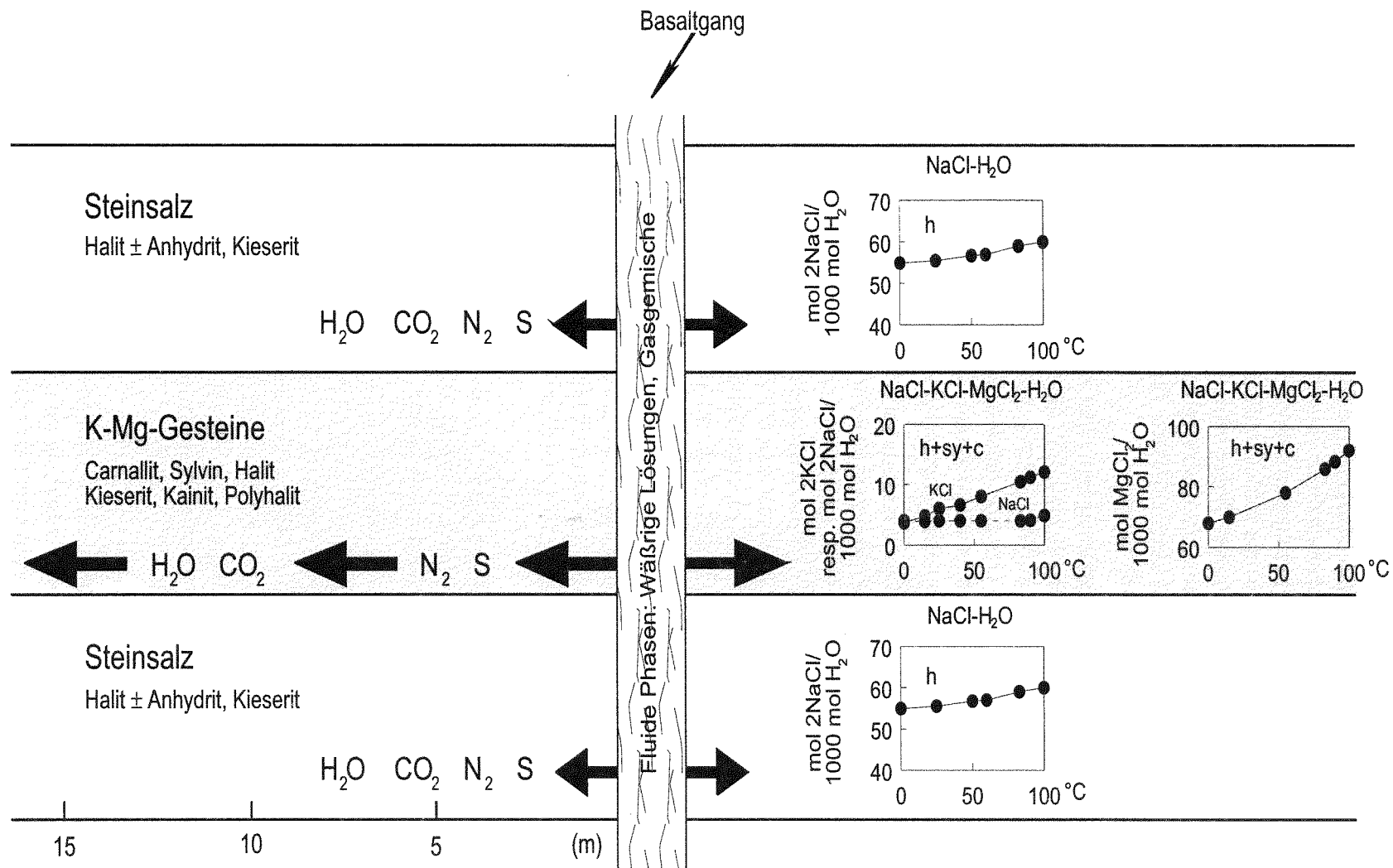


Bild 7 Einwirkung fluiden Phasen des Basaltvulkanismus auf Evaporite unterschiedlicher chemischer Zusammensetzung (nach Herrmann & Knipping 1993a).

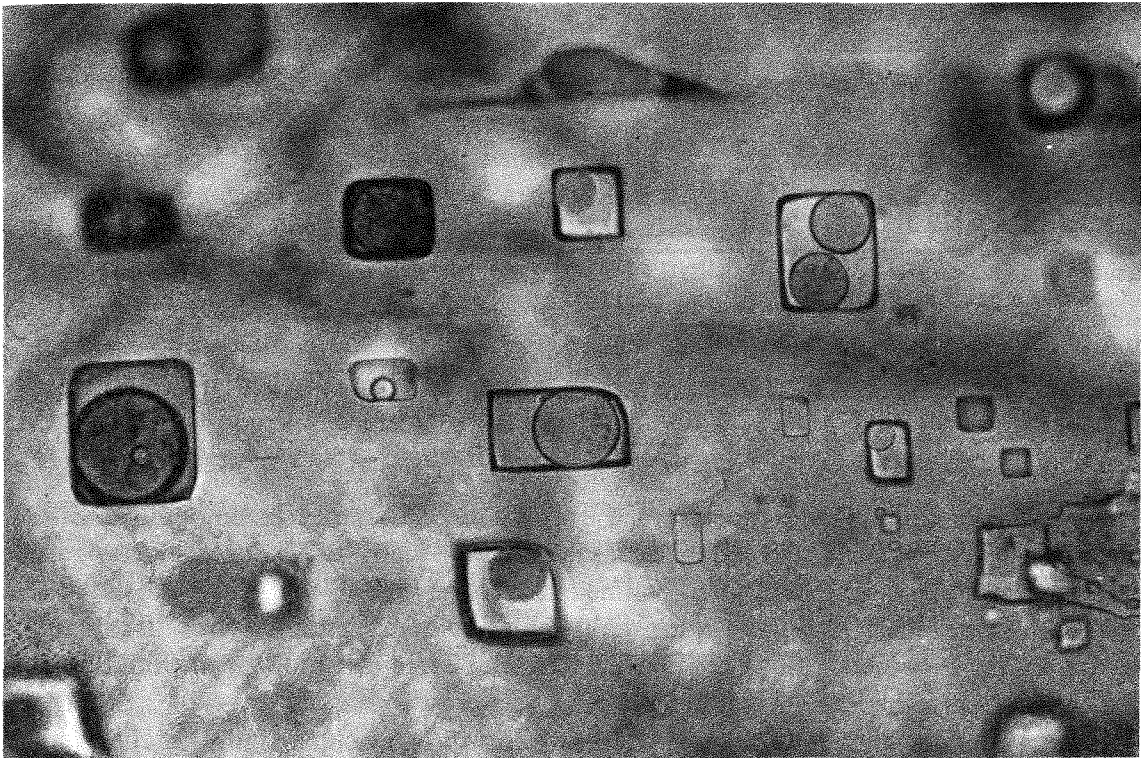


Bild 8 Fluideinschlüsse in Halit etwa 1 m vom Kontakt Basalt (Phonolit-Tephrit)/Kaliföz Hessen (K1H). Die Einschlüsse (Kantenlänge etwa 30 μm) enthalten amorphen Schwefel als Bodenkörper (Foto von Frau Dr. S. Grishina).

denen Gase in einzelnen Einschlüssen mit Durchmessern $> 250 \mu\text{m}$ stehen nach neuen Untersuchungen unter einem Druck von bis zu 25 MPa (250 bar; z.B. v. Borstel 1991). Mit einer speziell entwickelten Präparationstechnik gelang es, an den mineralgebundenen Gasen $\delta^{13}\text{C}$ -Isotopenuntersuchungen durchzuführen (Knipping 1989). Auch der Kohlenstoff des CO_2 stammt danach mit $\delta^{13}\text{C}$ -Werten von etwa -7‰ aus dem oberen Erdmantel.

Am Fachgebiet Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien ist es mit einer neuen Technik (beschrieben z.B. bei Herrmann et al. 1991, Knipping & Türck 1993) erstmals gelungen, die Zusammensetzung fluider Phasen miozäner Basalte aus einzelnen Flüssigkeitseinschlüssen in Halit vom Basaltkontakt quantitativ zu bestimmen. Es handelt sich dabei um vorwiegend NaCl-dominierte Lösungen. Die Li- und Br-Anteile der untersuchten Lösungen liegen in allen Analysen unter der Bestimmungsgrenze der verwendeten ionenchromatographischen Methode (Tabelle 3; Knipping & Türck 1993). Die Wirtskristalle der untersuchten Fluideinschlüsse weisen $< 20 \mu\text{g Br/g Halit}$ auf (Rühe 1994). In dem Probenahmenniveau enthält das unveränderte Na α jedoch 190 bis 240 $\mu\text{g Br/g Halit}$ (Wolf 1992). Diese Befunde stützen die Aussage, daß die beobachteten Mineralreaktionen auf eine Zufuhr von fluiden Phasen während des aktiven Vulkanismus zurückzuführen sind.

Tabelle 3 Schwankungsbreite des Stoffbestandes 8 einzelner Fluid Inclusions im Halit am Basaltkontakt, Werk Wintershall der Kali und Salz AG, unteres Werra-Steinsalz (Na1 α), Querort 190, Revier 7. Die Br und Li-Werte liegen unter der Bestimmungsgrenze der verwendeten Methode (aus Rühle 1994). Auffällig ist die kleinräumig inhomogene Zusammensetzung.

	[Mol/1000 Mol H ₂ O]					[μ g/g]		[g/cm ³]
	NaCl	KCl	MgCl ₂	MgSO ₄	CaSO ₄	Li	Br	Dichte
Minimum	67,4	1,91	2,07	0,67	0,29	-	-	1,174
Maximum	99,7	6,84	4,80	4,29	0,55	-	-	1,228
Mittelwert	79,9	4,56	3,69	2,93	0,39	-	-	1,186

Mit der Laser-Raman-Mikrospektrometrie wurde die Zusammensetzung einiger Gaseinschlüsse in Halitkristallen vom Kontakt Basalt/Steinsalz analysiert. Die Auswertung ergab als Hauptkomponente CO₂ mit untergeordneten Anteilen von N₂ und CH₄ (Tabelle 3). Die Auswertung weiterer Messungen an Einschlüssen mit einem Durchmesser < 30 μ m zeigte, daß diese CO₂ teilweise in flüssiger Form enthielten (Dr. S. Grishina, pers. Mitteilung). In solchen Einschlüssen tritt häufig noch eine Libelle aus gasförmigem CO₂ auf, deren Bewegungen bei Zimmertemperatur unter dem Mikroskop zu beobachten sind. Um eine Vorstellung von den erforderlichen Mindestdrücken in den Einschlüssen zu bekommen, müssen der kritische Druck (P_{krit}) sowie die kritische Temperatur (T_{krit}) von CO₂ herangezogen werden. Danach ist bei < 31,04 °C (T_{krit}) im Einschluß ein Druck von etwa 7 Mpa (70 bar; P_{krit}) notwendig, damit CO₂ in flüssiger Form vorliegt.

Tabelle 4 Zusammensetzung der Gasphase in 5 einzelnen Fluid Inclusions in 2 Halitproben vom Basaltkontakt, Werk Wintershall der Kali und Salz AG. Probe 1: oberes Werra-Steinsalz (Na1 γ , erstes Begleitflöz), Querort 166/167, Abbau 1, Revier 7; Probe 2: wie Probe 1, jedoch aus 2 cm mächtigem Kainithorizont; Analysen: Dr. C. Reutel.

	Stoffmengenanteile in % (Mol-%)				
	Probe 1-1	Probe 1-2	Probe 1-3	Probe 4-1	Probe 4-2
CO ₂	97,7	97,9	97,6	97,0	97,2
N ₂	2,1	2,0	2,1	2,7	2,6
CH ₄	0,2	0,2	0,3	0,3	0,2

In der Vergangenheit wurde der Migration von Flüssigkeitseinschlüssen im Salzgestein im Zusammenhang mit der Endlagerung wärmeproduzierender Abfälle einige Beachtung geschenkt (z.B. Holdoway 1974, Jenks 1979, Roedder & Belkin 1979, 1982, Rischbieter et al. 1980, Krause 1983, Schlich 1986). Durch Löslichkeitsunterschiede in den Einschlußlösungen findet im Temperaturgradienten eine Bewegung in Richtung zur Wärmequelle statt.

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

Verschiedentlich wurde darauf hingewiesen, daß im Fall von größeren Gasanteilen in den Einschlüssen auch eine Wanderung der Einschlüsse in entgegengesetzter Richtung stattfinden kann (z.B. Holdoway 1974, Schlich 1986).

Den zitierten Untersuchungen ist gemeinsam, daß aufgrund der geringen Geschwindigkeiten nur der Bereich bis maximal 10 m vom Kontakt Wärmequelle/Salzgestein betrachtet werden konnte. So betrug die durchschnittliche Migrationsgeschwindigkeit in < 5 cm Abstand von der Wärmequelle beispielsweise 0,57 cm/Jahr in einer Gesteinszone, in welcher ein Temperaturgradient von 0,5°C gemessen wurde (Krause 1983). Dies entspricht einer Migrationsgeschwindigkeit von 100m in 17500 Jahren unter den genannten Bedingungen. Die Migrationsmechanismen gesättigter wäßriger Salzlösungen in Fluid Inclusions im Temperaturgradienten am Kontakt zu Abfallcontainern sind daher praktisch nur mit Hilfe natürlicher Analoga zu untersuchen.

Trotz teilweise erheblich höherer Temperaturdifferenzen wurde eine Migrationen von Fluid Inclusions, die bereits vor einem Intrusionsereignis in den Salzgesteinen der Salado-Formation in New Mexico eingeschlossen waren, nur bis zu maximal 10 m vom Kontakt beobachtet (z.B. Loehr 1979, Brookins 1981, 1986). Bisher konnte für einen Aufschluß im Werra-Gebiet bestätigt werden, daß die im Nebengestein vorhandenen Fluideinschlüsse nur im unmittelbaren Nahbereich der Basalte durch Temperatureinwirkung beeinflusst worden sind (Wolf 1992).

Aus diesen Informationen ist zu schließen, daß die Lösungseinschlüsse bei der Beurteilung der Sicherheit eines möglichen Endlagers wärmeproduzierender Abfälle nicht vernachlässigt werden dürfen. Der Effekt der Anreicherung von gesättigten wäßrigen Lösungen an den Wandungen der Container durch Fluidmigration ist jedoch sicherlich auf Gesteinsbereiche von wenigen m begrenzt. Bei möglichen Reaktionen zwischen den Fluid Inclusions im Halit und den im Steinsalz befindlichen Abfallgebunden mit stark wärmeentwickelnden Abfällen sind somit keine Auswirkungen in Bereichen außerhalb des Evaporitkörpers (Nebengestein, Deckgebirge) und auch nicht in der 800 bis 1000 m oberhalb des potentiellen Endlagers befindlichen Biosphäre zu erwarten. Systematische Untersuchungen müssen zeigen, ob sich diese Befunde an weiteren Proben bestätigen lassen. Weiterhin soll betont werden, daß bezüglich des Volumens und somit der potentiellen Wechselwirkungen mit den Abfallcontainern die in der Größenordnung von cm^3 bis $> 1000 \text{ m}^3$ im Salzgebirge auf Spalten und in Hohlräumen eingeschlossenen „freien“ Gebirgslösungen eine andere Qualität haben (Herrmann & Knipping 1993b; siehe auch Beitrag Herrmann).

Ein weiteres Phänomen am Kontakt Basalt/Evaporite ist die Anreicherung von neugebildeten Sulfatmineralen wie Anhydrit (CaSO_4), Polyhalit ($\text{K}_2\text{MgCa}_2(\text{SO}_4)_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$), Langbeinit ($\text{K}_2\text{Mg}_2(\text{SO}_4)_3$) oder Kainit ($\text{KMgClSO}_4 \cdot 2,75\text{H}_2\text{O}$). Auch Borminerale wurden beobachtet (z.B. Braitsch et al. 1964). Nach Untersuchungen von Gutsche (1987) sowie Gutsche & Herrmann (1988) ist der Polyhalit möglicherweise nicht aus einer echten Lösung seiner Komponenten, sondern aus einer Suspension gebildet worden. Die Sulfatkomponente dieser neugebildeten Minerale hat $\delta^{34}\text{S}$ -Werte von etwa 10 ‰ (Knipping 1986, 1989). Dies sind typische Werte für Zechstein-Sulfate. Die Herkunft der für die Mineralneubildung notwendigen Kationen ist bisher noch nicht abschließend geklärt. Weitere Hinweise auf die Mechanismen der Mineralneubildungen am Kontakt zum Basalt kann möglicherweise die Untersuchung der Kationenisotope (z.B. Ca, B) ergeben. Hierzu wurden Untersuchungen in

Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. K. Mengel in Hannover aufgenommen. Die Ergebnisse könnten zusätzlich weitere Hinweise auf die Herkunft der an den Umbildungen beteiligten H₂O-Komponente geben.

Während der Abkühlung haben sich in den basaltischen Gesteinen Schrumpfrisse gebildet, die vorwiegend mit neugebildetem NaCl zukristallisiert sind. Dieser Halit kann nicht aus einer Salzschnmelze, sondern nur aus einer Lösung (Restlösung des Basaltvulkanismus) kristallisiert sein. Die genauen Vorgänge zur Bildung dieser Rißfüllungen bedürfen noch einer Klärung durch ergänzende Untersuchungen.

Als Zwischenergebnis läßt sich festhalten, daß ein Teil der fluiden Phasen der vor 14 bis 25 Millionen Jahren intrudierten Magemen, und zwar sowohl Lösungen als auch Gasgemische, in den umgebildeten Salzgesteinen unter hohem Druck fixiert worden sind und heute für direkte Untersuchungen zur Verfügung stehen. Dennoch ist die geologische Integrität der Salzlagerstätte bis heute erhalten geblieben, denn die Abdichtung der Evaporite gegen die liegenden und hangenden Gesteinsschichten ist nicht beeinträchtigt. Die bisher durchgeführten Arbeiten sind ein erster Schritt zur genaueren Charakterisierung der Reaktionsbedingungen, deren Kenntnis zur Anwendung der geologischen Prozesse als natürliche Analoga für wärmeproduzierende Abfälle notwendig ist.

Ein Teil der Gase und, wie Modellrechnungen gezeigt haben, auch erhebliche Mengen der an den Reaktionen beteiligten Lösungen ist aus dem Salzgebirge abgewandert (z.B. Herrmann 1981, Knipping 1984, Knipping & Herrmann 1985). Massenbilanzrechnungen auf der Grundlage der stabilen Lösungsgleichgewichte mariner Evaporite ermöglichen es, die im Zuge einer Basaltintrusion eingedringende Lösungsmenge für eine bestimmte Gesteinsmasse sowie deren Volumenänderung bei der Umbildung abzuschätzen (Knipping 1994, in Vorbereitung; siehe auch Knipping & Herrmann 1985, Herrmann & Knipping 1993a). Eine solche Lösung könnte nicht nur über den Porenraum der Gesteine, sondern auch über Schnitte und Spalten Wärme abgeführt und auch mobilisierte Komponenten transportiert haben.

Mobilisierung und Immobilität spezifischer Komponenten

Die Beanspruchung der Silikatverbindungen der Basalte durch hohe Temperaturen und konzentrierte Salzlösungen hat meist nicht zu einer weitreichenden Zersetzung des gesamten Basaltgesteins geführt. Mineralumbildungen und Mineralneubildungen lassen sich vor allem auf den Kontaktflächen des Basalts zum Steinsalz und wenige Zentimeter in den Basalt hinein beobachten. Dabei handelt es sich auf den Kontaktflächen sowie auch in Mandelhohlräumen im Basalt zunächst um neugebildete Carbonate, die auf die Zersetzung der Silikatminerale zurückzuführen sind. Außerdem kristallisierte neben Hämatit und Zeolithen vor allem Anhydrit und Halit. In dem basaltischen Glas haben sich durch Rekristallisation weiterhin Smektite gebildet. Nähere Untersuchungen zu den Mineralneubildungen in der verglasten Matrix werden zur Zeit in Zusammenarbeit mit Dr. Bernotat, Institut für Nukleare Entsorgungstechnik der KfK durchgeführt.

Wichtig im Zusammenhang mit der Untersuchung natürlicher Analoga ist die Frage, ob bei diesen Prozessen der ursprüngliche chemische Stoffbestand der Minerale am Umwandlungsort verblieben ist, oder ob bestimmte Komponenten mobilisiert worden sind. Mit

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

anderen Worten: Haben für spezifische Elemente geochemisch signifikante Stofftransporte stattgefunden oder nicht?

Die im folgenden vorgestellten Befunde unserer Arbeiten über die Basalte wurden jeweils am Gesamtgestein gewonnen. Eine getrennte Bearbeitung speziell der basaltischen Gläser ist sinnvoll, da sie ein noch besseres Analogon für verglaste wärmeproduzierende Abfälle darstellen. Einige der vorgestellten Untersuchungen lassen sich jedoch aus meßtechnischen Schwierigkeiten nicht oder nur teilweise an der Glasfraktion getrennt von den im Basalt vorhandenen Kristallen durchführen. Dies betrifft beispielsweise die Messung der Lanthanoidenelemente mit der Mikrosondentechnik. Dennoch sind Aussagen zum Verhalten spezifischer Elemente unter den oben geschilderten Bedingungen - erhöhte Temperatur, erhöhter Druck, Beteiligung von Gasgemischen und gesättigten Lösungen - möglich.

In Bild 9 ist das Verhalten einiger Elemente im Profil über einen Olivin-Nephelinit-Körper im Carnallitit des Kalisalzflöztes Thüringen skizziert. P_2O_5 und Pb sind (unter Berücksichtigung des Maßstabes) als Beispiele für Komponenten aufgeführt, deren Konzentrationen keine signifikante Änderung über das Profil durch den Basaltkörper zeigen. Zunächst fällt jedoch das gegenläufige Verhalten des Fe(II) und des Fe(III) auf. Während am Kontakt zum Nebengestein durch das Abschrecken der Basaltschmelze offensichtlich ein primäres Fe_2O_3/FeO -Verhältnis „eingefroren“ wurde, ist in der langsamer kristallisierenden Mitte des Ganges die Oxidation der Eisenkomponente durch die fluiden Phasen weiter fortgeschritten.

Das Na/K-Verhältnis wechselt von > 1 in der Mitte des Ganges zu < 1 am Kontakt zum Salzgestein. Dieser Befund ist bemerkenswert, da das Magma in ein Gestein mit hohen NaCl-Anteilen eingedrungen ist. Das durch seine Größe schlecht in Silikatstrukturen fixierbare Na-Ion wird offensichtlich in einer mobilen Phase aus dem Basalt weggeführt. Im Gegensatz dazu wird das K in der Kontaktzone im Basaltglas durch die Neubildung von Phyllosilikaten angereichert (z.B. Staudigel & Hart 1983, Wedepohl 1988). Dieses natürliche Analogon ist beispielsweise in Anbetracht von etwa 10 % Na (Massenanteile) in dem in Tabelle 1 aufgeführten Abfallglas R7T7 möglicherweise von Bedeutung.

Verschiedentlich wurde die Elementmobilisation in untermeerisch ausgetretenen Basalten untersucht (z.B. Mottl & Holland 1978, Mottl et al. 1979, Seyfried & Mottl 1982, Allen 1982, Lutze et al. 1985, Grambow et al. 1985). Die Ergebnisse, die auch im Zusammenhang der Beschäftigung mit natürlichen Analoga publiziert wurden, stimmen nur teilweise mit den hier vorgestellten Befunden überein. So wird in allen zitierten Arbeiten eine Anreicherung von Mg im Basalt durch den Einbau in neugebildeten Smektiten und eine Verarmung an Ca, welches zum Teil auf den Kontaktflächen als Anhydrit wieder kristallisiert, beschrieben. Während das Na aber in Abhängigkeit von den experimentellen Bedingungen oder vom Typ des Silikatgesteins mobilisiert und weggeführt werden kann, gibt es auch Bedingungen, unter denen Na wieder fixiert wird. Leider sind die Angaben über die mineralogische und auch chemische Zusammensetzung der untersuchten Basalte häufig mangelhaft. Dadurch ist es nicht möglich, das unterschiedlichen Verhalten der untersuchten Komponenten fundiert zu interpretieren, so daß die Untersuchungen wissenschaftlich wertlos sind. An dieser Stelle muß nochmals betont werden, daß eine geochemische Interpretation von Elementverteilungen in Evaporitgesteinen bzw. zwischen Basalten und deren Nebengestein aus

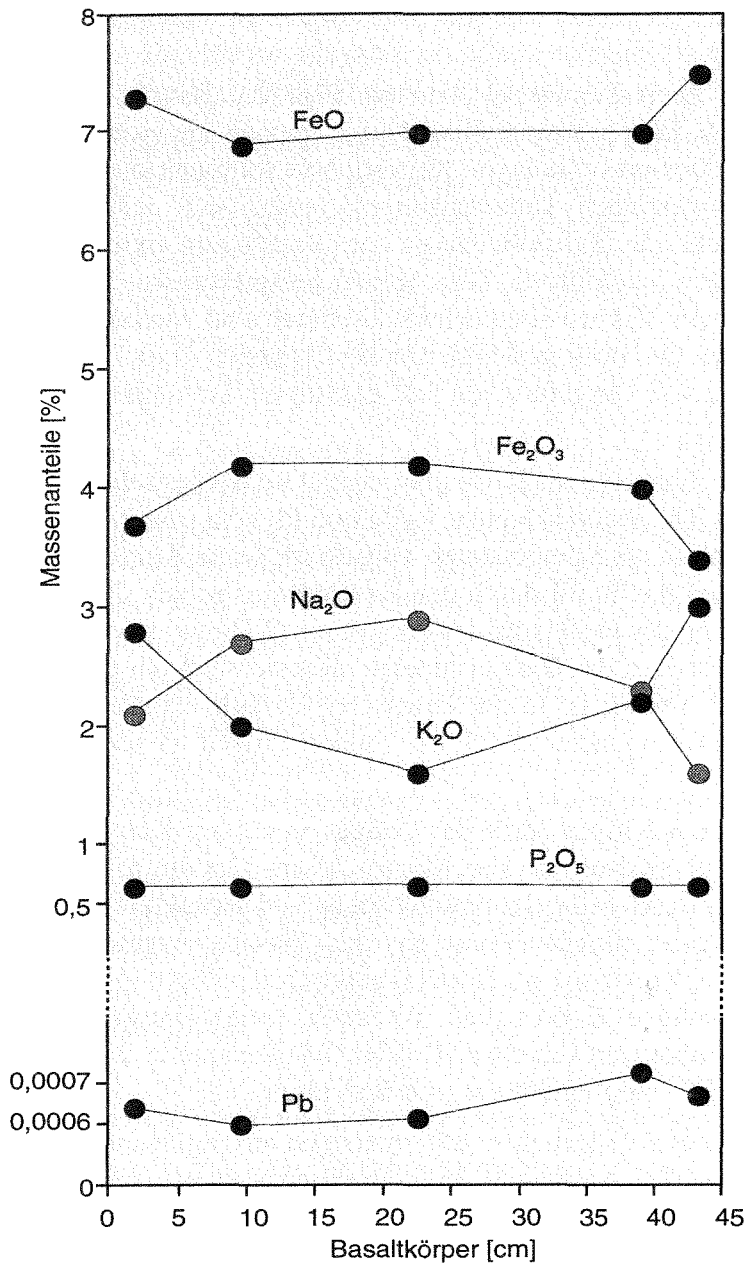


Bild 9 Verteilung einiger Komponenten im Profil über einen Basaltkörper (Olivin-Nephelinit) aus dem KITH, Werk Hattorf der Kali und Salz AG (nach Knipping 1984, Knipping & Herrmann 1985, Peters 1985).

geowissenschaftlicher Sicht nur auf der Grundlage fundierter lagerstättenkundlich-mineralogischer Daten und Kenntnisse erfolgen kann.

Sieben Jahre nach der Entnahme aus einem Druckwasserreaktor setzen sich mehr als 25 % der Nuklide in hochradioaktiven verfestigten Wiederaufarbeitungsabfällen aus Lanthanoidenelementen zusammen (siehe Tabelle 2). Das Verhalten dieser Elementgruppe unter natürlichen Bedingungen stellt daher ein wichtiges natürliches Analogon dar. Im Profil über den erwähnten Basaltkörper (Olivin-Nephelinit) zeigt sich die Immobilität dieser Elementgruppe im Basalt unter den oben geschilderten Bedingungen erhöhter Temperatur, erhöhtem

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

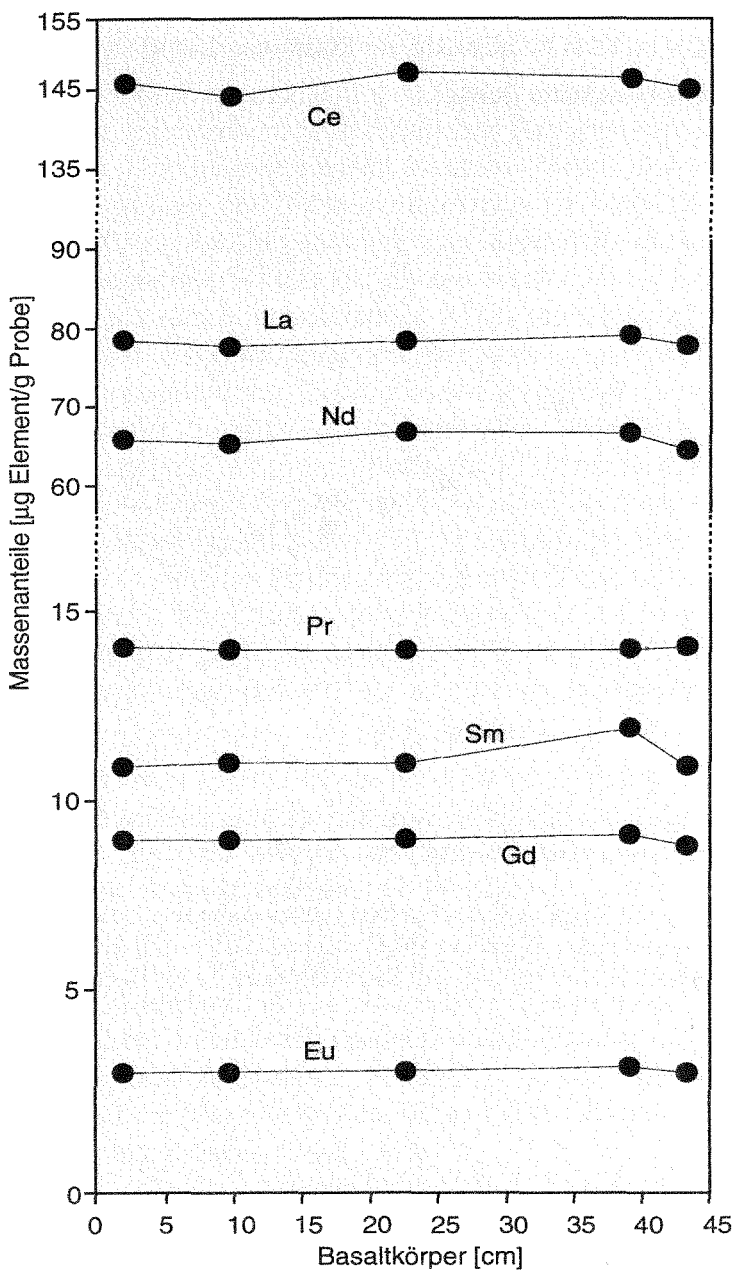


Bild 10 Vergleich der Anteile einiger Lanthanoiden (siehe Tabelle 2) im Profil über einen Basaltkörper (Olivin-Nephelinit) aus dem KITH, Werk Hattorf der Kali und Salz AG (vergl. Bild 9; Analysen: Dr. A. Stascheit). Die Lanthanoiden zeigen keine signifikanten Konzentrationsunterschiede.

Druck sowie Beteiligung von Gasmischungen und gesättigten Lösungen an Mineralreaktionen (Bild 10). Die gleiche Aussage gilt für das nach Tabelle 2 in wiederaufgearbeiteten Reaktorabfällen mit etwa 1,5 Massenanteilen in % vorhandene Element Y. Dieser Befund wird gestützt durch den Vergleich mit anderen Olivin-Nepheliniten aus der nördlichen Hessischen Senke, die zeitlich den gleichen Intrusionsereignissen zuzuordnen sind. Die Lanthanoidenverteilungen dieser verschiedenen Lokalitäten stimmen weitgehend überein (Bild 11).

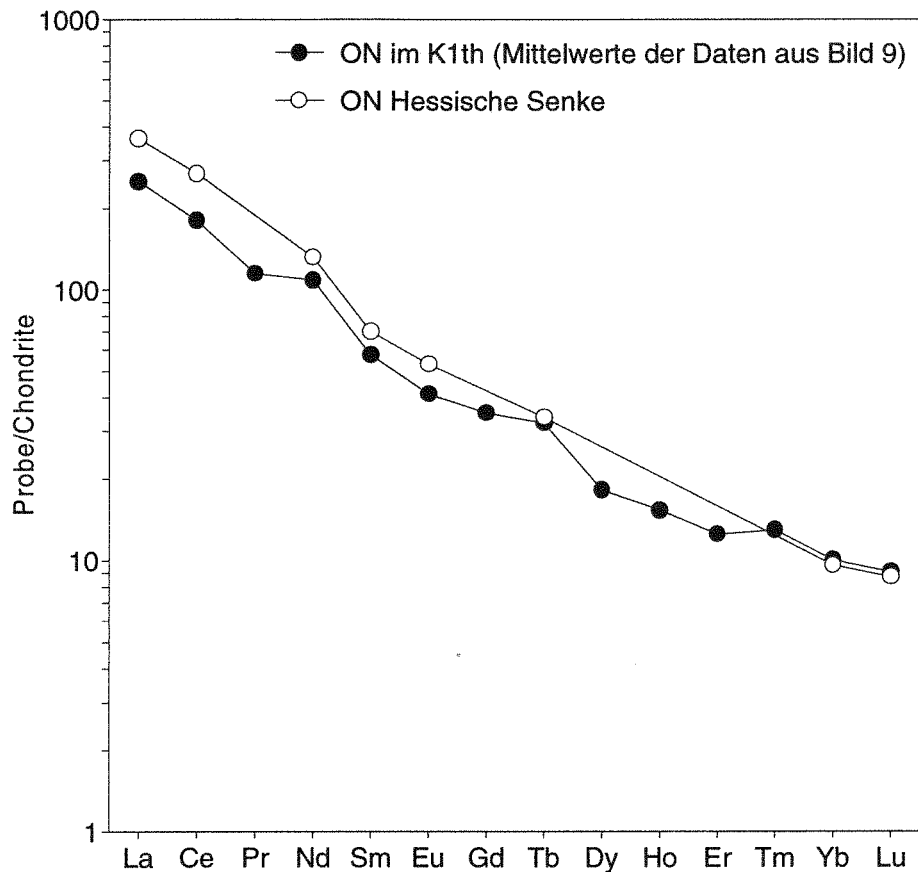


Bild 11 Vergleich der auf Chondrite normierten Verteilung der absoluten Lanthanoidenanteile in den Olivin-Nepheliniten (ON) der nördlichen Hessischen Senke (Wedepohl 1983) zu einem Olivin-Nephelinitkörper im Kontakt zum Kaliflöz Thüringen, K1Th, Werk Hattorf der Kali und Salz AG. Werte für die Chondrite aus Boynton (1984).

Am gleichen Basaltkörper sind die Pb-Anteile beiderseits des Kontakts im Nebengestein (Carnallit) angereichert (Peters 1985). Während eine Fixierung des Pb in den wasserlöslichen Mineralen nicht eindeutig festgestellt werden konnte, ist eine Anreicherung dieses Elements in den wasserunlöslichen Mineralen am Basaltkontakt zu beobachten. Als mögliche Quelle für die erhöhten Metallgehalte in der wasserunlöslichen Mineralfraktion der Salzgesteine kommen die mobilen Begleitphasen des Basalts in Form der wässrigen Lösungen und Gase in Betracht. Eine Herkunft der Metallanteile aus dem basaltischen Gestein ist nicht nachweisbar, denn der anstehende Olivin-Nephelinit enthält ähnliche Elementanteile (5 bis 6 $\mu\text{g Pb/g}$ Basalt) wie entsprechende Vergleichsgesteine aus der nördlichen Hessischen Senke (Wedepohl 1983). Außerdem läßt sich keine deutliche Änderung der Metallgehalte vom Innern des Basaltkörpers zum Kontakt mit den angrenzenden Evaporitgesteinen hin feststellen (vergl. Bild 9). Bisher gibt es kaum Angaben über die Pb-Anteile in den mobilen Begleitphasen von Basalten. Wichtig für die Nutzung als natürliches Analogon ist

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

jedoch der Befund, daß das Element Blei in der wasserunlöslichen Mineralfraktion der Evaporite offensichtlich fixiert werden kann.

In diesem Zusammenhang sind daher neben den Basalten bzw. den basaltischen Gläsern und den eigentlichen, wasserlöslichen Salzgesteinen ebenso die wasserunlöslichen Minerale der Evaporitgesteine von Interesse. Neben den teilweise klüftigen Anhydritschichten stellen Salztone und Tonlagen innerhalb der Evaporitkörper bevorzugte Wegsamkeiten für fluide Phasen dar. Der ursprüngliche Mineralbestand der wasserunlöslichen Mineralfraktion einer tonreichen Schicht im unteren Werra-Steinsalz ($\text{NaI}\alpha$; siehe Bild 4) wurde im Kontaktbereich durch intrudierendes olivin-nephelinitische Magma und die begleitenden fluiden Phasen erheblich verändert. Bis etwa 15 cm vom Kontakt treten Smektitite auf, die dann in ein smektitisches Wechsellagerungsmineral übergehen. Weiterhin sind neugebildete Minerale der Zeolithgruppe zu beobachten (Wolf 1992). Die Konzentration der chemischen Haupt-, Neben- und Spurenbestandteile ist mit dem chemischen Stoffbestand des angrenzenden Basaltes zu vergleichen, obwohl bei der Untersuchung des mineralogischen Stoffbestandes dieser Proben nur etwa 2 % basaltisches Glas nachgewiesen werden konnte (Brammer 1992). Ab einer Entfernung von etwa 50 cm findet sich wieder der ursprüngliche Mineralbestand Chlorit, Illit, Quarz, Kalifeldspat und Magnesit in den Tonlagen. Offensichtlich ist der ursprüngliche chemische Stoffbestand des Basaltes bzw. des basaltischen Glases in den Alterationsprodukten, wie beispielsweise den Smektiten, erhalten geblieben.

Am Kontakt links von diesem Basaltgang fand Wolf (1992) eine Anreicherung der Na_2O -Anteile von 0,2 % bis auf etwa 0,8 % (Bild 12). Offenbar kann auch das mobile Na (siehe Bild 9) beispielsweise in den neugebildeten Zeolithen wieder fixiert werden. Im Rahmen der gleichen Arbeit wurde unter anderem auch eine Anreicherung der P_2O_5 -Komponente am Kontakt gefunden (Bild 12). P_2O_5 scheint mobiler zu sein als das Na_2O , denn erhöhte P_2O_5 -Anteile sind in der Tonlage bis zu 10 m vom Kontakt zu finden. P_2O_5 liegt offensichtlich sorptiv gebunden vor, denn P_2O_5 -Mineralphasen konnten nicht gefunden werden. Die Herkunft der erhöhten Anteile ist noch nicht geklärt, zumal beispielsweise im Profil über den anderen Basaltaufschluß aus dem K1Th keine signifikanten Abweichungen in der P_2O_5 -Konzentration beobachtet wurde (Bild 9). Auch für K_2O wurden in Kontaktnähe erhöhte Werte gefunden, die mit einer Umkristallisation der Illite unter Fixierung des K zusammenhängen (Wolf 1992).

Direkt am Kontakt, wo sich alteriertes Basaltmaterial findet, ist die Lanthanoidenverteilung praktisch mit der des Basalts identisch. Die absolute und relative Verteilung der Lanthanoiden wurde offensichtlich in den Strukturen der neugebildeten Smektitite bzw. smektitischen Wechsellagerungsminerale fixiert. In größerer Entfernung vom Kontakt entspricht die Verteilung dagegen der eines Tonschiefers (Brammer 1992; Bild 13). Die fluiden Phasen der Basaltintrusion haben trotz der erhöhten Temperaturen praktisch keine Veränderung der Lanthanoidenverteilung der wasserunlöslichen Mineralfraktion bewirkt. Dieser Befund für die als natürliche Analoga wichtigen Lanthanoidenelemente bestätigt die Aussage zur weitgehenden Immobilität dieser Elementgruppe, die schon für das Basaltmaterial im Innern eines Ganges getroffen wurde (siehe Bild 10).

Auch die absoluten und relativen Lanthanidenanteile der wasserunlöslichen Minerale aus Bereichen, die nicht vom Basaltvulkanismus beeinflusst wurden (z.B. aus dem Salzstock Gorleben), zeigen meist keine signifikanten Abweichungen von der Lanthanoidenvertei-

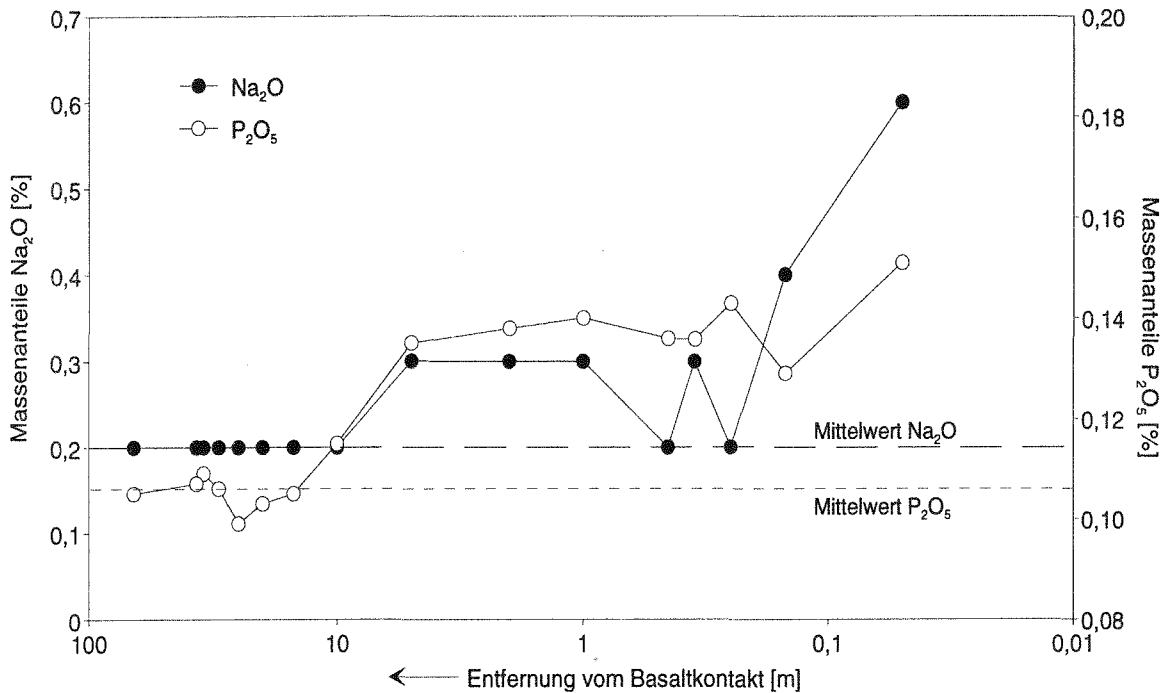


Bild 12 Verteilung der Na₂O- und P₂O₅-Anteile in den wasserunlöslichen Mineralen im Profil einer tonreichen Schicht links vom Kontakt eines Olivin-Nephelinites (siehe Bild 4). Zusätzlich sind die Mittelwerte für die beiden Komponenten in vom Basalt unbeeinflussten Proben angegeben (nach Wolf 1992).

lung durchschnittlicher kontinentaler Tonschiefer (Brammer 1992). Dies gilt offensichtlich selbst dann, wenn die Gesteine durch Lösungsmetamorphose verändert worden sind. Dieser Befund, daß unter der Einwirkung gesättigter wäßriger Lösungen auf Silikatstrukturen bestimmte Elemente immobil sind, kann auch ein natürliches Analogon für die Deponie bestimmter chemisch-toxischer Abfälle in Salzgesteinskörpern sein.

Die vorgestellten Befunde müssen durch erweiterte Arbeiten an anderen Basalttypen und in unterschiedlich zusammengesetzten Evaporitgesteinen abgesichert werden. Diese Untersuchungen sollen den Versuch einer Korrelation zwischen Art und Ausmaß der Stofftransporte mit Art und Menge der fluiden Phasen beinhalten.

Zusammenfassung und Relevanz der untersuchten natürlichen Analoga

Am Fachgebiet Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien, Institut für Mineralogie und Mineralische Rohstoffe der TU Clausthal wurden als natürliche Analoga für die Endlagerung wärmeproduzierender Abfälle in Salzgesteinen die Auswirkungen von in die Salzgesteinsschichten eingedrungenen basaltischen Schmelzen untersucht. Bei dem Vergleich zwischen der Deponie von stark wärmeentwickelnden Substanzen in Steinsalzschiechten und der Einwirkung basaltischer Schmelzen auf Steinsalz ist zu berücksichtigen, daß im erstgenannten Fall durch den radioaktiven Zerfall die Wärmequelle viel länger wirksam ist als bei

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

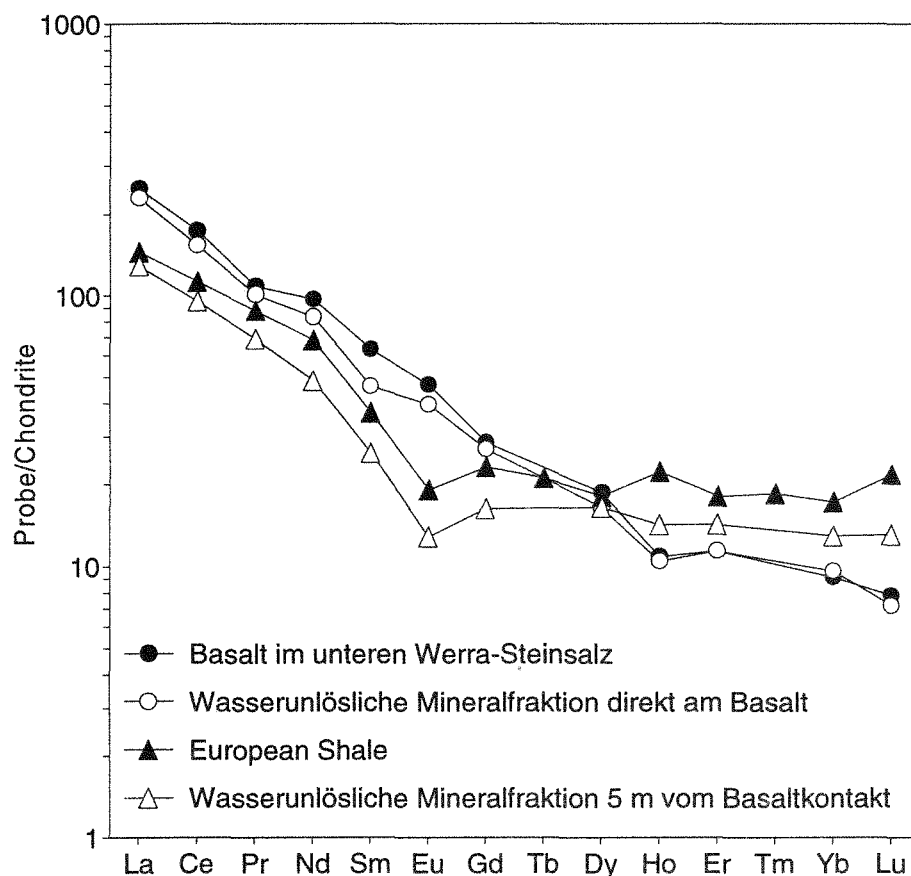


Bild 13 Die chondritnormierte Lanthanoidenverteilung der wasserunlöslichen Mineralfraktion eines tonreichen Horizontes am Basaltkontakt (Olivin-Nephelinit) im unteren Werra-Steinsalz (NaI α) im Vergleich zur Lanthanoidenverteilung des Basalts (Brammer 1992) und kontinentalem Tonschiefer (European Paleozoic Shale Composition, Haskin & Haskin 1966). Werte für die Chondrite aus Boynton (1984).

der Abkühlung eines vergleichsweise kleinen Basaltkörpers in einer Salzlagerstätte. Zudem sind die zur Fixierung der Radionuklide vorgesehenen Materialien einer erheblichen Strahlenexposition ausgesetzt. Unberührt von diesem Unterschieden bleibt jedoch die Feststellung einer weitgehenden Immobilität für spezifische Elemente in Silicatverbindungen unter dem Einfluß fluiden Phasen bei hohen Temperaturen.

Erste Berechnungen der am Kontakt Basalt/Salzgestein wirksam gewesenen Temperaturen vermitteln Vorstellungen über die maximal wirksam gewesenen Temperaturen, die 790°C nicht überschritten haben. Weiterhin zeigt sich, daß Wechselwirkungen zwischen fluiden Phasen und dem für die Errichtung von Abfalldeponien relevanten Steinsalz auf Gesteinsbereiche von wenigen Zentimetern Ausdehnung begrenzt sind. Dabei spielt die Mobilisation gesättigter wäßriger Lösungen aus Fluid Inclusions wahrscheinlich keine so große Rolle, wie bisher angenommen wurde. Während Elemente wie Na und P unter den gegebenen Bedingungen relativ leicht aus dem Basalt mobilisierbar zu sein scheinen, gilt z.B. für die als natürliche Analoga wichtige Gruppe der Lanthanoidenelemente, daß sie

trotz der Mineralreaktionen und Stofftransporte wenig mobil sind. Durch das Studium des Stoffbestandes natürlicher Analoga konnte also festgestellt werden, daß bestimmte in einer Silicatmatrix (Glas oder Kristalle) fixierte Elemente auch bei großen Temperaturgradienten von mehreren einhundert Grad Celsius - 5fach höher als am Kontakt von Abfallbehältern mit stark wärmeentwickelnden Substanzen - und gleichzeitiger Einwirkung fluider Phasen (konzentrierte Salzlösungen und Gase) ein deutlich immobiles Verhalten zeigen. Teilweise können auch mobile Elemente (Beispiel Na und P) in der wasserunlöslichen Mineralfraktion der Evaporite durch Einbau in die Struktur neugebildeter Minerale oder durch Sorptionseffekte wieder fixiert werden. Anders als bei der Fixierung der fluiden Phasen des Basaltmagmatismus beispielsweise in Form von Fluid Inclusions in den wasserlöslichen Mineralen spielen die Salzminerale bei der Fixierung mobilisierter Elemente nur eine untergeordnete Rolle.

Die Basaltschmelzen sind zwar teilweise bis in das Deckgebirge (Buntsandstein) der Werra-Folge aufgestiegen und an der Erdoberfläche ausgetreten. Die Evaporitgesteine der Werra-Folge wurden dabei aber nicht in die darüber liegenden Gesteinsabfolgen und offensichtlich auch nicht bis an die Erdoberfläche mitgerissen. Heute, mehr als 10 Millionen Jahre später (vergl. Bild 2), sind trotz der „explosionsartigen“ Vorgänge bei der Einwirkung des tertiären Basaltmagmatismus auf die Evaporitschichten und trotz nachfolgender mechanischer Beanspruchung der Lagerstätte (siehe z.B. Bild 4) nach Beobachtungen in den Kalibergwerken die Salzgesteine gegenüber dem Deckgebirge und auch an den Kontakten der Basaltgänge praktisch durchgehend abgeschlossen von fluiden Phasen (wäßrige Lösungen) aus dem Hangenden. Durch die vorgestellten Untersuchungen erweist sich die pauschale Aussage, daß Salz allein auf Grund seiner Wasserlöslichkeit für die Errichtung von Deponien radioaktiver Abfälle ungeeignet sei (z.B. Grimmel 1988), als wissenschaftlich unhaltbare Behauptung.

Die Ergebnisse der vorgestellten grundlegenden Untersuchungen bestätigen dagegen den Wert natürlicher Analoga für Aussagen zur Langzeitsicherheit von Endlagern anthropogener Abfälle. Im Rahmen weiterführender Arbeiten werden von uns natürliche Analoga für die Auswirkungen von plötzlichen mechanischen Spannungen, von Temperaturen und von fluiden Phasen auf die Integrität eines Salzvorkommens auch in Zukunft genauer untersucht.

Anerkennung

Für diesen Beitrag wurde vor allem auf Ergebnisse von Arbeiten zurückgegriffen, die am Fachgebiet Salzlagern und Untergrund-Deponien des Instituts für Mineralogie und Mineralische Rohstoffe der TU Clausthal durchgeführt wurden. Mein Dank gilt besonders dem Leiter des Fachgebietes, Prof. Dr. A.G. Herrmann sowie Frau Dipl. Min. S. Rühle, Frau Dr. A. Stascheit und den Herren Dr. K. Brammer und Dr. J. Wolf. Frau Dr. S. Grishina, Institute of Geology, Geophysics and Mineralogy in Novosibirsk und Herr Dr. C. Reutel, Firma GeoLink in Göttingen führten dankenswerterweise ramanpektroskopische Messungen an Fluid Inclusions durch. Ein Teil der Arbeiten wurde von der Deutschen Forschungsgemeinschaft sowie von der Forschungsgemeinschaft Explorationsgeophysik e.V. gefördert. Die Kali und Salz AG unterstützte großzügig die Probenahmen, wofür ich besonders den Herren Direktor Dr. K.-Ch. Käding und Dr. W. Beer aufrichtig danken möchte. Sehr dankbar für weitere Probenahmen bin ich Herrn Dipl.-Geol. M. Pippig.

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

Literaturverzeichnis

- Abdelouas, A., Crovisier, J.L., Lutze, W., Bernotat, W. (1993): Hydrotalcite formed by alteration of R7T7 nuclear waste glass and basaltic glass in salt brine at 190°C. – In: Scientific basis for nuclear waste management, Mat. Res. Soc. (in press).
- Allen, C.C. (1982): Stability and alteration of naturally occurring low-silica glasses: Implications for the long term stability of waste from glasses. – In: Scientific basis for nuclear waste management, 5, Mat. Res. Soc. (Elsevier)
- Borstel, L.E. v. (1991): Die Charakterisierung des Stoffbestandes von fluid inclusions in Zechsteinevaporiten mittels der Lösungsgleichgewichte mariner Salzsysteme. – Kali u. Steinsalz, 10: 409-416.
- Boynton, W.V. (1984): Cosmochemistry of the rare earth elements: Meteorite studies. – In: Henderson, P.: Rare earth element geochemistry, p. 63-114, Amsterdam etc. (Elsevier).
- Braitsch, O. (1962): Entstehung und Stoffbestand der Salzlagerstätten. – 232 S., Berlin-Göttingen-Heidelberg (Springer).
- Brammer, K.-J. (1992): Stoffbestand und Lanthanidenverteilung der wasserunlöslichen Mineralfraktion in marinen Zechsteinevaporiten. – 154 S., Dissertation, Technische Universität Clausthal.
- Brookins, D.G. (1981): Geochemical study of a lamprophyre dike near the WIPP site. – In: Moore, J.G. (ed): Scientific basis for nuclear waste management, 3: 307-313, New York (Plenum Press).
- Brookins, D.G. (1984): Geochemical aspects of radioactive waste disposal. – 347p., New York-Berlin-Heidelberg (Springer).
- Brookins, D.G. (1986): Natural analogues for radwaste disposal: elemental migration in igneous contact zones. – Chem. Geol., 55: 337-344.
- Byers, C.D., Garcia, M.O., Muenow, D.W. (1985): Volatiles in pillow rim glasses from Loihi and Kilauea volcanoes, Hawaii. – Geochim. Cosmochim. Acta, 49: 1887-1896.
- Chapman, N., McKinley, I., Shea, M., Smellie, J. (1993): Poos de Caldas: Die Natur experimentiert mit. – NAGRA informiert 1/1993, 53 S., Wettingen, Schweiz (NAGRA).
- D'Ans, J. (1933): Die Lösungsgleichgewichte der Systeme der Salze ozeanischer Salzablagerungen. – 254 S., Berlin (Verlagsgesellschaft für Ackerbau mbH).
- Daemgen, M. (1980): Zur Zusammensetzung und Wärmeproduktion hochaktiver verfestigter Abfälle. – PTB-Bericht SE-3, Braunschweig (Physikalisch Technische Bundesanstalt, jetzt Bundesamt für Strahlenschutz in Salzgitter).
- Dietz, C. (1928): Die Salzlagerstätte des Werra-Kaligebietes. – Archiv für Lagerstättenforschung, H. 40, 129 S., Berlin.
- Garrels, R.M., Mackenzie, F.T. (1971): Evolution of sedimentary rocks. – 397 p., New York (Norton & Company).
- Grambow, B., Jercinovic, M.J., Ewing, R.C., Beyers, C.D. (1985): Weathered basalt glass: A natural analogue for the effects of reaction progress on nuclear waste glass alteration. – Mat. Res. Soc. Symp. Proc., 50: 263-273.
- Grishina, S., Dubessy, J., Kontorovich, A., Pironon, J. (1992): Inclusions in salt beds resulting from thermal metamorphism by dolerite sills (eastern Siberia, Russia). – Europ. J. Miner. 4, No. 5: 1187-1204.
- Gutsche, A. (1987): Mineralreaktionen, Stofftransporte und Stoffbilanzen im Kontaktbereich Basalt-Sylvinit am Beispiel 1. Begleitflöz im Hangenden des Kalisalzflözes Hessen (K1H), Kaliwerk Hattorf. – 118 S., Diplomarbeit, Universität Göttingen.
- Gutsche, A., Herrmann, A.G. (1988): Wechselwirkungen zwischen fluiden Phasen und Evaporiten im Nahbereich von Basaltgängen. – Fortschr. Mineral., 66, Bh. 1: 49.

- Haskin, M.A., Haskin, L.A. (1966): Rare earths in European shales: A redetermination. – *Science*, 154: 507-509.
- Herrmann, A.G. (1983): Radioaktive Abfälle. Probleme und Verantwortung. – 256 S., Berlin-Heidelberg-New York (Springer).
- Herrmann, A.G., Knipping, B. (1989): Stoffbestand von Salzstöcken und Langzeitsicherheit für Endlager radioaktiver Abfälle. – PTB informiert, H. 1/89, 50 S., Braunschweig (Physikalisch-Technische Bundesanstalt, jetzt Bundesamt für Strahlenschutz in Salzgitter).
- Herrmann, A.G., Knipping, B. (1993a): Waste Disposal and Evaporites. Contributions to Long-Term Safety. – Lecture Notes in Earth Sciences, Vol. 45., 193 p., Berlin etc. (Springer).
- Herrmann, A.G.; Knipping, B. (1993b): Fluide Komponenten als Teile des Stoffbestandes der Evaporite im Salzstock Gorleben. Vorkommen, Herkunft, Entstehung und Wechselwirkungen mit den Salzgesteinen. – Bericht für das Niedersächsische Umweltministerium, 140 S., Clausthal (Institut für Mineralogie und Mineralische Rohstoffe, Fachgebiet Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien).
- Herrmann, A.G., Knipping, B., Schröder, K., Borstel, L.E. v. (1991): The quantitative analysis of fluid inclusions in marine evaporites. – *N. Jb. Miner. Mh.*, H. 1: 39-48.
- Hite, R.J., Japakasetr, T. (1979): Potash deposits of the Khorat Plateau, Thailand and Laos. – *Econ. Geol.*, 74: 448-458.
- Holdaway, K.A. (1974): Behavior of fluid inclusions in salt during heating and irradiation. – In: Fourth Symposium on Salt, Vol. 1: 303-312, ed. by A.H. Coogan, Cleveland (The Northern Ohio Geol. Soc.).
- Jackson, M.P.A., Cornelius, R.R., Craig, C.H., Gansser, A., Stocklim, J., Talbot, C.J. (1990): Salt diapirs of the Great Kavir, Central Iran. – 139 p., Colorado (Geol. Soc. Am.).
- Jenks, G.H. (1979): Effects of temperature, temperature gradients, stress and irradiation on migration of brine inclusions in a salt repository. – ORNL-Bericht 5526, Tennessee (Oak Ridge National Laboratory).
- Jischa, M.F. (1993): Herausforderung Zukunft; Technischer Fortschritt und ökologische Perspektiven. – 259 S., Berlin-Oxford (Spektrum).
- Knipping, B. (1984): Der mineralogische und chemische Stoffbestand am Kontakt zwischen Basalten und Evaporitgesteinen der Werra-Serie des deutschen Zechsteins. – 144 S., Diplomarbeit, Universität Göttingen.
- Knipping, B. (1986): $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ ratios of native sulphur in Zechstein 1 evaporites. – *Naturwissenschaften*, 73: 614.
- Knipping, B. (1987a): Basaltintrusionen in Zechstein 1-Evaporiten (Werra-Lagerstättenbezirk). – 202 S., Dissertation, Universität Göttingen.
- Knipping, B. (1987b): Tertiäre Basalte in Perm-Evaporiten (Z1). – *Fortschr. Miner.*, 65, Bh. 1: 96.
- Knipping, B. (1989): Basalt intrusions in evaporites. – Lecture Notes in Earth Sciences, Vol. 24, 132 p., Berlin etc. (Springer).
- Knipping, B. (1991): Basaltische Gesteine in Zechsteinevaporiten. – *Z. Geol. Paläont.*, Vol. 4, Part 1: 1149-1163.
- Knipping, B. (1994): Geochemische Steuerprozesse in marinen Evaporitsystemen. – In Vorbereitung.
- Knipping, B., Herrmann, A.G. (1985): Mineralreaktionen und Stofftransporte an einem Kontakt Basalt-Carnallit im Kalisalzhorizont Thüringen der Werra-Serie des Zechsteins. – *Kali u. Steinsalz*, 9, H. 4: 111-124.
- Knipping, B., Türck, F. (1993): Quantitative analysis of fluid inclusions in evaporites by Ion Chromatography. – *J. Chromatography*, 640: 279-286.
- Krause, W.B. (1983): Avery Island brine migration tests; installation, operation, data collection and analysis. – Technical report 190 (4), Columbus (Office of Nuclear Waste Isolation, Batelle Memorial Institute).

Stofftransporte und Immobilität spezifischer Komponenten

- Loehr, C.A. (1979): Mineralogical and geochemical effects of basaltic dike intrusion into evaporite sequences near Carlsbad, New Mexico. – M. S. Thesis, Socorro, New Mexico Inst. Mining Technology.
- Lutze, W., Malow, G., Ewing, R.C., Jercinovic, M.J., Keil, K. (1985): Alteration of basalt glasses, implications for modelling the long-term stability of nuclear waste glasses. – *Nature* 314, 6008: 252-255.
- Martin, J.B., Bell, M.J., Knapp, M.R. (1981): Uncertainties in the regulation and licensing of a high-level waste repository. In: Proc. Symp. on uncertainties associated with the regulation of the geologic disposal of high-level radioactive waste, Gatlinburg, Tennessee, March 9-13, 1981, p. 3-16, NUREG/CP-0022, CONF-810372.
- Mottl, M.J., Holland, H.D. (1978): Chemical exchange during hydrothermal alteration of basalt by sea water - I. Experimental results for major and minor components of sea water. – *Geochim. Cosmochim. Acta*, 42: 1103-1115.
- Mottl, M.J., Holland, H.D., Corr, R.F. (1979): Chemical exchange during hydrothermal alteration of basalt by sea water - II. Experimental results for Fe, Mn and sulfur species. – *Geochim. Cosmochim. Acta*, 43: 869-884.
- Muenow, D.W., Graham, D.G., Liu, N.W.K., Delaney, J.R. (1979): The abundance of volatiles in Hawaiian tholeiitic submarine basalts. – *Earth Planet. Sci. Lett.* 42: 71-76.
- Peters, H. (1985): Vorkommen und Verteilung der Elemente Blei, Kupfer und Zink in einem Kontaktbereich Basalt-Carnallit im Klaiflöz Thüringen. – *Kali u. Steinsalz*, 9, H. 6: 199-209.
- Rischbieter, F., Hintz, R.A., Michelmann, K., Schäpermeier, E. (1980): Geologische Aspekte bei der Schwachstellenbetrachtung für das Bundesendlager für radioaktive Abfälle am Standort Gorleben. – 145 S., Battelle-Bericht BF-R-63.861-2 für die Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig (jetzt Bundesamt für Strahlenschutz in Salzgitter).
- Roedder, E., Belkin, H.E. (1979): Application of studies of fluid inclusions in Permian salado Salt, New Mexico, to problems of siting the Waste Isolation Pilot Plant. – In: McCarthy, G.J. (ed.): Scientific basis for nuclear waste management, 1: 313-321, New York (Plenum Press).
- Roedder, E. (1982): Application of studies of fluid inclusions in salt samples to the problem of nuclear waste storage. – *Acta Geologica Polonica* 32, 1-2:109-133.
- Rühe, S. (1994): Der chemische Stoffbestand und die Lösungsgleichgewichte mariner Salzsysteme in einzelnen Lösungseinschlüssen der Zechsteinevaporite. – Technische Universität Clausthal (in Vorbereitung).
- Scarfe, C.M., Takahashi, E., Yoder, H.S. JR. (1980): Rates of dissolution of upper mantle minerals in an alkali-olivine basalt melt at high pressures. – *Carnegie Inst. Washington Yearb.*, 79: 290-296.
- Schlich, M. (1986): Simulation der Bewegung von im natürlichen Steinsalz enthaltener Feuchte im Temperaturfeld; Ein Beitrag zur Problematik der Endlagerung hochradioaktiver Abfälle. – 250 S., GSF-Bericht 2/86, München (Gesellschaft für Strahlen- und Umweltforschung).
- Seyfried JR., W.E., Mottl, J. (1982): Hydrothermal alteration of basalt by sea water under sea water-dominated conditions. – *Geochim. Cosmochim. Acta*, 46: 985-1002.
- Shaw, H.R. (1980): The fracture mechanism of magma transport from the mantle to the surface. – In: Hargraves, R.B. (ed): Physics of magmatic processes, p. 201-264, Princeton (Princeton Univ. Press).
- Staudigel, H., Hart, S.R. (1983): Alteration of basaltic glass: Mechanisms and significance for the oceanic crust-seawater budget. – *Geochim. Cosmochim. Acta* 47: 337-350.
- Turekian & Wedepohl, K.H. (1961): Distribution of the elements in some major units of the earth's crust. – *Geol. Soc. Amer. Bull.*, 72: 175-192.
- Wedepohl, K.H. (1983): Die chemische Zusammensetzung der basaltischen Gesteine der nördlichen Hessischen Senke und ihrer Umgebung. – *Geol. Jb. Hessen*, 111: 261-302.

- Wedepohl, K.H. (1988): Spilitization in the ocean crust and seawater balances. – Fortschr. Miner., 66, H. 2: 129 -146.
- Wolf, J. (1992): Mineralogische und geochemische Aspekte bei der Anwendung des EMR-Meßverfahrens in marinen Evaporiten. – 117 S., Dissertation, Technische Universität Clausthal.

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Natürliche Analoga zur Beurteilung der
Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien
in Evaporiten:
Fluide Phasen in Salzgesteinen**

**A. Herrmann
TU Clausthal**

Albert Günter Herrmann

Technische Universität Clausthal
Institut für Mineralogie und Mineralische Rohstoffe
Fachgebiet Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien

Natürliche Analoga zur Beurteilung der Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien in Evaporiten: Fluide Phasen in Salzgesteinen.

Zusammenfassung

Für Aussagen über das Verhalten spezifischer geologischer Endlagersysteme sowie der darin eingebrachten anthropogenen Abfälle müssen alle natürlichen dynamischen Prozesse berücksichtigt werden, welche in der geologischen Vergangenheit den mineralogischen sowie chemischen Stoffbestand der Wirtsgesteine beeinflusst und verändert haben. Diese Feststellung beinhaltet den Kern einer Arbeitsrichtung, welche heute mit dem mehrdeutigen Begriff "natürliche Analoga" umschrieben wird.

Nur die natürliche Verbindung Wasser bzw. die fluiden Komponenten können als Reaktions- sowie Transportmittel die Sicherheit von Endlagern während der Betriebs- und Nachbetriebszeiten nachhaltig beeinflussen. Die Bedeutung natürlicher Analoga zur Beurteilung der Langzeitsicherheit ist daher gleichzusetzen mit dem Studium der Reaktionen zwischen Wasser sowie fluiden Komponenten unter verschiedenen Druck- und Temperaturbedingungen mit den Gesteinen der Lithosphäre in der geologischen Vergangenheit und in der Gegenwart.

Praktische Anwendung: Mittels eines von uns entwickelten geochemischen Multi-Untersuchungsverfahrens konnte nachgewiesen werden, daß in bestimmten Teilen des Salzstocks Gorleben seit 250 Millionen eine Isolationswirkung natürlicher Barrieren gegenüber wäßrigen Lösungen aus dem Deckgebirge und dem Nebengestein wirksam ist. Damit ergeben sich neue Perspektiven für Prognosen zur Langzeitsicherheit von Endlagern in Evaporitkörpern.

Abstract

For statements concerning the behavior of underground repositories in geological systems in the geological future all natural dynamic processes that had influenced the mineralogical and chemical composition of the host rocks in the geological past must be considered. This fact is the main point of research nowadays better known as "natural analogs".

The safety of underground repositories during the operation and the postoperative phases can be strongly affected only by fluid phases as water, aqueous solutions, and gases. Consequently, the significance of natural analogs for the assessment of long-term safety can be equated to the study of reactions between water, aqueous solutions and gases under various conditions of pressure and temperature with rocks of the lithosphere in the geological past and present.

Example for evaporites: By means of a special developed combination of geochemical methods, it has been proved that in some parts of evaporites in the salt dome Gorleben water and aqueous solutions from the overlying and surrounding rocks are not active since 250 million years. Now, new perspectives are opened for the assessment of the long-term safety of underground repositories in evaporites.

Prolog:

Viele wissenschaftsgeschichtlich belegten Fakten stehen beispielhaft für Entwicklungen innerhalb der in Deutschland während der 70er und 80er Jahre geführten Diskussionen um die langfristig wirksame Endlagerung radioaktiver Abfälle. Die Situationen sind vielfach auch übertragbar auf die verstärkt notwendige Untergrund-Deponie der 100 bis 1000mal größeren Mengen an toxischen chemischen Abfällen.

Ende der 70er Jahre stand das geologische Salzstock-System Gorleben als mögliche Lokalität für ein sogenanntes "Integriertes Nukleares Entsorgungszentrum" im Mittelpunkt wissenschaftlicher und öffentlicher Diskussionen. Die Meinungsbildungen um die Realisierbarkeit eines solchen Projektes endeten schließlich mit der folgenden Entscheidung der Niedersächsischen Landesregierung: Durchführung geowissenschaftlicher und bergmännischer Untersuchungen am Salzstock Gorleben zur Prüfung seiner Eignung als unterirdisches Endlager für radioaktive Abfälle aller Kategorien bei gleichzeitiger Aufgabe des Planes zur Errichtung einer Wiederaufarbeitungsanlage für verbrauchten Kernbrennstoff an der Erdoberfläche über dem Salzstock.

Inzwischen haben die Entwicklungen in der Energiewirtschaft und der Kernindustrie während der 80er Jahre sowie die mit Milliardenverlusten beendeten Auseinandersetzungen um die Kernbrennstoff-Wiederaufarbeitungsanlage in Wackersdorf (Bayern) diesen vor 14 Jahren getroffenen Beschluß der Niedersächsischen Landesregierung als weitsichtig und richtig bestätigt.

In die damaligen Diskussionen um die Endlagerung radioaktiver Abfälle sind inzwischen wesentliche neue Fakten und Vorschläge zur Beurteilung der Langzeitsicherheit von Endlagern für anthropogene Abfallstoffe in geologischen und geochemischen Systemen eingebracht worden.

Ende der 70er Jahre fehlten in dem deutschen Evaporit-Endlagerkonzept vor allem folgende wesentlichen Grundlagen.

1. Zunächst wurden die auf Naturbeobachtungen gestützten und vor allem aus dem Kali- und Steinsalzbergbau gewonnenen Kenntnisse über die Wirksamkeit wäßriger Salzlösungen als wesentliche Ursache für Stofftransporte innerhalb von Salzkörpern als nicht relevant für die deutschen Endlagerprojekte angesehen und daher ignoriert. Die geowissenschaftlich begründete Forderung nach Beachtung der an den natürlichen Gesteinen und Gesteinskörpern nachprüfbar Fakten stand in völligem Gegensatz zu der damals (und zum Teil heute noch) in Deutschland vertretenen Auffassung, Salzgesteine seien grundsätzlich und bei allen geologischen Prozessen völlig undurchlässig gegenüber wäßrigen Lösungen und Gasen (fluiden Phasen).

2. Zur Beurteilung der Sicherheit von Abfall-Endlagern während zukünftiger Zeitabschnitte wurde in Deutschland nicht konsequent berücksichtigt, daß für Aussagen über das Verhalten spezifischer geologischer Endlagersysteme sowie der darin eingebrachten Abfälle die natürlichen und dynamischen Prozesse berücksichtigt werden müssen, welche in

der geologischen Vergangenheit den mineralogischen sowie chemischen Stoffbestand der Wirtsgesteine beeinflußt und verändert haben. Diese Feststellung beinhaltet den Kern einer Arbeitsrichtung, welche heute mit dem vereinfachenden und mehrdeutigen Begriff "natürliche Analoga" umschrieben wird. Im deutschen Sprachgebrauch wäre es wissenschaftlich richtiger, von "natürlichen Modellen" zu sprechen.

Der wissenschaftliche Inhalt der unter Punkt 2 genannten Forderung nach "natürlichen Modellen" bzw. "natürlichen Analoga" ist vom Verfasser bereits 1983 mit den folgenden Definitionen sowie Formulierungen in die deutsche Endlagerforschung eingebracht worden (HERRMANN 1983: 198):

"Grundsätzlich sollte die Deponie hochradioaktiver Abfälle so geplant werden, daß möglichst keine neuen und in der geologischen Vergangenheit nicht wirksam gewesenen physikalischen und chemischen Bedingungen geschaffen werden. Kriterien für solche geowissenschaftlichen Zielsetzungen und damit auch für Störfallanalysen ergeben sich unter anderem aus der Kenntnis der von Druck, Temperatur, mobilen Phasen und Lösungen abhängigen Bildung und Umbildung eines Gesteinskörpers. Ein geowissenschaftlich begründetes Gesamtkonzept zur Endlagerung radioaktiver Abfälle darf somit nicht nur die geologische Situation und die geomechanischen Eigenschaften der Salzgesteine berücksichtigen (z.B. Stratigraphie der Gesteinsschichten, tektonische Verhältnisse und andere). In das Gesamtkonzept muß auch die bisherige Entstehungs- und Umbildungsgeschichte des Gesteinskörpers mit einbezogen werden. Nur unter diesen Voraussetzungen lassen sich wissenschaftlich begründete Prognosen über die zukünftige Entwicklung einer bestimmten Gesteinslokalität und damit auch über die Funktionsfähigkeit eines Endlagers gewinnen."

Diese Forderung nach Untersuchung und Berücksichtigung der in der geologischen Vergangenheit stattgefundenen Prozesse ist innerhalb von 10 Jahren mehrfach wiederholt worden (z.B. HERRMANN 1987: 317; 1988: 192 f, 1992a: 102 f; HERRMANN & KNIPPING 1989: 7, 1993a: 15). Es handelt sich hierbei um eine Verfahrensweise, welche auch in anderen Forschungsdisziplinen angewendet wird. Beispielhaft sei LOUIS LEAKEY mit der folgenden Formulierung zitiert: "Die Vergangenheit ist der Schlüssel zu unserer Zukunft" (in LEAKEY & LEWIN 1993: 9).

Trotzdem wurden in Deutschland von der staatlich dominierten Endlagerforschung die bereits Anfang der 80er Jahre formulierten geowissenschaftlichen Grundlagen "natürlicher Modelle" bzw. "natürlicher Analoga" viele Jahre nachweisbar praktisch vollständig ignoriert.

Fakten:

Die seit Milliarden von Jahren in geologischen Systemen stattfindenden dynamischen Prozesse bilden das geowissenschaftliche Fundament des Arbeitsgebietes "natürliche Analoga". Es dauerte während der 70er und 80er Jahre rund zwei Jahrzehnte, bis sich nach schwierigen Diskussionen auch in Deutschland die folgenden Einsichten durchgesetzt haben:

1. In den Gesteinen des Planeten Erde läßt sich die langfristig wirksame Abschirmung anthropogener Abfälle von der Biosphäre nicht unter statischen, sondern nur unter dynamischen Bedingungen durchführen.
2. Bei den natürlichen dynamischen (geochemischen) Prozessen spielen vor allem fluide Komponenten in Form von Wasser, von wäßrigen Lösungen und von Gasen eine wesentliche Rolle.

Bei der Anwendung des Begriffs "natürliche Analoga" in Verbindung mit der Beurteilung der Langzeitsicherheit von Endlagern haben wir in jedem Einzelfall und unabhängig vom Standort sowie vom Wirtsgestein von den folgenden Tatsachen auszugehen:

1. Der Stoffbestand der Erde liegt in den drei Aggregatzuständen fest, flüssig und gasförmig vor. Dieser Stoffbestand ist charakterisiert durch zum Teil sehr unterschiedliche physikalische und chemische Eigenschaften.
2. Die drei Aggregatzustände bilden die geochemischen Systeme der Atmosphäre, der Hydrosphäre und der Lithosphäre. Zur Lithosphäre gehören die Gesteine unter der Erdoberfläche.

Bekanntlich sind in den verschiedenen geologischen und geochemischen Bereichen der Erde physikalische und chemische Prozesse mit unterschiedlicher Intensität und Geschwindigkeit wirksam (Abb. 1). In den tieferen Gesteinsschichten der Lithosphäre dauern die Stofftransporte ohne Ausnahme viele Millionen Jahre länger als an der Erdoberfläche. Damit ist wissenschaftlich begründet, warum nur in den unterirdischen Gesteinen der Lithosphäre und nicht auch an der Erdoberfläche eine langfristig sichere Abschirmung von Abfallstoffen gegenüber der Biosphäre möglich ist.

Die in der Natur vorkommenden Gesteine werden nach ihrem Mineralbestand, ihrer chemischen Zusammensetzung und ihrer unterschiedlichen Entstehung in drei Gruppen unterteilt, nämlich in die magmatischen, die sedimentären und die metamorphen Gesteine. Die physikalischen und die chemischen Eigenschaften der verschiedenen Gesteinsarten unterscheiden sich zum Teil deutlich voneinander. Aber auch die gleiche Gesteinsart kann im geologisch-geochemischen System A teilweise andere Materialeigenschaften aufweisen als an Lokalisationen der Systeme B und C. Mit anderen Worten: Bei der Beurteilung der Langzeitsicherheit von unterirdischen Endlagern sind nicht nur die Eigenschaften unterschiedlicher Gesteinsarten zu berücksichtigen, sondern auch das Vorkommen der gleichen Gesteinsart an verschiedenen Standorten.

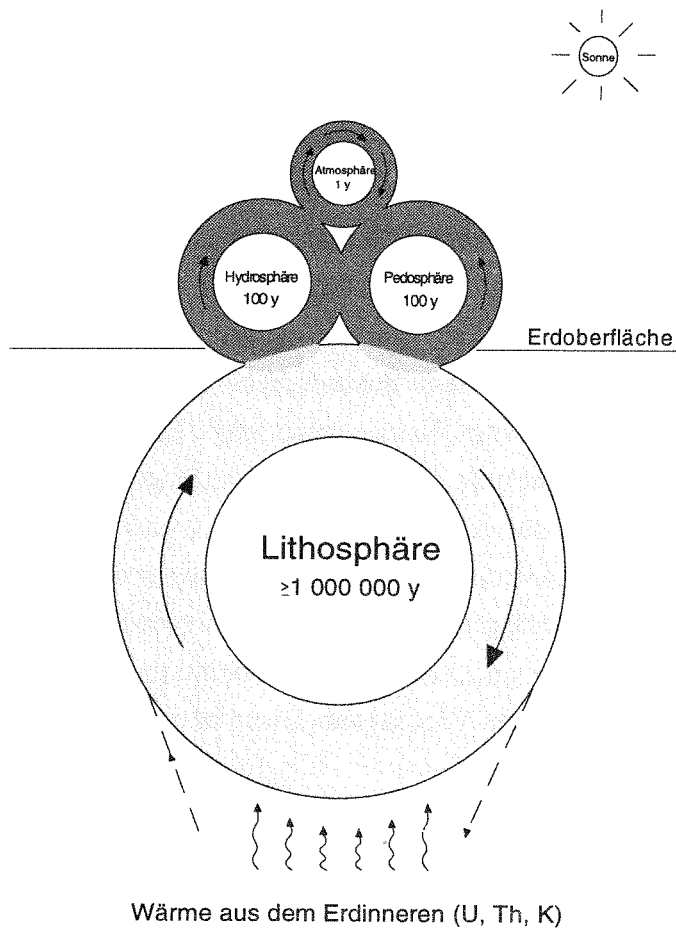


Abb. 1. Unterschiedliche Dauer geochemischer Stoffkreisläufe und Stofftransporte in und zwischen der Atmosphäre, der Hydrosphäre, der Pedosphäre einerseits und der Lithosphäre andererseits. Die Jahresangaben sind als Größenordnungen zu verstehen, welche bei einzelnen Komponenten nach oben und unten abweichen können. Modifiziert nach GOLUBIC et al. 1979: 37; aus HERRMANN 1987).

Zentrale Punkte:

Alle Gesteine und Gesteinsschichten haben eine für die Endlagerung von Abfallstoffen sehr wichtige stoffliche Gemeinsamkeit:

1. Praktisch alle Gesteinsarten und -schichten enthalten Wasser und Gase in unterschiedlicher Bindung und in verschiedenen großen Mengen.
2. Kein natürlicher Gesteinskörper ist an allen Stellen während geologischer Zeiten und unter allen geochemischen Bedingungen völlig "dicht" bzw. undurchlässig gegenüber Flüssigkeiten und Gasen.
3. Es gibt unter geologischen und geochemischen Aspekten kein "weltweit bestes Endlagergestein". Grundsätzlich können verschiedene Gesteinsarten mit völlig unterschiedlicher geologisch-geochemischer Entstehungsgeschichte für die Endlagerung von Abfallstoffen im Untergrund in Betracht gezogen werden.

Es gibt einen zentralen Punkt für jede Beurteilung der Langzeitsicherheit von Endlagern an der Erdoberfläche und im Untergrund sowie jeder Bewertung natürlicher Analoga, der sich in drei Feststellungen zusammenfassen läßt:

1. Wasser bzw. fluide Komponenten sind bei geochemischen Prozessen die wichtigsten natürlichen Reaktionspartner. Vor allem in flüssiger Form ist Wasser als Lösungs- und Transportmittel für feste Stoffe und für Gase seit Jahrmilliarden auf und in der Erde wirksam. Daran wird sich auch in der geologischen Zukunft nichts ändern.
2. Nur die natürliche Verbindung Wasser bzw. die fluiden Komponenten können als Reaktions- sowie Transportmittel die Sicherheit von Endlagern während der Betriebs- und Nachbetriebszeiten nachhaltig beeinflussen.
3. Die Bewertung natürlicher Analoga für die Beurteilung der Langzeitsicherheit ist daher gleichzusetzen mit dem Studium der Reaktionen zwischen Wasser sowie fluiden Komponenten unter verschiedenen Druck- und Temperaturbedingungen mit den Gesteinen der Lithosphäre in der geologischen Vergangenheit und in der Gegenwart.

Praktische Beispiele:

Nach unserem gegenwärtigen Wissensstand sind für das Studium natürlicher Analoga vor allem solche Gesteine geeignet, welche besonders reaktionsfähig sind gegenüber der Einwirkung fluider Phasen in Form von Wasser und von ungesättigten wäßrigen Salzlösungen. Hierzu gehören bevorzugt auch die Salzgesteine mariner Evaporitvorkommen, welche in Deutschland für die Endlagerung anthropogener Abfälle bereits genutzt oder untersucht werden. Aus diesem Grund soll an zwei Beispielen, welche sich nach der im Abschnitt "Prolog" gegebenen Definition auch als "natürlichen Analoga" bezeichnen lassen, die Wirkung fluider Phasen in Salzgesteinen während der geologischen Vergangenheit in Verbindung mit der potentiellen Mobilisierung und dem Transport anthropogener Schadstoffe durch Salzlösungen aus einem unterirdischen Endlager in die Biosphäre beispielhaft demonstriert werden.

Geochemisch sind die aus dem Meerwasser gebildeten Salzvorkommen vor allem dadurch charakterisiert, daß ein Teil ihrer Gesteine gut wasserlöslich ist. Lassen sie sich trotzdem als langfristig sichere Endlager für bestimmte chemische und radioaktive Abfallstoffe nutzen?

Um diese Frage zu beantworten, muß daran erinnert werden, daß die unterirdische Abschirmung anthropogener Abfallstoffe gegenüber der Biosphäre an der Erdoberfläche auf einem Barrierenkonzept beruht. Hierbei müssen vor allem die Gesteinsschichten geologischer Systeme langfristig wirksame Rückhaltefunktionen gegenüber eventuell mobilisierten Schadstoffen übernehmen. Bei der geochemischen Beurteilung der Langzeitsicherheit eines natürlichen Endlagersystems gilt es also nachzuweisen, ob und wo innerhalb der zur Deponie vorgesehenen Wirtsgesteine in der geologischen Vergangenheit und gegenwärtig fluide

Phasen in Form wäßriger Lösungen wirksam waren bzw. sind. Die heute noch in den Salzgesteinen vorkommenden fluiden Phasen übernehmen somit die Rolle natürlicher Analoga für die Frage, ob und in welchem Umfang mit Stofftransporten und Mineralreaktionen, ausgelöst durch wäßrige Lösungen, innerhalb der Salzgesteine sowie zwischen dem Evaporitkörper und den Nebengesteinen, vor allem dem Deckgebirge, in der nahen geologischen Zukunft zu rechnen ist.

Zur Beurteilung der langfristigen Barrierenwirkung von Evaporitsystemen mariner Entstehung ist am Fachgebiet Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien der TU Clausthal eine Methode von LAZAR & HOLLAND (1988) neu konzipiert und hinsichtlich der geochemischen Interpretationsmöglichkeiten wesentlich erweitert worden. Mit diesem Verfahren ist es möglich, aus Salzmineralen den Inhalt einzelner Lösungseinschlüsse mit Durchmessern $\geq 300 \mu\text{m}$ zu extrahieren, quantitativ zu analysieren und die Ergebnisse geochemisch zu modellieren.

Die Methode liefert in Verbindung mit den bisher im Kali- und Steinsalzbergbau durchgeführten Untersuchungen an Gebirgslösungen folgende Informationen: 1. Aussagen über die mögliche Wirkung fluiden Phasen in Teilen der Salzgesteine seit ihrer Entstehung bis heute. 2. Angaben über die Eignung bestimmter Salzstockteile für die Einrichtung von Untergrund-Deponien. 3. Aussagen über die Rolle fluiden Komponenten (wäßriger Lösungen) bei der Beurteilung der standortbezogenen Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien in Salzstöcken.

Diese Methode der kombinierten Untersuchung von Lösungseinschlüssen (fluid inclusions) und Gebirgslösungen ist erstmals am Salzstock Gorleben (z.B. v. BORSTEL & HERRMANN 1992, v. BORSTEL 1993, HERRMANN & KNIPPING 1993b) sowie an der Salzaufwölbung des Allertals im Bereich der Grubenfelder Bartensleben und Marie (Morsleben; HERRMANN 1992b, 1993) mit Erfolg angewendet worden.

Für bisher aufgeschlossene Teile des Salzstocks Gorleben gelang unter anderem der wichtige Nachweis, bis zu welcher Tiefe die durch Eiszeiten beeinflussten Subrosionsprozesse in den Salzstock hineinreichen. Weiterhin wurde festgestellt, in welchen Bereichen des Salzstocks der chemische Stoffbestand der Gesteine offensichtlich seit Jahrmillionen nicht mehr durch wäßrige Lösungen verändert worden ist.

Beispiel 1:

Danach sind beim gegenwärtigen Erkundungsstand die durch Eiszeiten beeinflussten Subrosionsprozesse im Kalisalzflöz Staßfurt des Salzstocks Gorleben bis etwa 80 m unter dem Salzspiegel nachweisbar, das heißt rund 330 m unter der Erdoberfläche (Abb. 2 und 3). Beispielsweise weisen die Bromid-Anteile und die Dichten der Lösungen in den kleinen Einschlüssen der Steinsalzkristalle des Kalisalzflözes Staßfurt aus 40 bis 50 m Tiefe unter

dem Salzspiegel geochemisch signifikante Werte für Umkristallisationsprozesse auf. Dagegen ist der Stoffbestand der Lösungseinschlüsse im Steinsalz (Halit aus Klutfüllungen im Leine-Steinsalz, Na3) aus 800 m und noch größeren Tiefen unter der Erdoberfläche geochemisch signifikant für die fehlende Einwirkung von Oberflächen- und Formationswässern auf den Kern des Salzstocks Gorleben seit der Entstehung der Gesteine vor 250 Millionen Jahren.

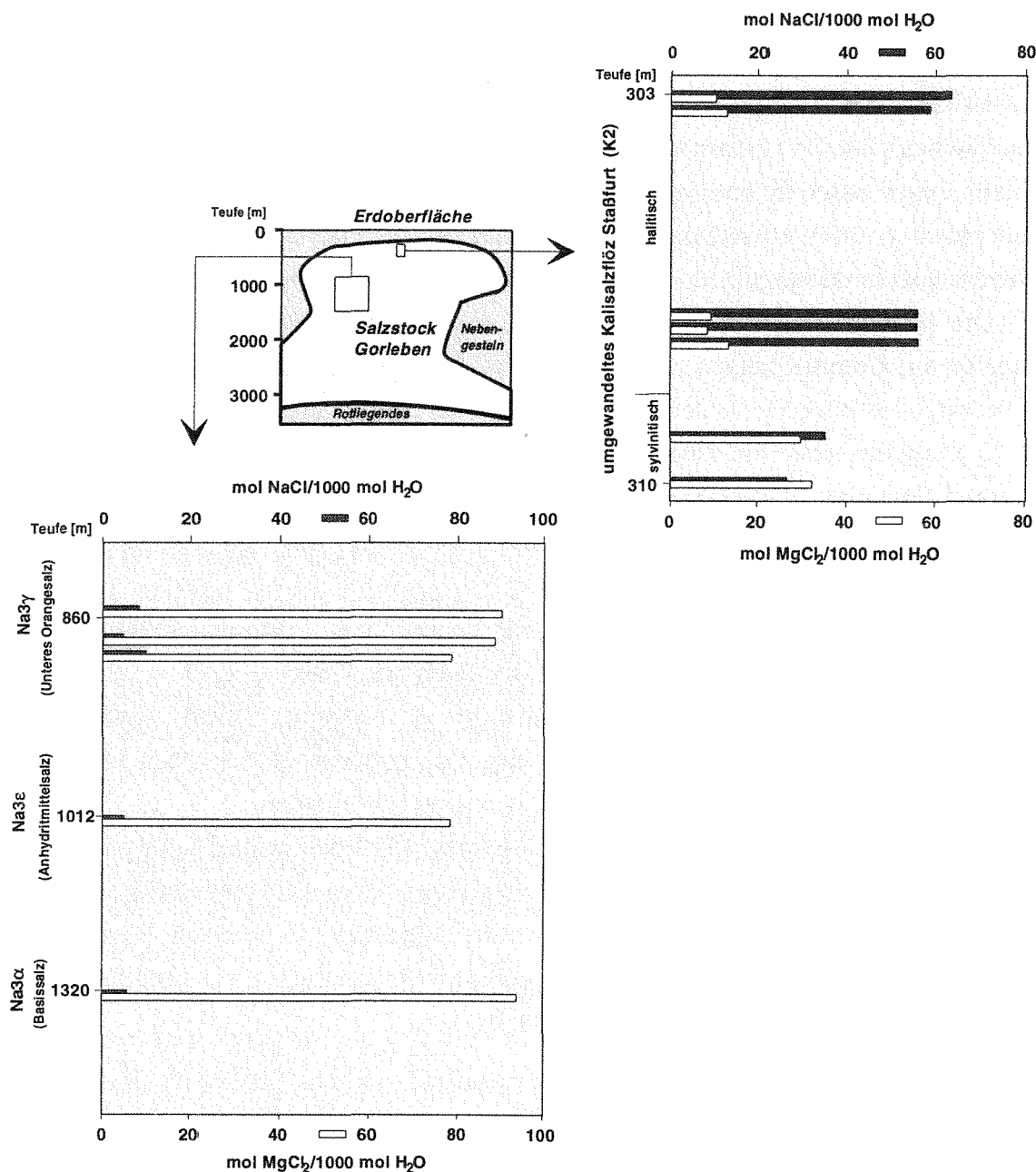


Abb. 2. Geochemische Zusammenhänge zwischen den NaCl- und MgCl₂-Anteilen in Lösungseinschlüssen aus Klüften im Leine-Steinsalz (Na3) der Bohrungen 1005 und 5001 sowie aus dem Steinsalz des Kalisalzflözes Staßfurt (K2). Signifikant sind die hohen NaCl-Konzentrationen in Lösungseinschlüssen aus geringen Tiefen unter dem Salzspiegel sowie die stark MgCl₂-haltigen und chemisch weitgehend unveränderten Lösungseinschlüsse in den großen Tiefen des Salzstocks. Modifiziert nach: v. BORSTEL & HERRMANN (1992), v. BORSTEL (1993), RÖTHEMEYER et al. (1993); aus HERRMANN & KNIPPING (1993b).

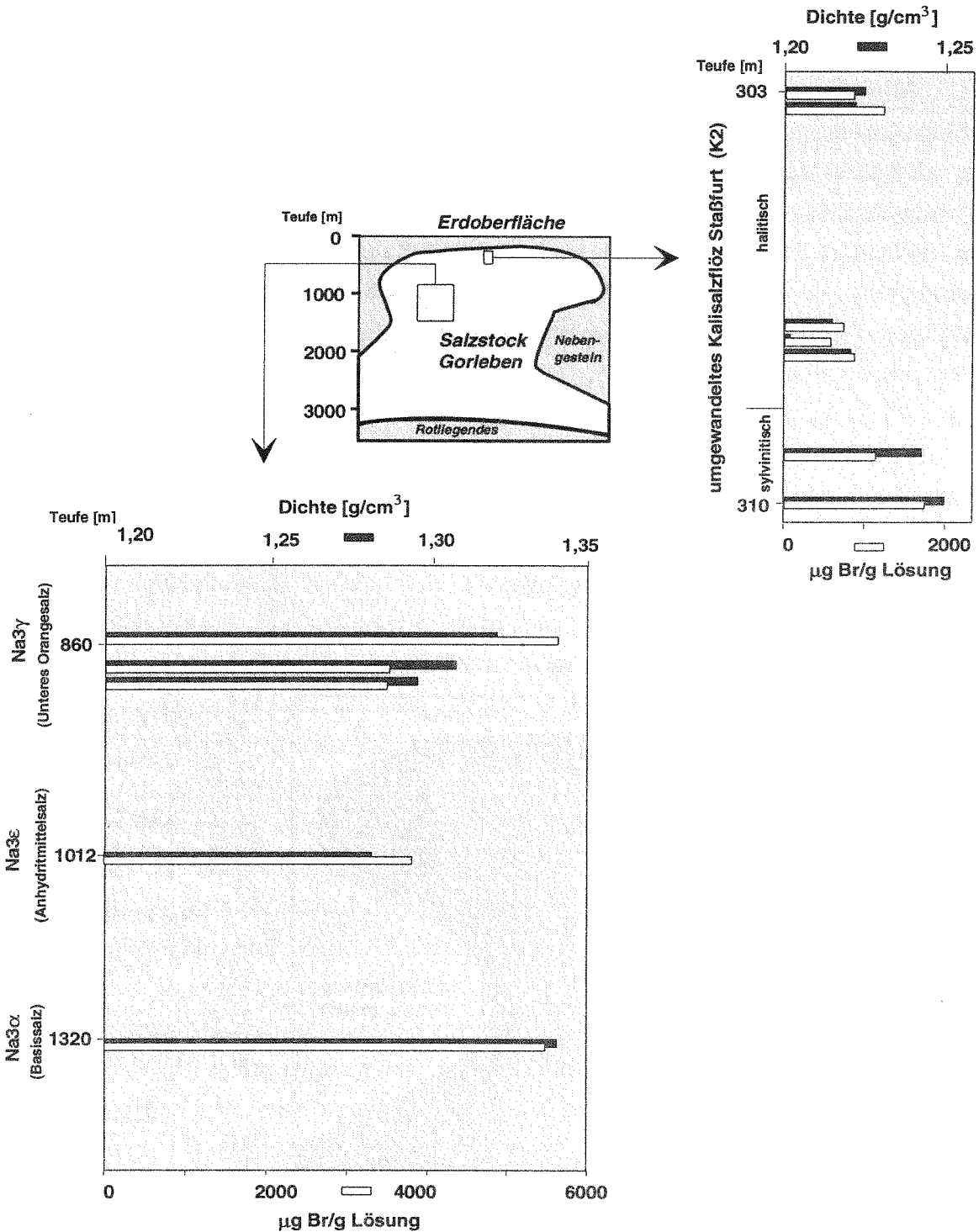


Abb. 3. Geochemische Zusammenhänge zwischen den Dichten und den Br-Anteilen in Lösungseinschlüssen aus Klüften im Leine-Steinsalz (Na₃) der Bohrungen 1005 und 5001 sowie aus dem Steinsalz des Kalisalzflözes Staßfurt (K₂). Deutlich ist an der Zunahme der Dichte der Lösungen sowie aus den ansteigenden Br-Konzentrationen zu erkennen, wie unter dem Salzspiegel (Bohrung 377) der Einfluß wässriger Lösungen aus den Hangendbereichen des Salzstocks (Subrosionen) mit zunehmender Tiefe in den Salzstock hinein abnimmt. In den Lösungseinschlüssen aus Tiefen zwischen 860 und 1320 m sind keinerlei Auswirkungen der im Hangenden des Salzstocks über Jahrtausende stattgefundenen Subrosionsvorgänge mehr zu erkennen. Modifiziert aus: v. BORSTEL & HERRMANN (1992), v. BORSTEL (1993), RÖTHEMEYER et al. (1993); aus HERRMANN & KNIPPING (1993b).

Beispiel 2:

Mit einem zweiten natürlichen Analogon lassen sich diese Beobachtungen und Schlußfolgerungen nach Untersuchungen von MATTENKLOTT (1992) eindeutig bestätigen. Die wissenschaftliche Grundlage hierfür bilden die in der Struktur des Minerals Carnallit fixierten absoluten Br-Anteile. Das Mineral Carnallit ist Bestandteil des Gesteins Carnallitit, aus welchem im Salzstock Gorleben große Teile des Kalisalzflözes Staßfurt bestehen. Dieses Kalisalzflöz ist durch Bohrungen in verschiedenen Teufen des Salzstocks angetroffen worden. Das Ergebnis der Untersuchungen ist beispielhaft an Proben zu sehen, welche aus den oberen 400 m des Salzstocks stammen (Abb. 4).

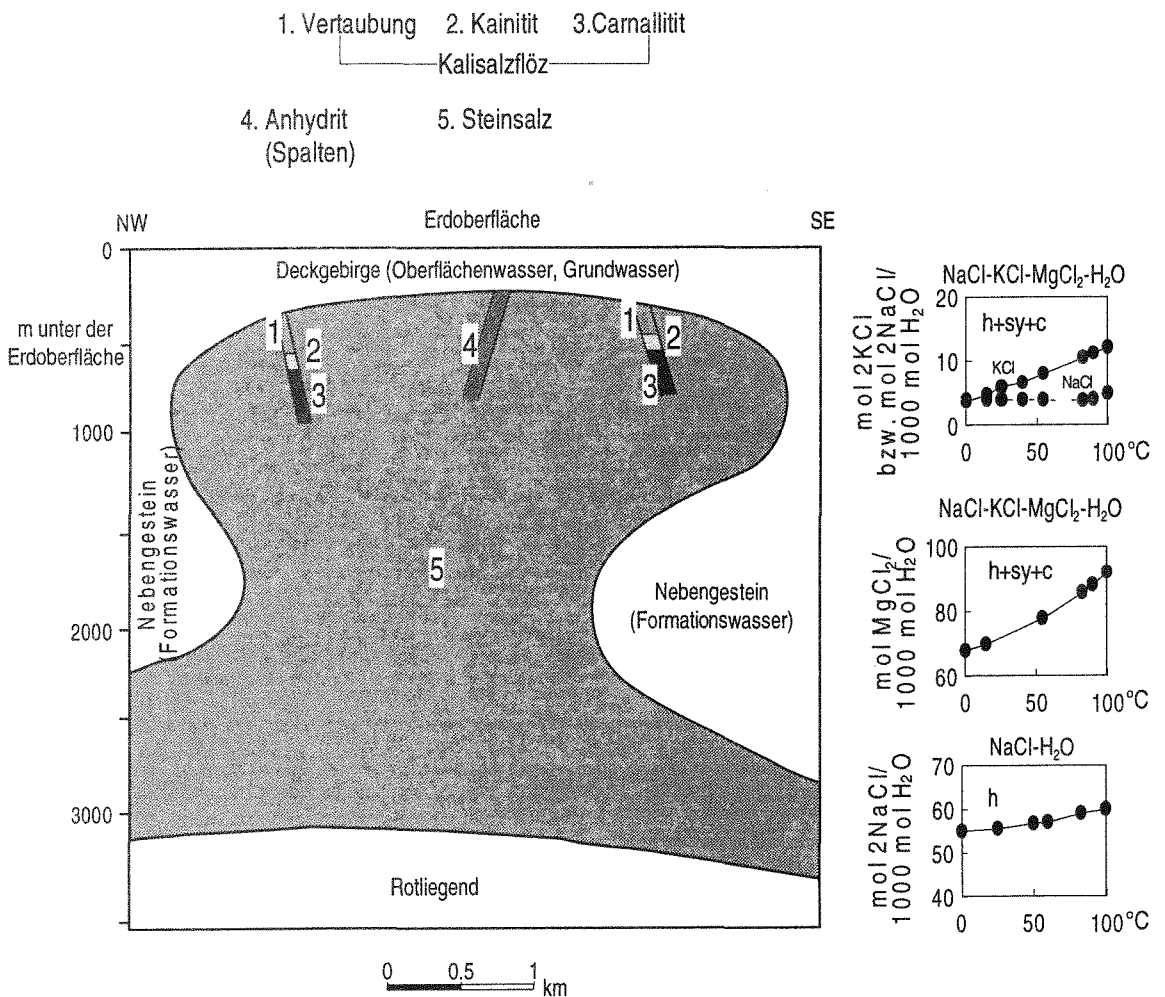


Abb. 4. Verschiedene Prozesse und Reaktionen bei der Einwirkung ungesättigter wäßriger Lösungen aus dem Deckgebirge auf das Steinsalz und die Kalisalzgesteine eines Salzstocks (z.B. Gorleben). Die Mineralreaktionen und Stofftransporte durch wäßrige Lösungen reichen in den Kalisalzflözen tiefer in den Salzstock hinein als im Steinsalz. Dieses Beispiel bezieht sich nur auf Evaporitkörper mit steiler Lagerung der Gesteinsschichten. Aus: HERRMANN & KNIPPING (1989: 11, 1993a: 124).

Erwartungsgemäß wird dicht unter dem Salzspiegel zunächst eine sogenannte Vertaubungszone angetroffen. Das heißt, das Kalisalzflöz besteht praktisch vollständig aus dem Mineral Steinsalz, während K-Mg-Mineraie fehlen. Mit zunehmender Tiefe geht die Vertaubungszone in einen Bereich über, in welchem neben dem Steinsalz die K-Mg-Verbindung Kainit vorkommt. Schließlich geht diese Zone in noch größerer Tiefe in das Gestein Carnallit über. Hier beginnt der Abschnitt, welcher Informationen über die Einwirkung fluider Phasen während der geologischen Vergangenheit auf das vor 250 Millionen Jahren gebildete Mineral Carnallit liefert. An Proben aus diesem Profil sind auch die bereits erläuterten Untersuchungen an den Lösungseinschlüssen im Mineral Halit durchgeführt worden.

Bei der statischen Eindunstung von Meerwasser werden bei einer Lösungstemperatur von 25 °C in die Struktur des Minerals Carnallit zwischen 0,26 bis 0,46 % Br eingebaut, je nachdem, ob in den Umwandlungspunkten des quinären Meerwasser-Systems $\text{NaCl-KCl-MgCl}_2\text{-Na}_2\text{SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ eine Reaktion der Bodenkörper mit der Lösung stattfindet oder nicht. Unter allen Salzmineralen reagiert der Carnallit am empfindlichsten gegenüber der Einwirkung von Wasser. Durch Wasser wird die feste Verbindung $\text{KMgCl}_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ kongruent aufgelöst und anschließend inkongruent zersetzt, wobei der Br-Anteil in der Mineralstruktur nach den Verteilungsfaktoren teilweise in die Lösung und in die neu entstehenden Bodenkörper ($\text{KCl} \pm \text{NaCl}$) übergeht. Falls sich aus solchen Br-haltigen Lösungen erneut Carnallit bildet, wird entsprechend des Br-Verteilungsfaktors viel weniger Br in die Carnallitstruktur eingebaut als bei der Kristallisation aus eingedunstetem Meerwasser.

In dem untersuchten Profil nimmt der absolute Br-Anteil des Carnallits von rund 0,26 % dicht unter der Kainit-Zone auf durchschnittlich 0,40 % zu (Abb. 5). Das heißt, daß der Carnallit unmittelbar unter dem Kainitbereich noch durch carnallitgesättigte Lösungen umkristallisiert ist und dabei einen Teil des ursprünglichen Br-Anteils abgegeben hat. Die deutlich höheren Br-Anteile im Carnallit aus größeren Tiefen zeigen dagegen an, daß dieses Carnallitgestein seit seiner Bildung vor 250 Millionen Jahren und trotz der mechanischen Verformungen der Gesteine während der Salzstockbildungsphasen offensichtlich nicht wieder mit ungesättigten Lösungen aus dem Deckgebirge oder Formationswässern aus dem Nebengestein des Salzstocks reagiert hat. Mit anderen Worten: Es haben in der geologischen Vergangenheit seit der Bildung des Kalisalzflözes Staßfurt in den heutigen tieferen Bereichen des Salzstocks Gorleben keine erneuten und quantitativ ausgedehnten Einwirkungen fluider Komponenten auf das feste Gestein stattgefunden. Natürlich muß diese bisherige Feststellung durch weitere bergmännische Untertageerkundungen ergänzt und auf eine breitere Grundlage gestellt werden.

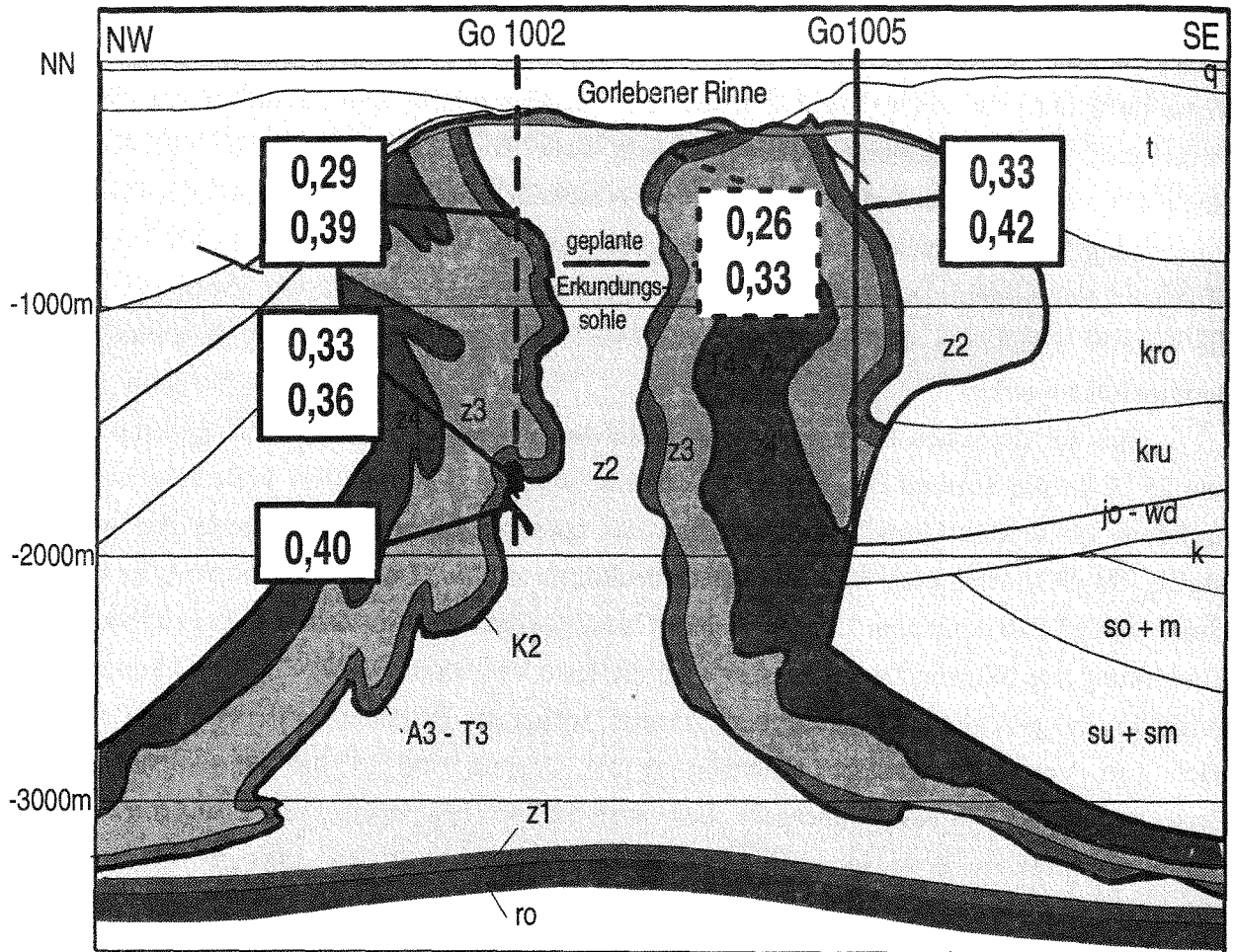


Abb. 5. Absolute Br-Anteile in der Carnallitfraktion des Carnallitits aus dem Kalisalzflöz Staßfurt (K2) des Salzstocks Gorleben. Dicht unter der Kainitit-Zone (siehe Abb. 4) hat der Carnallit mit 0,26 % Br durch Umkristallisationsvorgänge einen Teil des ursprünglichen Br-Anteils abgegeben. Die mit 0,33 bis 0,42 % deutlich höheren Br-Anteile im Carnallit aus größeren Tiefen zeigen, daß seit der Bildung des Carnallitits vor 250 Millionen Jahren keine ungesättigten wäßrigen Lösungen aus dem Deckgebirge und/oder Formationswässer aus den Nebengesteinen mit den Kalisalzgesteinen reagiert haben (MATTENKLOTT 1992 und freundliche persönliche Mitteilung).

Epilog:

Durch die Kombination geochemischer Untersuchungen an Lösungseinschlüssen in Salzmineralen, an den in Salzschieben vorkommenden Gebirgslösungen sowie an den Carnallitgesteinen der Kalisalzflöze norddeutscher Salzstöcke steht jetzt ein Instrumentarium zur Verfügung, welches wie keine andere Methode als natürliches Analogon für wahrscheinliche zukünftige Entwicklungen die vorhandene oder fehlende Wirksamkeit fluider Phasen in Evaporitkörpern während der geologischen Vergangenheit zu beurteilen erlaubt. Damit ergeben sich völlig neue Perspektiven zur Beurteilung von Fragen der Langzeitsicherheit von Endlagern in Evaporitkörpern, welche auch bei Entscheidungen für oder gegen eine bergmännische Untertageerkundung von Bedeutung sind.

Beispielsweise ist unter geochemischen und mineralogischen Aspekten auf der Grundlage der bisherigen Aufschlüsse im Salzstock Gorleben die potentielle Langzeitsicherheit dann günstig zu beurteilen, wenn in den für das Endlager vorgesehenen Steinsalzbereichen seit deren Bildung vor 250 Millionen Jahren nachweisbar keine Veränderung des chemischen und mineralogischen Stoffbestandes durch fluide Komponenten aus dem Deckgebirge und/oder dem Nebengestein stattgefunden hat.

Die vorgestellte Bewertung der Langzeitsicherheit von Untergrund-Deponien auf der Grundlage natürlicher Analoga mit quantifizierbaren geochemischen Modellen ist gegenwärtig nur für marine Evaporitgesteine möglich. Bei anderen potentiellen Endlager-Wirtsgesteinen für anthropogene Abfallstoffe können zur Zeit noch keine ähnlich weitgehenden Schlußfolgerungen getroffen werden.

Anerkennung:

Die Untersuchungsergebnisse der Beispiele 1 und 2 sind die Resultate verschiedener Forschungsprojekte, welche zwischen 1988 und 1993 am Fachgebiet Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien des Instituts für Mineralogie und Mineralische Rohstoffe der Technischen Universität Clausthal von wenigen Mitarbeitern mit einer umfangreichen und gleichzeitig kostengünstigen Arbeitsleistung durchgeführt worden sind.

Folgende Bundes- und Landeseinrichtungen sowie dort tätige Mitarbeiter und Kollegen haben unsere Arbeiten unterstützt: Bundesamt für Strahlenschutz, Bundesministerium für Forschung und Technologie, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Ministerium für Wissenschaft und Kultur in Hannover, Deutsche Forschungsgemeinschaft.

Danken möchte ich weiterhin den folgenden Mitarbeitern und Doktoranden am Fachgebiet Salzlagerstätten und Untergrund-Deponien: Frau B. Adel, Frau Dr. L. E. v. Borstel, Frau A. Lambrecht, Frau Dipl.-Min. S. Rühle, Herrn K. Herrmann, Herrn Dr. B. Knipping, Herrn Dipl.-Min. M. Mattenklott, Herrn K. Schröder, Herrn Dipl.-Min. M. G. Siemann, Herrn F. Türck.

Literatur- und Quellenverzeichnis:

- BORSTEL, L.E. v.(1991): Quantitative chemical composition of fluid inclusions in evaporites (Zechstein, Germany).--Plinius, Numero 5: 241-242, Supplemento italiano all'European Journal of Mineralogy, ECROFI XI - European Current Research on Fluid Inclusions, Firenze, 10-12 Aprile, 1991.
- BORSTEL, L.E. v.(1991): Die Charakterisierung des Stoffbestandes von fluid inclusions in Zechsteinevaporiten mittels der Lösungsgleichgewichte mariner Salzsysteme.--Kali u. Steinsalz 10: 409-416.
- BORSTEL, L.E. v.(1993): Lösungen in marinen Evaporiten.--BfS-Schriften, 10/93, 314 Seiten, Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter.
- BORSTEL, L.E. v., HERRMANN, A.G.(1992): Der quantitative Stoffbestand einzelner Lösungseinschlüsse in Salzmineralen - Neue Erkenntnisse in der Evaporitforschung.--Mitteilungsblatt der TU Clausthal, Heft 74, 26-30, Clausthal-Zellerfeld.
- GOLUBIC, S., KRUMBEIN, W., SCHNEIDER, J.(1979): The carbon cycle.--In: Biochemical cycling of mineral-forming elements. Eds.: P.A. Trudinger, D.J. Swaine. 29-45, Elsevier, Amsterdam-Oxford-New York.
- HERRMANN, A.G.(1983): Radioaktive Abfälle. Probleme und Verantwortung.--256 S., Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York.
- HERRMANN, A.G.(1987): Untergrund-Deponie anthropogener Schadstoffe.--Fortschr. Miner. 65: 307-323, Stuttgart.
- HERRMANN, A.G.(1988): Die Untergrund-Deponie anthropogener Schadstoffe.-- In: Die Erde. Dynamische Entwicklung, menschliche Eingriffe, globale Risiken. Hrsg.: K. Germann, G. Warnecke, M. Huch; S. 183-200; Springer-Verlag, Berlin- Heidelberg-New York-London-Paris-Tokyo.
- HERRMANN, A.G.(1992a): Dynamische Prozesse in der Natur als Kriterien für die langfristig sichere Deponierung anthropogener Abfälle.--In: Tatort Erde. 2. Auflage. Hrsg.: G. Warnecke, M. Huch, K. Germann; S. 86-111; Springer-Verlag, Berlin- Heidelberg-New York-London-Paris-Tokyo-Hong Kong-Barcelona-Budapest.
- HERRMANN, A.G.(1992b): Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM). Lösungszuflüsse in den Grubenfeldern Marie und Bartensleben: Stoffbestand, Herkunft, Entstehung.--BfS-Schriften, 5/92, 480 Seiten, Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter.
- HERRMANN, A.G.(1993): Endlager für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM). Lösungsvorkommen in den Grubenfeldern Marie und Bartensleben: Stoffbestand, Herkunft, Entstehung.--BfS-Schriften, 11/93, 236 Seiten, Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter.
- HERRMANN, A.G., BORSTEL, L.E. v.(1991): The composition and origin of fluid inclusions in Zechstein evaporites of Germany.--N. Jb. Miner. Mh., Jg. 1991, H. 6, 263-269; Stuttgart.

- HERRMANN, A.G., KNIPPING, B.(1989): Stoffbestand von Salzstöcken und Langzeitsicherheit für Endlager radioaktiver Abfälle.--PTB informiert, Heft 1/89, 50 S.; Physikalisch-Technische Bundesanstalt, Braunschweig-Berlin.
- HERRMANN, A.G., KNIPPING, B.(1993a): Waste Disposal and Evaporites. Contributions to Long-Term Safety.--Lecture Notes in Earth Sciences, Vol. 45. 193 pages. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-New York-London-Paris-Tokyo-Hong Kong-Barcelona-Budapest.
- HERRMANN, A.G., KNIPPING, B.(1993b): Fluide Komponenten als Teile des Stoffbestandes der Evaporite im Salzstock Gorleben. Vorkommen, Herkunft, Entstehung und Wechselwirkungen mit den Salzgesteinen.--140 S., Bericht für das Niedersächsische Umweltministerium zum Internationalen Endlager-Hearing in Braunschweig.
- HERRMANN, A.G., KNIPPING, B., SCHRÖDER, K.(1991): Vorrichtung zur Betrachtung eines fest angeordneten Objekts wahlweise aus verschiedenen Richtungen mit einem Mikroskop.--Patentschrift DE 40 08 072, Deutsches Patentamt, 07.11.1991.
- HERRMANN, A.G., KNIPPING, B., SCHRÖDER, K., BORSTEL, L.E. v.(1991): The quantitative analysis of fluid inclusions in marine evaporites.--N. Jb. Miner. Mh., Jg. 1991, H. 1, 39-48; Stuttgart.
- LAZAR, B., HOLLAND, H.D.(1988): The analysis of fluid inclusions in halite.--Geochim. Cosmochim. Acta 52: 485-490.
- LEAKEY, R., LEWIN, R.(1993): Der Ursprung des Menschen.--S. Fischer Verlag, Frankfurt a.M.; 368 S.
- MATTENKLOTT, M.(1992): Die absoluten Bromidanteile in Carnallitgesteinen als Kriterium für Metamorphoseprozesse in marinen Evaporiten durch wäßrige Lösungen.--Berichte der Deutschen Mineralogischen Gesellschaft, Beihefte zum European Journal of Mineralogy, Vol. 4, No. 1, 187.
- RÖTHEMEYER, H., BORSTEL, L.E. v., HERRMANN, A.G., ENGELMANN, H.J., JARITZ, W., STORCK, R., STRIBRNY, B.(1993): From conceptual design to site specific planning and licensing in Germany.--Proceedings of an International Symposium on Geologic Disposal of Spent Fuel, High-Level and Alpha-Bearing Wastes; Antwerpen 19.-23. October 1992: 41 - 54. International Atomic Energy Agency, Vienna.

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Zusammenfassender Überblick über die ver-
schiedenen Arten von Uranlagerstätten**

**H. Fuchs
GNS**

ZUSAMMENFASSENDER ÜBERBLICK ÜBER DIE VERSCHIEDENEN ARTEN VON URANLAGERSTÄTTEN

1. *Einleitung*

Die Gliederungssystematik der unterschiedlichen Urananreicherungen oder Uranvorkommen ist nicht einfach. Gliedert man sie nach ihrer Erscheinungsform, wie z. B. in gangförmige, schichtgebundene etc. Lagerstätten, dann packt man Uranvorkommen unterschiedlicher Genese zusammen, die für eine systematische Uranexploration nicht sehr hilfreich ist.

Versucht man eine Gliederung rein nach den genetischen Vorgängen, dann wäre das die beste Lösung, doch ist dies wegen der häufig noch nicht ganz verstandenen Entstehungsgeschichte vieler Urananreicherungen kaum machbar.

Dahlkamp^[1] hat den zweiten Weg versucht, was allerdings zu einer relativ schwierigen Systematik geführt hat. (Abb. 1)

In meinem Vortrag möchte ich ebenfalls den zweiten Weg gehen, jedoch in vereinfachter Form und anschließend für die vier meiner Ansicht nach für Analogieuntersuchungen wichtigsten Fälle, eine Beschreibung der Genese vorstellen.

2. *Überblick über die verschiedenen Arten von Uranlagerstätten*

2.1 *magmatogene Urananreicherungen (Abb. 2)*

Bei der magmatischen Differentiation durchwandert das Uran das Stadium der Früh- und Hauptkristallisation und kommt entweder erst in der pegmatitisch/pneumatolytischen Rekristallisationsphase zur Ausfällung (besonders großer Ionen-

Radius des Urans) oder es scheidet sich aus hydrothermalen Restlösungen aus.^[2]

In einem Magma nimmt somit die Uranhäufigkeit mit der Zunahme des Kieselsäure- und Kaliumanteils zu. Das bedeutet, daß in sauren Magmatiten und sauren Vulkaniten eine relative Urananreicherung stattgefunden hat.

Man unterscheidet:

- intraintrusive Anreicherungstypen
- gangförmige (pegmat., hydroth.) Anreicherungstypen
- vulkanogene Anreicherungstypen

2.2 *schichtgebundene Urananreicherungen (Abb. 1)*

Bei der Sedimentation von Gesteinen treten die verschiedensten physiochemischen Schwankungen auf. Für das Uran wirken sich diese in einem häufigen Wechsel zwischen Vier- und Sechswertigkeit aus, zwischen Absatz und Lösung.

Nur in erdgeschichtlicher Zeit, in der noch kein freier Sauerstoff vorhanden war - älter als mittleres Unterproterozoikum: ca. 2000 Mio Jahre - konnte Uran physisch abgelagert werden. Danach wurde es immer aus wäßriger Lösung gefällt, wobei man wiederum unterscheidet zwischen einer Fällung des Urans während der Sedimentation/Diagenese des Sedimentes (syngenetisch) und einer späteren Fällung als Folge von Umlösungen (epigenetisch). Infolge der möglichen Vielfalt der Fällungsprozesse gibt es bei Sedimenten eine große Anzahl von unterschiedlichen Lagerstättentypen:

- Anreicherung in oligomiktischen Konglomeraten
- schichtkonkordante Anreicherungen in Sandsteinen und Tonschiefern
- roll front-Anreicherungstyp in Sandsteinen

2.3 an unter-/mittelproterozoische Diskordanzen gebundene Lagerstätten (Abb. 3, Abb. 4)

Dieser Lagerstättentyp ist erst Ende der 60iger Jahre bekannt geworden, ist jedoch z. Z. der wirtschaftlich wichtigste.

Zum Ende des Unterproterozoikums (vor ca. 1850 Mio Jahren) fand weltweit eine intensive Erosionsphase statt. Während dieser kam es zum ersten Mal zu einer stark oxidativen Verwitterung. Dabei bildeten sich mächtige Laterite, und Uran trat erstmals in den für dieses Element so typischen Lösungs- und Fällungsprozeß ein.

Über den sich damals gebildeten Paläolateriten (Regolith) kam es im mittleren Proterozoikum zur Ablagerung von mächtigen klastischen Sedimenten. Während der Sedimentation und Diagenese dieser Sandsteine fand eine intensive Durchwässerung der Diskordanz/Regolith und der dortigen Störungen statt. Es bildeten sich dort nahe beieinanderliegende, oxidierende und reduzierende Bereiche, an deren Kontakte mächtige und reiche Uranlagerstätten entstanden.

Man unterscheidet hier:

- "unconformity contact" - Lagerstätten (Kanada)
- "subconformity strata/structure bound" - Lagerstätten (Australien)

2.4 oberflächennahe/supergene Urananreicherungen (Abb. 5)

Diese bilden sich fast ausschließlich in heißen, trockenen Gebieten und dort bevorzugt in karbonatischen, gipsreichen, fluviatilen Talfüllungen, in Eindampfungsseen, Lateriten und Trockensee-Sedimenten. Die Bildung dieser Urananreicherungen hängt von der Zusammensetzung des Protokes (z. B. U zusammen mit V), von der Mobilität (Komplexbildung), dem Migrationspfad (laterale Wasserbe-

wegungen) und den Ausfällfaktoren ab. Bei letzteren handelt es sich hauptsächlich um Veränderungen in den geochemischen Bedingungen wie z. B. Reduktionsfallen, Sorptionsprozesse, Verdampfung von Wasser, Vorhandensein von morphologischen Barrieren etc.

In borealen Klimabereichen kann es auch zu Anreicherungen in Bereichen kommen, die reich an organischem Material sind, wie z. B. in Torf.

Die kurze Zusammenfassung zeigt die extreme Vielfalt von Möglichkeiten, die zur Entstehung von Uranlagerstätten führen können. Betrachtet man nun die geochronologische Verteilung der Uranlagerstätten, so zeigt sich, daß sie auch in allen Ären der Erdgeschichte auftreten^[3] (Abb. 6). Dabei deutet sich jedoch an, daß mengenmäßig das meiste Uran im unteren und mittleren Proterozoikum, also zwischen ca. 1800 Mio und 1000 Mio Jahren, angereichert wurde.

3. *ausgewählte Beispiele zur Genese der wichtigen Uranlagerstätten*

Die magmatogenen Lagerstätten waren bis Ende der 60iger Jahre von wirtschaftlicher Bedeutung, die sich jedoch danach mit Ausnahme der Uranlagerstätte Rössing in Namibia zunehmend verloren hat. Da sie auch für Analogiestudien weniger wichtig sind, soll hier nicht näher auf diesen Lagerstättentyp eingegangen werden.

Um so bedeutender wurden in den letzten 20 Jahren die Lagerstätten in Sedimenten und vor allem die, die an der ausgeprägten Diskordanz zwischen dem unteren und mittleren Proterozoikum auftreten. Wegen des wirtschaftlichen Interesses sind diese Lagerstätten genauestens auf ihre Entstehungsgeschichte hin untersucht.

3.1 *roll front-Anreicherungstyp in Sandsteinen*

Diese Uranvorkommen sind an terrestrische Sedimente in einem stabilen, geologischen Domain gebunden. Sie liegen bevorzugt in fluviatilen Gesteinen, die von tonigen Serien über- und unterlagert sind, häufig saure granitische oder vulkanitische Komponenten und partienweise reichlich organisches Material enthalten und etwas an Uran angereichert sind.

Werden derartige Gesteinsserien regional gesehen etwas gehoben und werden dabei die Sedimentlagen etwas geneigt, so fließen Oberflächenwässer bevorzugt entlang den sandigen Lagen bzw. entlang den fluviatilen Sedimentstrukturen zur Teufe (Abb. 7). Dabei laugen die oxidierenden zum Teil huminreichen Wässer das Uran (auch V, Cu) aus den verwitterten Gesteinen aus, transportieren es zur Teufe, wo das Uran häufig zusammen mit Vanadium an der Redoxfront gefällt wird. Bei weiterer langsamer Hebung werden diese Anreicherungen wieder gelöst und zur Teufe hin erneut ausgefällt (Abb. 8, Abb.9). Bei der Lösung und Fällung des Urans spielen neben den wechselnden geochemischen Bedingungen das Vorhandensein von unterschiedlichen Huminsäuren eine besondere Rolle. In Kenntnis der geologischen Situation und der genauen Lösungs- und Fällungsmechanismen von Uran kann gezielt nach neuen Uranlagerstätten gesucht werden. [4] [5]

Der Metallinhalt solcher Lagerstätten liegt bei 5 - 30.000 t U_3O_8 , die Erzgehalte liegen bei 0,17 % U_3O_8 .

3.2 *an Diskordanzen gebundene Uranlagerstätten*

Obwohl die beiden Untervarianten dieses Uranlagerstättentyps sich auf den ersten Blick relativ stark ähneln, ist ihre Entstehungsgeschichte doch recht unterschiedlich. An beiden Beispielen kann jedoch unser inzwischen detailliertes

Wissen über die Genese, aber auch die Erhaltungsmechanismen großer Erzkörper gezeigt werden, obwohl auch hier noch Fragen offen bleiben.

3.2.1

Die kanadischen Vorkommen (Abb. 3, Abb. 10) treten störungsgebunden sowohl unter der unter-/mittelproterozoischen Diskordanz als auch in den darüberliegenden Sandsteinen auf. Das z. Z. favorisierte genetische Modell stellt sich vereinfacht wie folgt dar:^[6]

[7] [8]

- > Starke Einebnung und Lateritisierung der unterproterozoischen Metasedimente
- > Transgression von konglomeratischen, arkoseartigen Sandsteinen, die unter Red-bed Bedingungen abgelagert wurden
- > Als Protore werden sowohl die unterproterozoischen Metamorphite wie die davon abstammenden Sedimente des mittelproterozoischen Athabaskasandsteines angesehen.
- > Bei den mobilisierenden Wässern handelt es sich um salzhaltige, oxidierende, diagenetische Lösungen, die an Uran angereichert sind und wahrscheinlich Temperaturen von um 200° C hatten.
- > Diese Wässer migrierten bevorzugt entlang der Einebnungsfläche (Regolith) und entlang Störungen und führten dort zu intensiven Alterationszonen.
- > Die Wässer reagierten mit graphitreichen bzw. mit an organischem Material angereicherten Zonen (Aufnahme von CO₂ und Methan) und bekommen reduzierende Eigenschaften.
- > Uranfällung fand dort statt, wo die uranreichen, oxidierenden Lösungen mit methanhaltigen, reduzierenden Wässern in Be-

rührung kamen; d. h. die Erzzonen werden von den hydrogeologischen Wegsamkeiten kontrolliert.

- > Zusätzlich fand eine Fällung von Uran an tonhaltigem Material durch Sorption statt.
- > Wegen langanhaltendem hydraulischem Gleichgewicht - alte Schilde - konnten sich große Reicherzkörper bilden.
- > Alter der Mineralisation ca. 1.300 Mio Jahre.
- > Dieser Vorgang steht eventuell in engem Zusammenhang mit dem mafischen-Magmatismus (vor ca. 1300 Mio Jahren), während dem das Gebiet regional aufgewärmt wurde. Migrations- und Fällungsprozesse wurden eventuell auch durch Alterationsvorgänge (Desilifizierung, Chloritisierung, Illitisierung, Kaolinitisierung), die sich bevorzugt an den Kreuzungslinien Diskordanz mit Störungen bildeten, beschleunigt.
- > Das Reduktionspotential ist auch heute noch so groß, daß sich in den Wässern, die heute in der Nachbarschaft des Erzkörpers fließen, keine Urananomalien zeigen.

Einzelne Lagerstätten dieses Typs können über 150.000 t U_3O_8 enthalten und durchschnittliche Erzgehalte bis 8 % U_3O_8 erreichen.

3.2.2

Die australischen Uranlagerstätten (Abb. 4, Abb. 11, Abb. 12) liegen direkt unter der unter-/mittelproterozoischen Diskordanz. Eine Vererzung des darüberliegenden mittelproterozoischen Sandsteins (Kambolgie) ist nicht bekannt. Diese Lagerstätten sind somit älter als die in Kanada.

Die Genese der Lagerstätten wird wie folgt erklärt: [9] [10] [11]

- > Die archaischen Granite des Nanambu Complexes, die das Liefergestein für die unterproterozoischen Sedimente / Metasedimente darstellen, enthalten zwei bis sechs ppm-Uran.
- > Die durch die Sedimente migrierenden Lösungen waren meteorisch, oxidierend, schwach basisch; sie nahmen Uran auf.
- > Gefällt wurde das gelöste Uran adsorptiv an Tonmineralen, organischem Material in Redoxfallen oder wurde an Fe-Ti-Mn-Hydroxide gebunden.
- > Eine Anreicherung fand bevorzugt in pyrithaltigen Schwarzschiefern in der Nachbarschaft von carbonatischem Gestein statt.
- > Die Metamorphose (1800 Mio Jahre) führt zu keiner Veränderung der Urankonzentration.
- > Während der Wende unteres/mittleres Proterozoikums fand eine starke Erosion, Oxidation, Einebnung und Karstbildung der Metamorphite statt: ausgeprägte Diskordanz
- > Beim Beginn der Transgression: Füllung von Karsthohlräumen und Störungszonen mit Tonmineralen (hauptsächlich Chloriten), organischem Material
- > Anreicherung von Uran adsorptiv an Chloritminerale und organisches Material. Fällung von Uran an Redoxfallen, Anreicherung des Urans von über zehntausendfach
- > Alter der Mineralisation ist ca. 1700 Mio Jahre

Diese Lagerstätten stehen heute zum Teil an der Oberfläche an und abgesehen von einigen oberflächennahen Remobilisationen des Erzes, liegen die Erzkörper noch in der Form vor, wie sie sich vor 1700 Mio Jahren gebildet haben.

Die Lagerstätten dieses Typs können über 100.000 t U_3O_8 enthalten. Die Erzgehalte schwanken im allgemeinen zwischen 0,3 - 0,5 % U_3O_8 .

4. oberflächennahe, supergen gebildete Uranvorkommen

Wie bei allen anderen Uranlagerstätten auch muß in der Nähe dieser Lagerstätten an Uran vorangereichertes Gestein (saure Granite, saure Tuffe, Schwarzschiefer) anstehen. Dieses sollte unter relativ stark oxidierenden Bedingungen tiefgründig verwittert sein, um genügend Uran zu mobilisieren.

Prinzipielle Voraussetzungen zur Bildung derartiger Lagerstätten sind: [12] [13] [14] [15]

- Klimazonen:

In Wüstenzonen (in Calcrete, Silcrete, Salzseen, alkalinen Trockenseen) (Abb. 5, Abb. 13).

oder in borealem Klima, wo reichlich organisches Material auftritt (Torfgebiete, Sümpfe).

- Morphologie:

Vorhandensein von abgeschlossenen Becken, in die Oberflächenwässer entwässern (Abb. 14).

lineare Depressionen mit lateralem Grundwasserzufluß (fluviales Drainagesystem)

- Mobilisation:

Verfügbarkeit der Elemente: Mobilisation von Uran unter oxidierenden Bedingungen, auch von anderen Elementen wie Vanadium, aber auch Fe-, Mn-, Ti-hydroxiden oder -phosphaten.

- Verfügbarkeit von Komplexbildnern:

Bei entsprechendem pH- und Eh- Werten kann U^{6+} und UO_2^{+2} in vielfacher Menge durch Vorhandensein von Carbonaten, Sulfaten, Phosphaten, Silikaten, Fluoriden, Chloriten, Hydroxiden und Humatkomplexen transportiert werden.

- Fällungsanreicherung:

Durch Reduktion (in ariden Gebieten auch Reduktionsfallen) durch organisches Material, anärober, bakterieller Aktivität, H_2S -Gas und Redoxvorgänge bei Oxidation von Sulfiden.

Durch Sorption, vor allem an organischem Material, Ton, Zeolith, Phosphat und Hydroxiden.

Fällung von Uran aus den löslichen Komplexen. Die Stabilisierung findet vor allem durch Veränderung der geochemischen Bedingungen (pH, Eh) statt.

Verdunstung

- Erhalt der oberflächennahen Urananreicherungen

Diese Vorkommen sind recht instabil. Sie haben sich unter sehr spezifischen Bedingungen gebildet. Geringste Veränderungen des Milieus können sie weiter anreichern, aber auch schnell auflösen. Derartige Veränderungen können durch das Klima oder durch tektonische Vorgänge verursacht werden.

Diese Lagerstätten können bis zu 30.000 t U_3O_8 enthalten. Die durchschnittlichen Erzgehalte liegen jedoch unter 0,25 % U_3O_8 .

5. Zusammenfassung

Nach einer übersichtsmäßigen Gliederung von Uranlagerstätten nach genetischen Gesichtspunkten habe ich versucht, anhand von Beispielen darzustellen, daß man die komplexe Entstehungsgeschichte vieler Uranlagerstätten recht gut kennt.

Es sollte aber auch gezeigt werden, daß wir sehr gut über die Erhaltungsgeschichte von natürlichen Urankonzentration über sehr lange Zeiträume Bescheid wissen. Warum sollte es uns nicht gelingen dieses Wissen für die lange Lagerung von radioaktiven Abfällen zu nutzen und dies der interessierten Öffentlichkeit, im Zusammenhang mit dem langen Erhalt von Lagerstätten mit hohem Aktivitätsinhalt, zu erklären ?

Literaturverzeichnis

1. **Dahlkamp F.J.:** Classification scheme for ore deposits - A state of the art review. In: Metallogenesis of Uranium Deposits, IAEA, Vienna, 1-31 (IAEA - TC - 542/3), 1989.
2. **Maucher A.:** Die Lagerstätten des Urans. In: Die Wissenschaft, Bd. 119, Friedr. Vieweg & Sohn, Braunschweig, 162, 1962
3. **Barthel F., Dahlkamp F.J., Fuchs H., Gatzweiler R.:** Kernenergierohstoffe. In: Angewandte Geowissenschaften Bd. IV, Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 269-298, 1986.
4. **Adler H.H., Sharp B.J.:** Uranium ore rolls - Occurrences, genesis and physical and chemical characteristics. In: Uranium Districts of Southeastern Utah, Utah Geological Soc., Salt Lake City, Utah, 53-77, 1967.
5. **Fischer R.P.:** Exploration Guides to New Uranium Destricts and Belts. In: Econ. Geol., vol. 69, 362-376, 1974.
6. **Hoeve J., Sibbald T.J.J., Ramaekers P., Lewry J.F.:** Athabasca basin unconformity-type uranium deposits: A special class of sandstone-type deposits? In: Uranium in the Pine Creek Geosyncline, IAEA, Vienna, 575-594, 1980.
7. **Ruzicka V.:** Unconformity-related Uranium Deposits in the Athabasca Basin Region, Saskatchewan. In: Proterozoic Unconformity and Stratabound Uranium Deposits, IAEA-TEC-DOC, Vienna, 315, 219-267, 1984.
8. **Sibbald T.I.I.:** Geology and Genesis of the Athabasca Basin Uranium Deposits in Recognition of Uranium Provinces, IAEA, Vienna, 61-105 (IAEM-TC-450.5/4), 1980.

9. **Needham R.S., Roarty M.J.:** An overview of metallic mineralisation in the Pine Creek Geosyncline. In: Uranium in the Pine Creek Geosyncline, IAEA, Vienna, 157-173, 1980.
10. **Gustafson U. B., Curtis U.W.:** Post Kombolgie Metasomatism at Jabiluka, Northern Territory, Australia and It's Significance in the Formation of High-Grade Uranium Mineralisation in Lower Proterozoic Rocks; Econ. Geol., vol. 78, 26-56, 1983.
11. **Ewers G.R., Ferguson J., Needham R.S., Donnelly T.H.:** Pine Creek Geosyncline. In: Proterozoic and Stratabound Uranium Deposits, IAEA, Vienna 135-205, IAEA-TECDOC-315, 1984.
12. **Toenes P.D., Hambleton-Jones B.B.:** Definition and Classification of Surficial Uranium Deposits in Surficial Uranium Deposits, IAEA, Vienna 9-14 (IAEA-TECDOC-322), 1984.
13. **Boyle D.R.:** The Genesis of Surficial Uranium Deposits. In: Surficial Uranium Deposits; IAEA, Vienna 45-52, (IAEA-TECDOC-322), 1984.
14. **Cameron E.:** The Yeelirrie Calcrete Uranium Deposit, Western Australia. In: Surficial Uranium Deposits IAEA, Vienna, 157-164 (IAEA-TECDOC-322), 1984.
15. **Hambleton-Jones B.B.:** Surficial Uranium Deposits in Namibia. In: Surficial Uranium Deposits, IAEA, Vienna, 205-216 (IAEA-TECDOC-322), 1984.

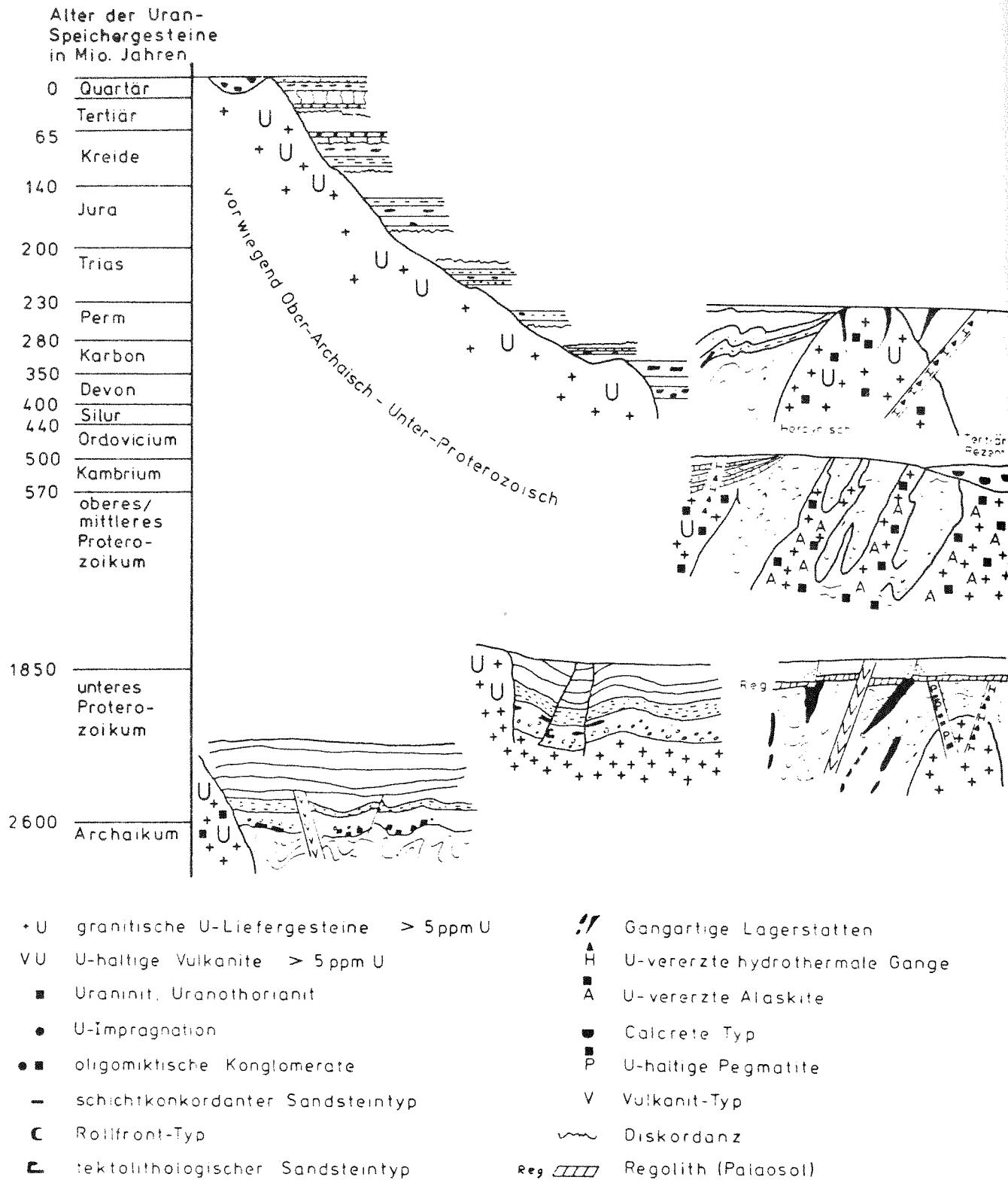


Abb. 3.3 Schematisches Profil der chronologischen und metallogenetischen Beziehungen zwischen Uranspeicher-Formationen und Lagerstätten (nach DAHLKAMP 1979a)

Type

3. VEIN (1)

Subtype

3.1 granite related

Class 3.1.1 intragranitic

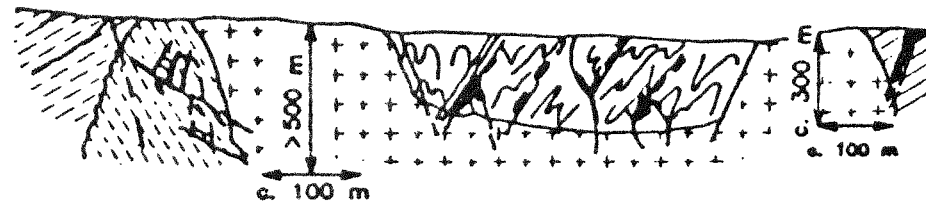
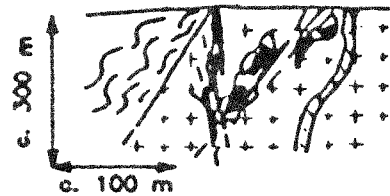
3.1.2 perigranitic


3.1.1.1 vein
3.1.1.2 episyenite


3.1.2.1
in (meta)sediments,
monometallic

3.1.2.2
in metasediments,
polymetallic

3.1.2.3
in contact
metamorphics



 vein U mineralization

 episyenite U mineralization

 leucocratic differentiated granite

 lamprophyre and other dykes

 contact metamorphic aureole

 fault

 sediments

 metasediments

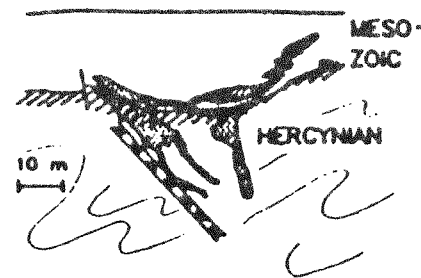
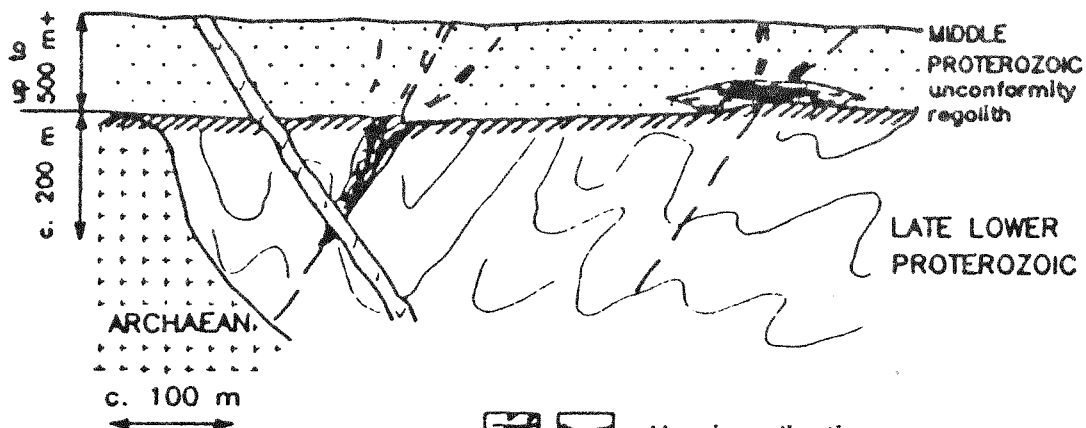


Type 1. UNCONFORMITY CONTACT
 (associated with lateritically weathered crystalline basement)








Subtype 1.1 Middle Proterozoic unconformity related

Class 1.1.1 fracture bound 1.1.2 clay bound

1.2 Phanerozoic unconformity related



  U mineralization

- | | | | |
|---|-------------------------|---|-----------------|
|  | clastic cover sediments |  | diabase dyke |
|  | ancient complex |  | clay enrichment |
|  | metasediments |  | fault |
|  | regolith | | |

Type

2. SUBUNCONFORMITY-EPIMETAMORPHIC
(strata-structure bound in Late Lower Proterozoic metasediments)

Subtype

2.1 non-albitized metasediments

2.2 albitized metasediments

Type examples (class)

a) Jabluka,
Koongara

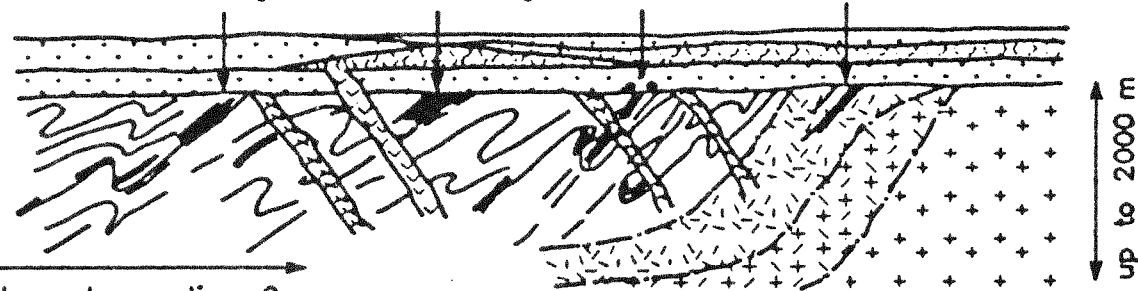
b) Ranger I,
Rum Jungle

c) Fay,
Verna

d) Gunnar

EARLY
MIDDLE
PROTEROZOIC

LATE LOWER
PROTEROZOIC



increase of Na metasomatism ?
increased development of
pegmatites and anatexites ?

U mineralization



clastic cover sediments and volcanics



dolerite



metasediments



pegmatite



Na metasomatite-albitite, migmatite



fault, breccia



anatexite



transitional facies contact



late orogenic intrusive

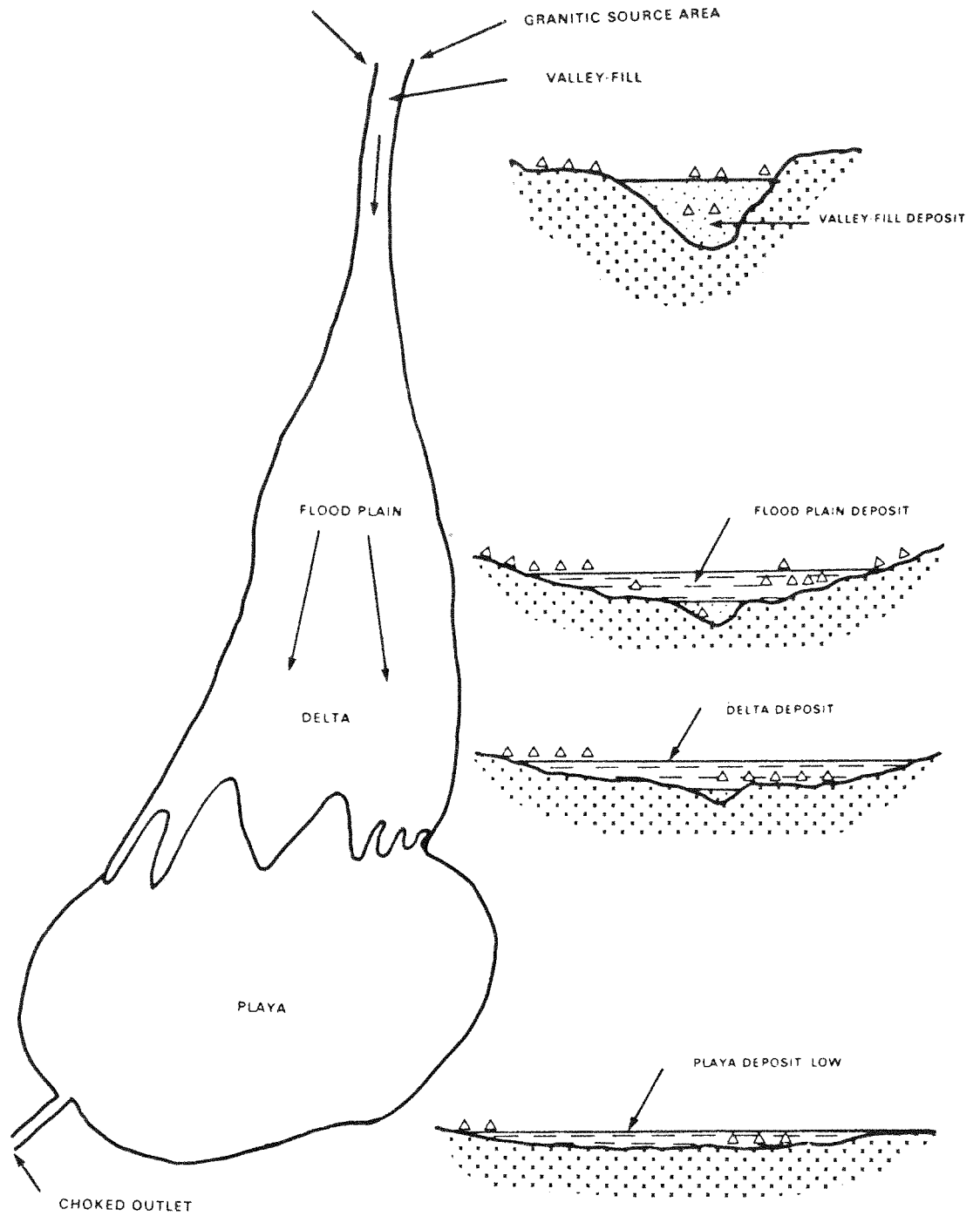


Figure 1
Schematic presentation of the location of valley-fill, flood plain, deltaic and playa deposits within a drainage system. Intercolated pedogenic deposits (Δ) representing period of quiescence are dispersed throughout the successions.

ARA		OROGENESE	ABSOLUT. ALTER in Mio. Jahren	TYPEN DER URANLAGERSTATTEN Geordnet nach wirtschaftlichen Gesichtspunkten 1 2 3 weitere					
PHANEROZOIKUM	KANOZOIKUM	ALPIDISCH	0 - 70	Wyoming ☾	W-Australien ☉ ■ Verschiedene	P =			
	MESOZOIKUM	LARAMISCH KIMMERISCH	70 - 225	New Mexico, USA ■ M-Europa	☾ / ▲ Verschiedene	N-Afrika P =			
	PALAOZOIKUM	VARISZISCH KALEDONISCH	225 - 600	▲ Variszikum	■ Europa	V S =			
PRÄKAMBRIUM	oberes PROTEROZOIKUM	ASSYNTISCH	600 - 900	◆ Rössing Namibia	▲ Shinkolobwe, Zaire	◆			
	mittleres PROTEROZOIKUM	GRENVILLE	900 - 1750						
	unteres PROTEROZOIKUM	HUDSONISCH	1750 - 2 500	▼ Athabasca, Kanada Alligator R. Australien	▲ Gabun	V ●			
	ARCHAIKUM	KENORISCH LAURENTISCH	≥ 2 500	● Witwatersrand, S.-Afrika Elliot Lake, Kanada					
<p style="text-align: center;">TYPEN DER URANLAGERSTATTEN</p> <table style="width: 100%; border: none;"> <tr> <td style="width: 33%; vertical-align: top;"> <ul style="list-style-type: none"> ● Konglomerat Typ ■ Sandstein Typ. penekondant ☾ Sandstein Typ. Roll-Front ▲ Sandstein Typ. Stack-Vererzung </td> <td style="width: 33%; vertical-align: top;"> <ul style="list-style-type: none"> ▼ Gangartiger Typ ▲ Gänge (hydrothermal) ◆ Intraintrusiver Typ ☉ Calcrite Typ </td> <td style="width: 33%; vertical-align: top;"> <ul style="list-style-type: none"> V Vulkanite S Schwarzschiefer P Phosphate </td> </tr> </table>							<ul style="list-style-type: none"> ● Konglomerat Typ ■ Sandstein Typ. penekondant ☾ Sandstein Typ. Roll-Front ▲ Sandstein Typ. Stack-Vererzung 	<ul style="list-style-type: none"> ▼ Gangartiger Typ ▲ Gänge (hydrothermal) ◆ Intraintrusiver Typ ☉ Calcrite Typ 	<ul style="list-style-type: none"> V Vulkanite S Schwarzschiefer P Phosphate
<ul style="list-style-type: none"> ● Konglomerat Typ ■ Sandstein Typ. penekondant ☾ Sandstein Typ. Roll-Front ▲ Sandstein Typ. Stack-Vererzung 	<ul style="list-style-type: none"> ▼ Gangartiger Typ ▲ Gänge (hydrothermal) ◆ Intraintrusiver Typ ☉ Calcrite Typ 	<ul style="list-style-type: none"> V Vulkanite S Schwarzschiefer P Phosphate 							
<p>GEOCHRONOLOGISCHE VERTEILUNG DER U-LAGERSTATTENTYPEN (nach DAHLKAMP 1980)</p>									

Abb. 3.1 Geochronologische Verteilung der Uranlagerstätten-Typen (nach DAHLKAMP 1979a)

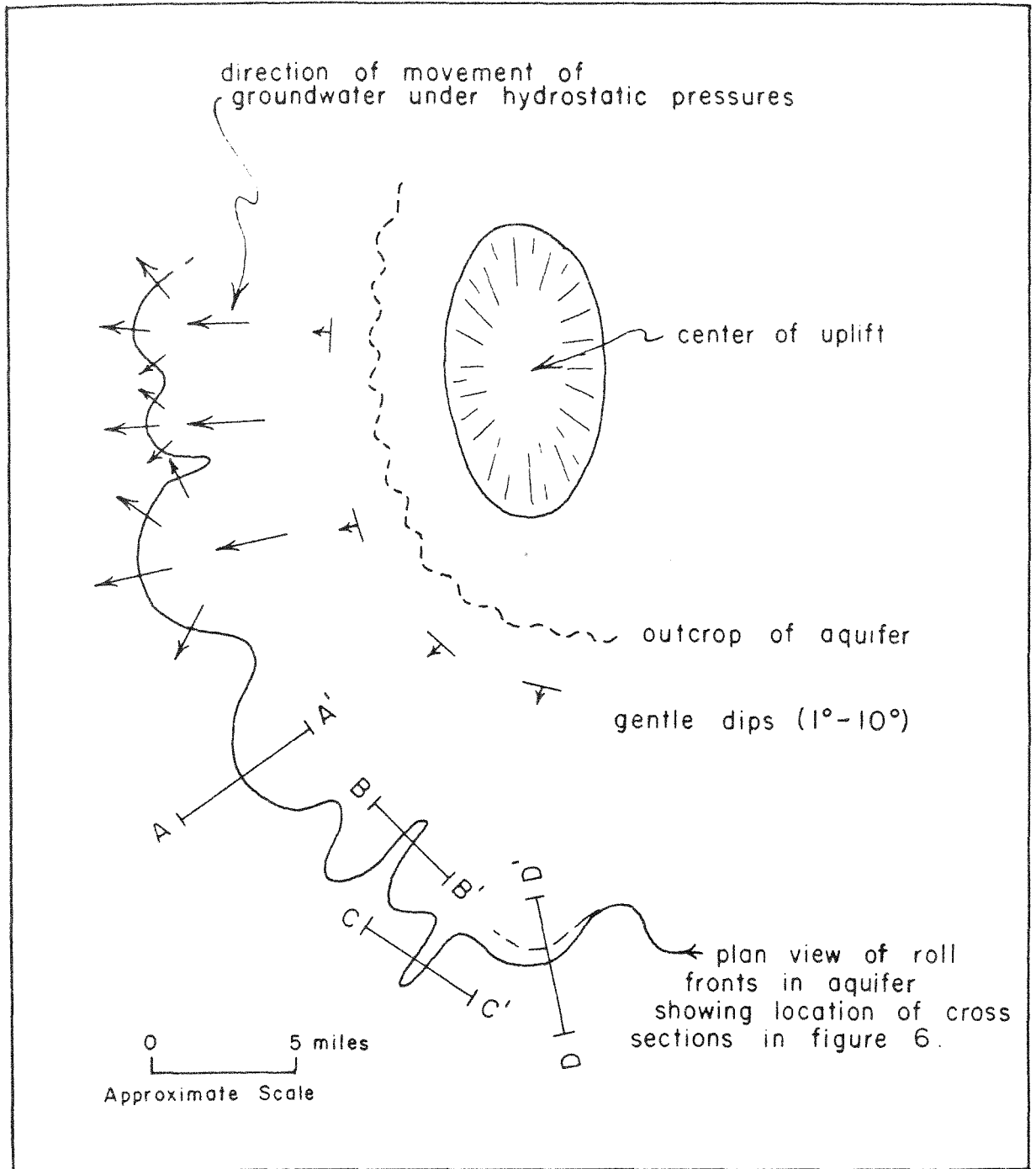


Figure 5. — Diagrammatic illustration in plan of an uplift area showing downdip location of roll fronts in a flanking sandstone aquifer.

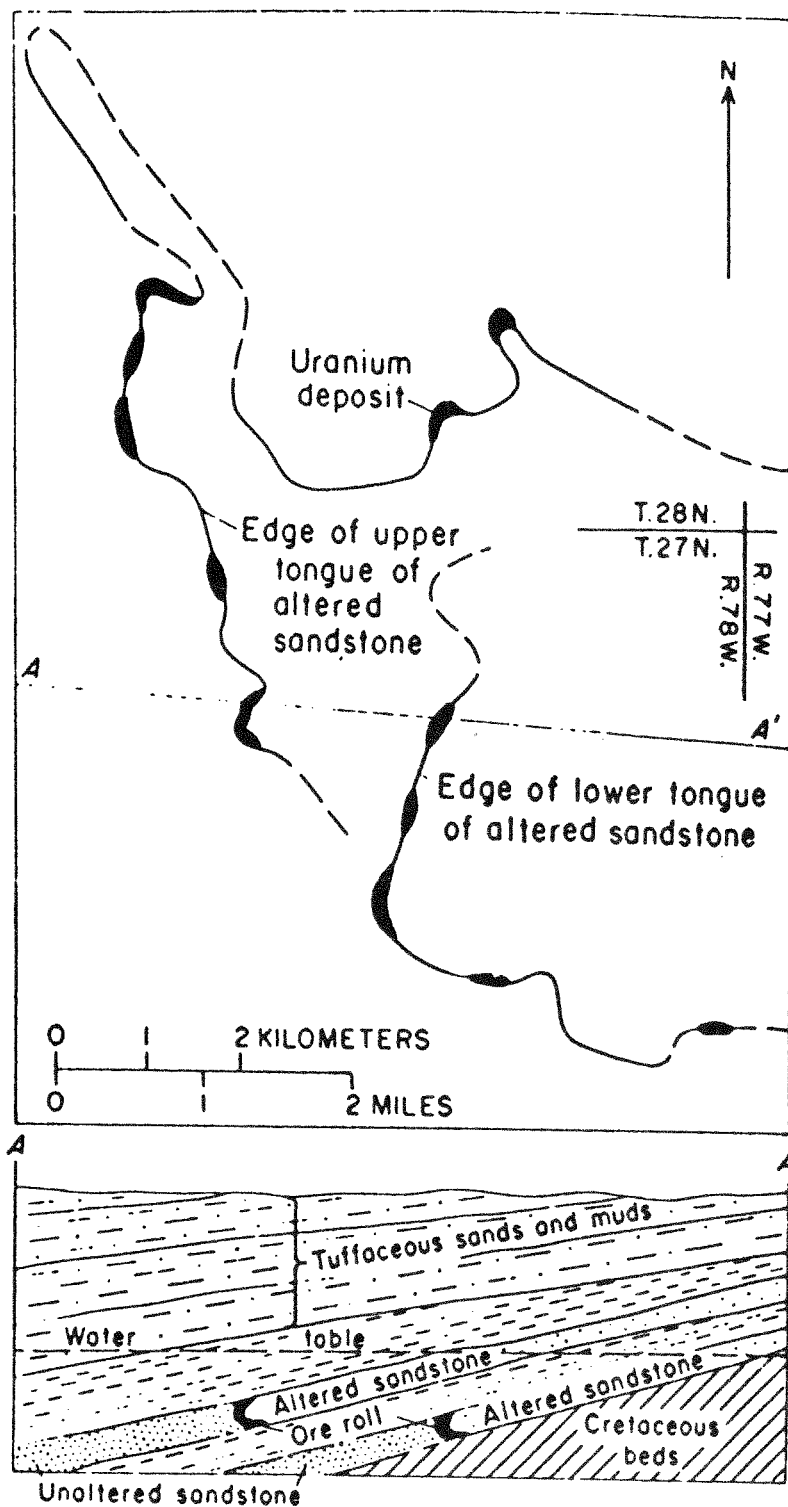


FIG. 2. Map of the Shirley Basin area, Wyoming, (modified from Harshman, 1968) and a schematic cross section showing uranium deposits and tongues of altered sandstone at the time of ore formation.

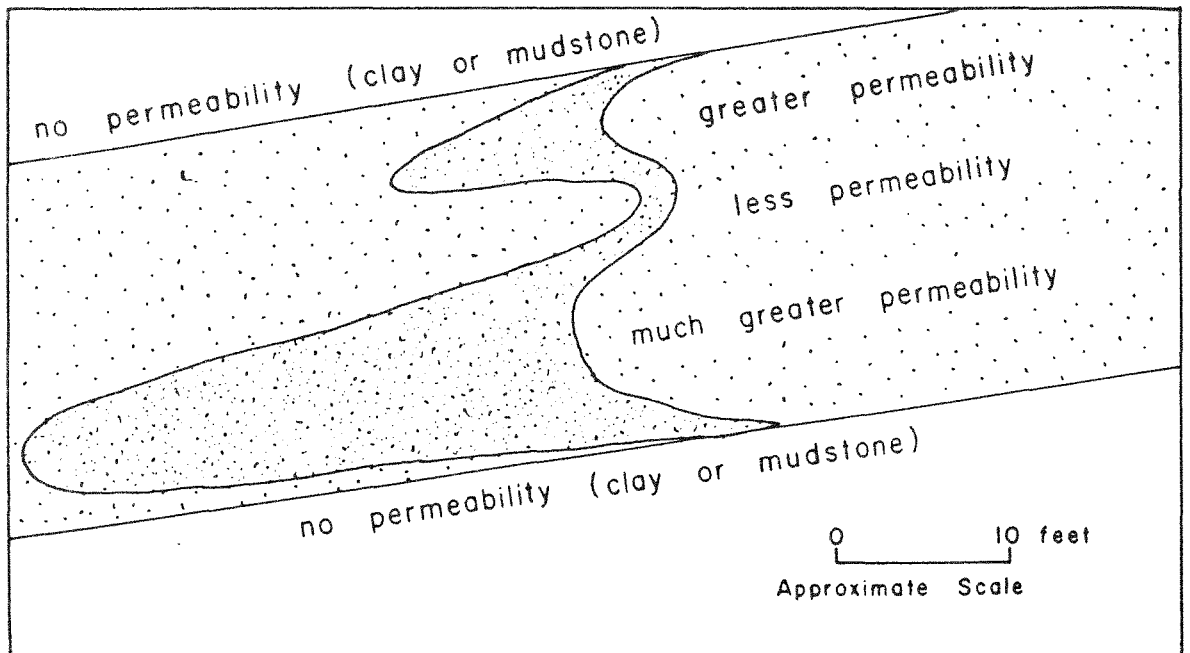


Figure 1. — Schematic cross-section of a sandstone aquifer showing uranium ore-roll development by invasion of oxygenated water into the water-saturated strata below the water table.

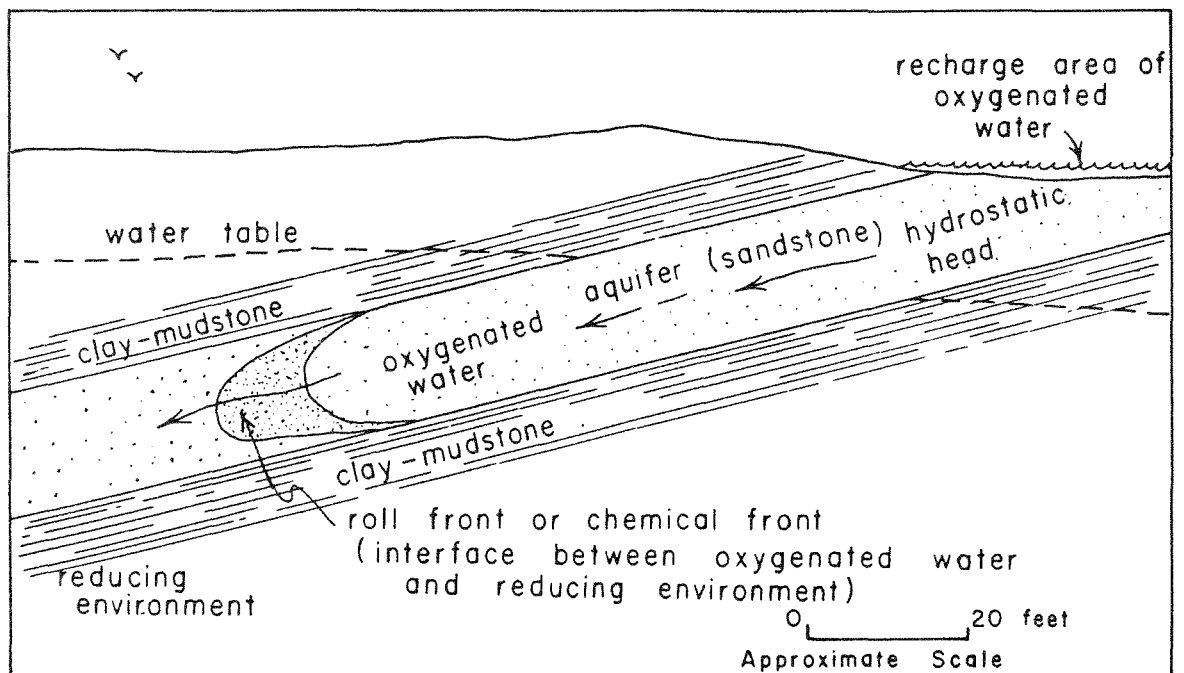


Figure 2. — Cross-section of a sandstone aquifer showing effects of variable permeability on uranium distribution behind roll fronts.

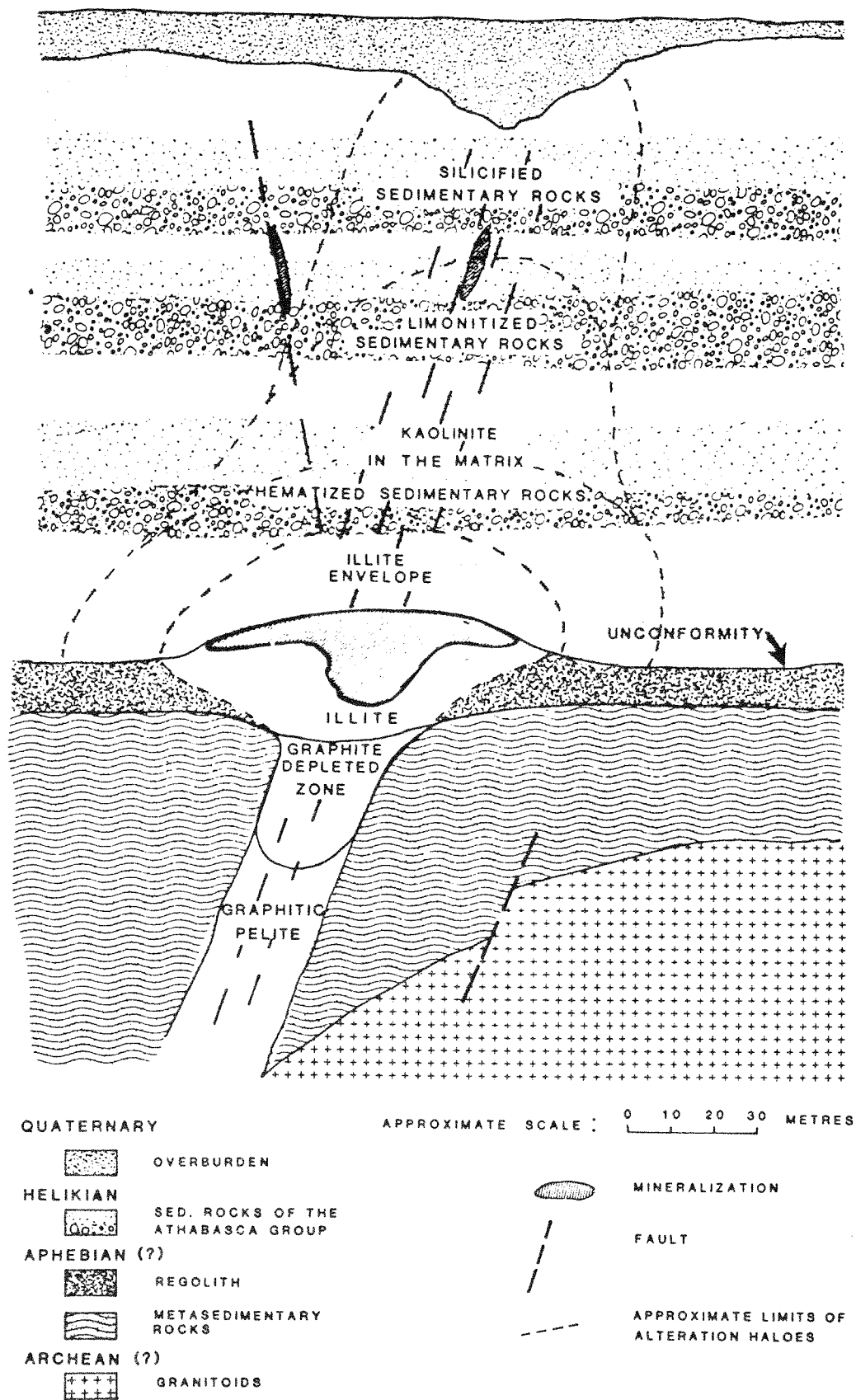


Figure 2. A generalized cross section through a mineralized body associated with the sub-Athabasca unconformity.

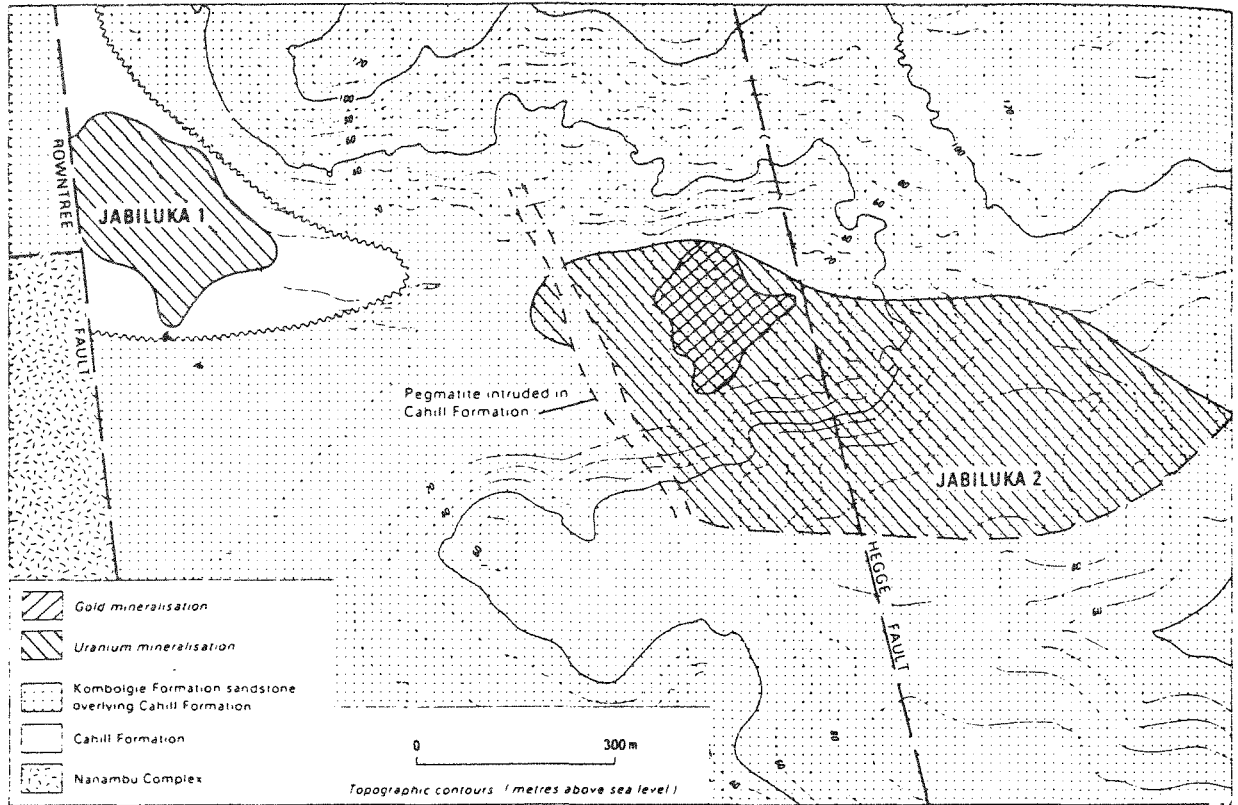


Fig 8. Solid geology of Jabiluka 1 and 2 uranium-gold deposits (adapted from revised unpublished data by courtesy of Pancontinental Mining Ltd)

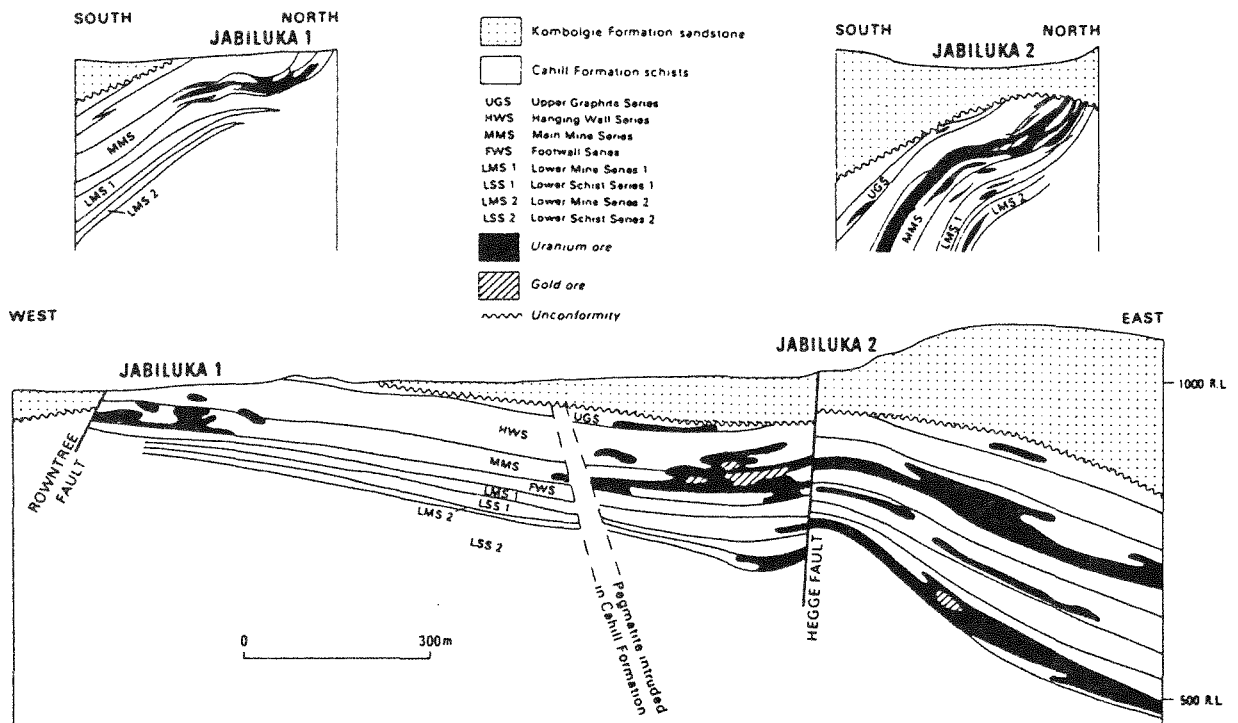


Fig 9. Generalised long-section and cross-sections of Jabiluka 1 and 2 uranium-gold deposits (adapted from revised, unpublished data by courtesy of Pancontinental Mining Ltd)



POST-KOMBOLGIE METASOMATISM, JABILUKA, AUSTRALIA

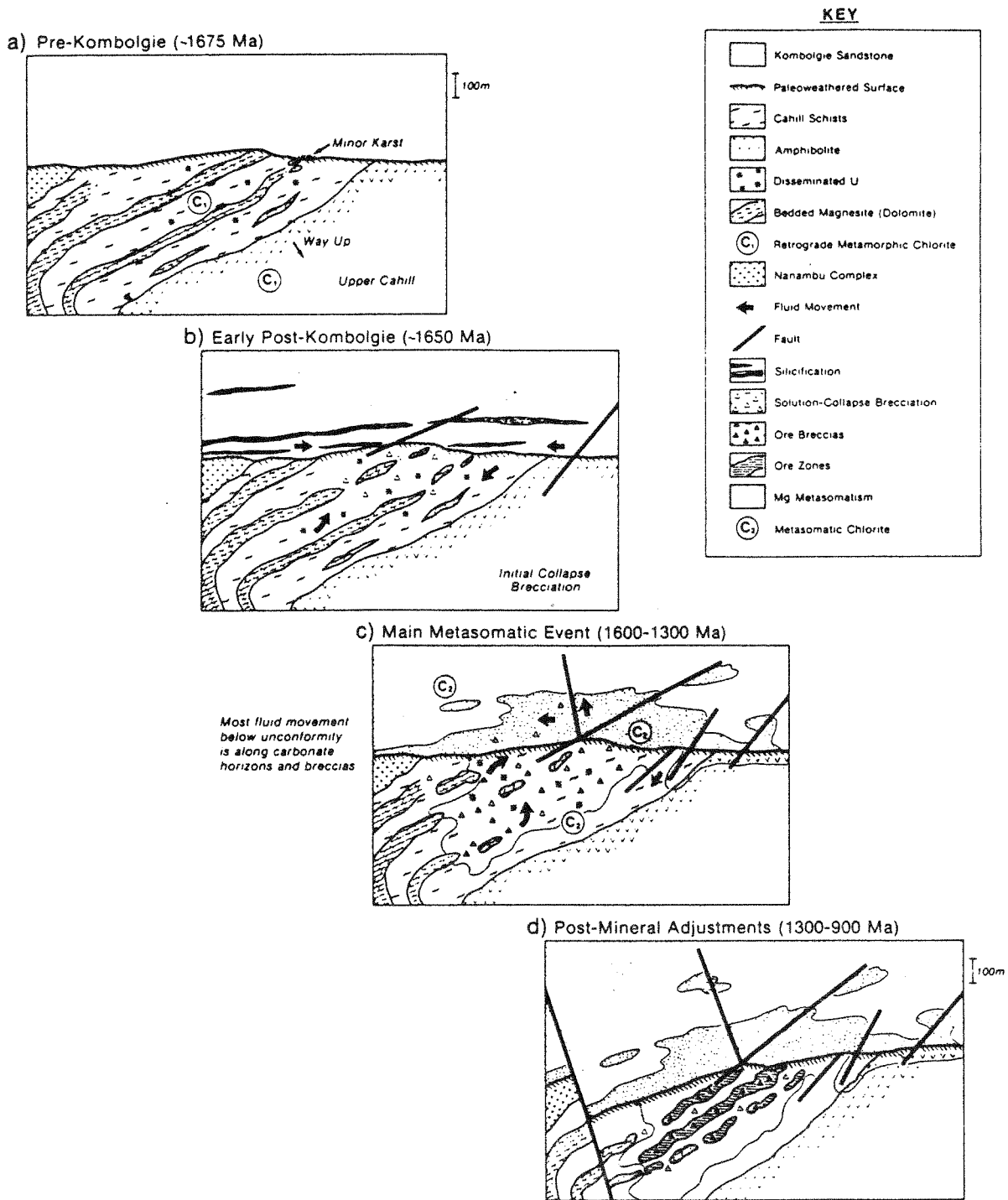


FIG. 18. Proposed genetic model for mineralization and alteration at Jubiluka. a. Pre-Kombolgie time (~1,675 m.y.). b. Early post-Kombolgie time (~1,650 m.y.), compaction and diagenesis of sandstone. c. Main metasomatic event (1,600–1,300 m.y.), regional heating and ground-water convection. d. Carpentarian (1,300–900 m.y.) uplift, faulting, and minor redistribution of ore.

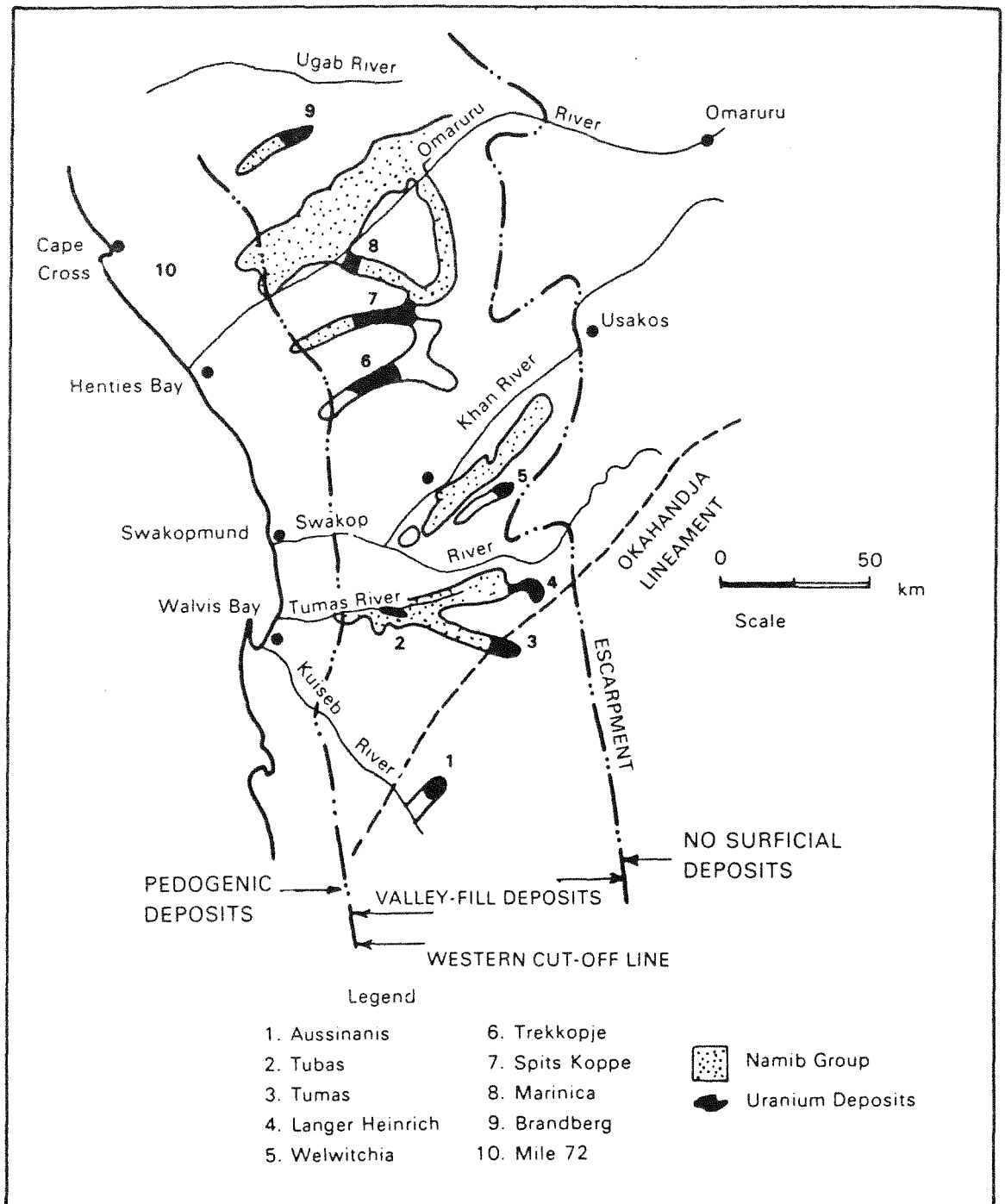
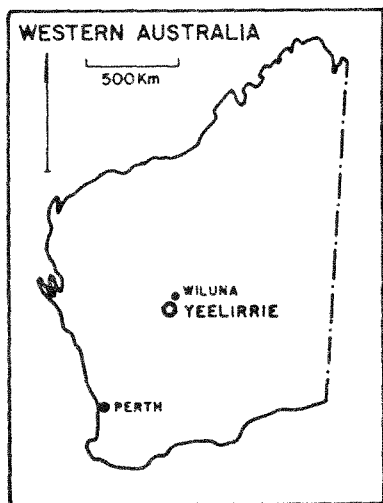
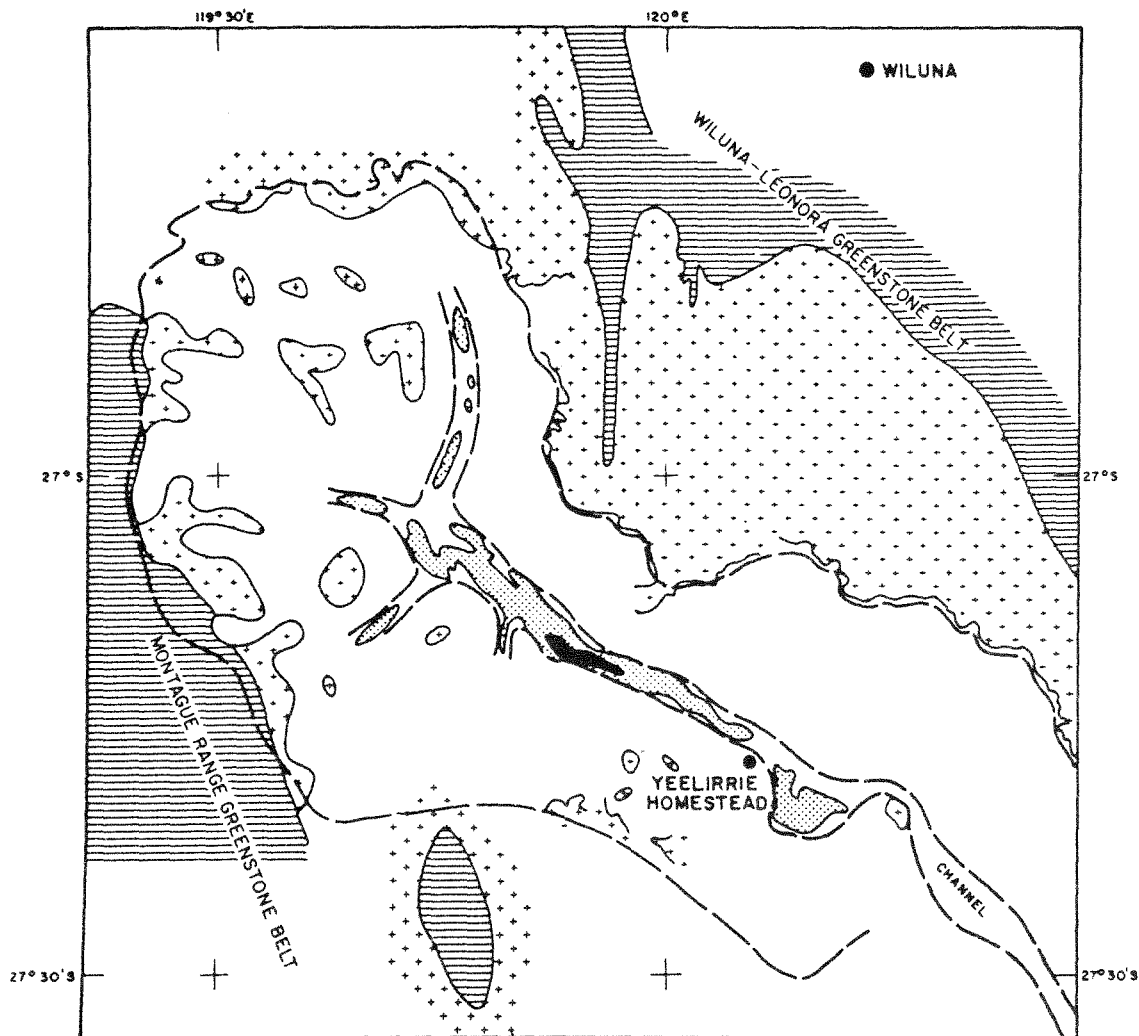


Figure 1
The distribution of the surficial uranium deposits in the Namib Group.



0 5 10 15 20 25km







-  ALLUVIUM
 -  MAFIC VOLCANICS AND SEDIMENTS
 -  GRANITE AND GNEISS
 -  CALCRETE
 -  ORE BODY
 -  YEELIRRIE CHANNEL CATCHMENT AREA
- } ARCHAEOAN

Figure 1
Location and regional geology

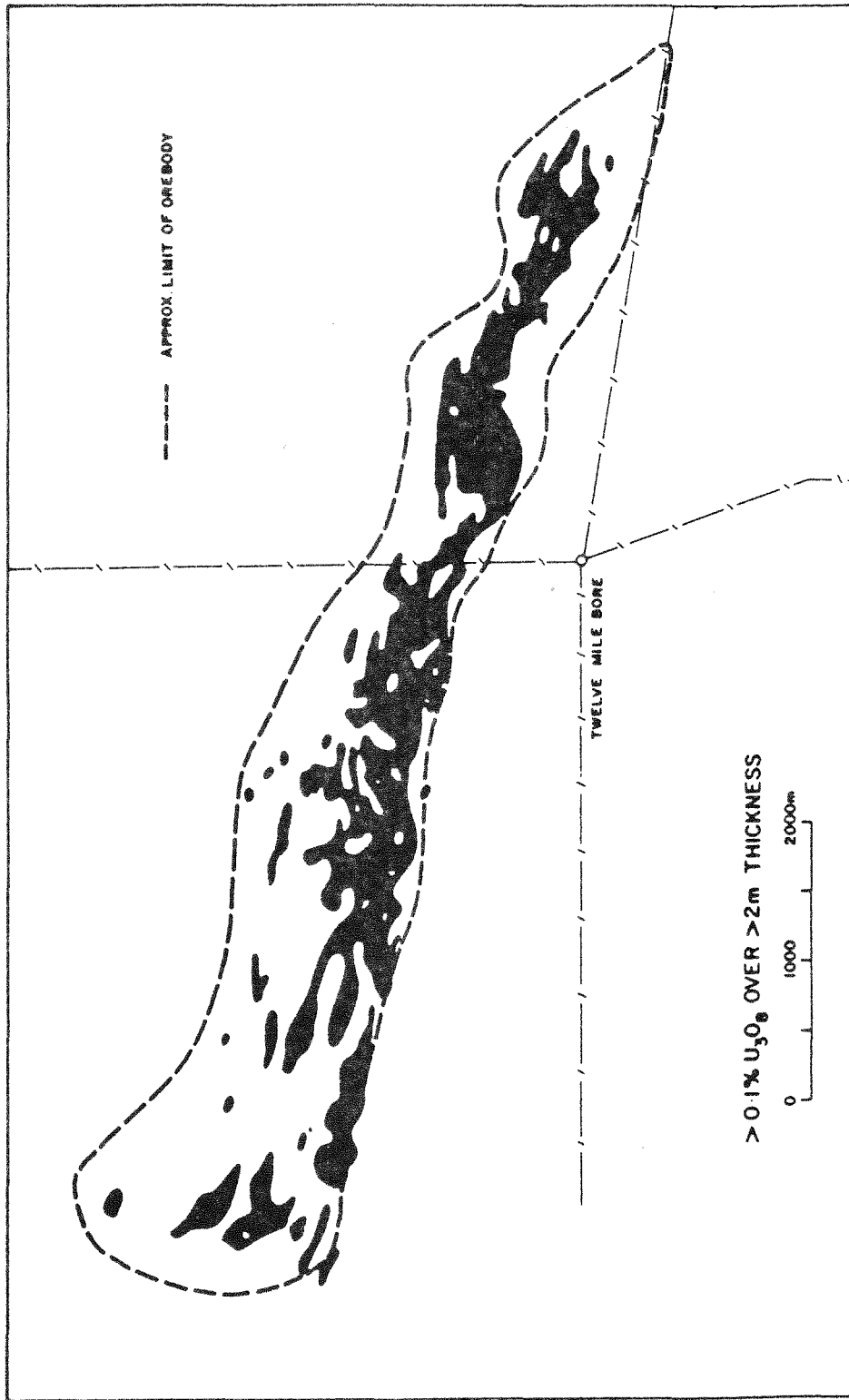


Figure 3
Grade distribution

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Natürliche Analoga für
HAW-Abfallgebinde**

**B. Grambow
KfK-INE**

Natürliche Analoga für HAW-Abfallgebinde

B. Grambow, Kernforschungszentrum Karlsruhe, Institut für Nukleare Entsorgungstechniken, Postfach 3640, 76021 Karlsruhe

Einführung

Die Sicherheitsforschung zur Endlagerung radioaktiver Abfallstoffe hat die Bewertung der Effektivität der Isolation und Immobilisation von Radionukliden in tiefen geologischen Formationen (z.B. Salz) zum Ziel. Sicherheitskriterium ist es, daß kein Individuum zukünftiger Generationen einer Gefährdung durch freiwerdende radioaktive Stoffe ausgesetzt wird, wobei die Grenzwerte der Strahlenschutzverordnung zugrunde gelegt werden. Die hochradioaktiven Abfallgebinde sind die innerste Barriere gegen die Freisetzung von Radionukliden, sozusagen der Kern des Isolationssystems. Ihrer Stabilität muß dementsprechend besondere Aufmerksamkeit geschenkt werden, will man die Sicherheit der Endlagerung bewerten.

Die Langzeitsicherheitsanalyse basiert auf experimentellen Beobachtungen, Modellen und Szenarien. Die Relevanz von experimentellen Resultaten, die Validität von Modellvorstellungen und die Vollständigkeit von Szenarien muß nachgewiesen werden. Hier kommen die natürlichen Analoga ins Spiel, d.h. natürliche geologische Prozesse, Ereignisse, Materialien oder Systemkonfigurationen, deren Studium zum Verständnis des Endlagersystems beiträgt. Dabei soll nicht der Eindruck erweckt werden, es sei möglich, über den Hinweis auf ein ideales Analogon eine Vorhersage zu untermauern, es wäre auch wissenschaftlich unredlich. Oder um es mit W. Ostwald (1911) zu sagen: *"So kann die Wissenschaft keineswegs die genaue Bahn bestimmen, die ein jeder Punkt eines geworfenen Steins zurücklegen wird, sondern sie kann nur einen gewissen breiten Raum nachweisen, innerhalb dessen die Bewegung jedenfalls bleiben wird, und dieser Raum ist um so breiter, je weniger die Wissenschaft des betreffenden Gebiets vorgeschritten ist. Ebenso verhält es sich mit jeder anderen Vorausbestimmung auf Grund von Naturgesetzen. Es wird durch diese immer nur ein gewisser Rahmen angegeben, innerhalb dessen das Ding bleiben wird; welche aber von den unendlich vielen Möglichkeiten innerhalb dieses Rahmens hernach Wirklichkeit werden wird, läßt sich mit menschlichen Kräften niemals eindeutig bestimmen."* Es geht bei der wissenschaftlichen Anwendung natürlicher Analoga darum, die Zahl der möglichen Entwicklungsszenarien eines Endlagersystems einschränken zu können, Mögliches von Unmöglichem zu scheiden, um dann im Rahmen der Sicherheitsanalyse Konsequenzen (Dosis, Risiko) ebenso für wahrscheinliche wie für "worst-case" Szenarien zu ermitteln.

Natürliche Analoga - aber keine Analogieschlüsse

Natürliche Analoga wurden in den letzten Jahren mehr und mehr zur Abstützung und Illustration von Langzeitaussagen verwendet. Es ist interessant, sich der Bedeutung des Begriffes zu vergewissern. Analogon bedeutet im Griechischen "Das richtige

Verhältnis" was von Cicero mit "proportio" und "comparatio" ins lateinische übersetzt wurde, wobei es um die Entsprechung, die Ähnlichkeit geht, d.h. um die Übereinstimmung des Verschiedenen in einer Reihe von Merkmalen. Die Verschiedenheit ist somit ebenso Konstitution für ein Analogon wie die Übereinstimmung. Ein perfektes Analogon, etwa in dem Sinne, daß wir alle wesentlichen Aspekte eines Endlagersystems in der Natur zusammen vorfinden würden, ist nicht nur unmöglich, es ist ein Widerspruch in sich. Die Analogie ist nach Kant wie die Induktion *"nützlich und unentbehrlich zum Behuf der Erweiterung unserer Erfahrungserkenntnis. Da sie aber nur empirische Gewißheit gibt, so müssen wir uns ihrer mit Behutsamkeit und Vorsicht nähern."* Das heißt in unserem Zusammenhang, daß wir die Anwendbarkeit von einem natürlichen Analogon selbst zum Gegenstand der wissenschaftlichen Erörterung machen müssen.

Es ist in diesem Sinne ein wichtiger Unterschied zu machen zwischen einer nur auf äußerer Ähnlichkeit beruhenden Analogie und einer Analogie, die auf der fundamentalen Gleichheit der ihr zugrunde liegenden Prozesse beruht. Um eine sinnvolle Analogie handelt es sich z.B. beim Vergleich der Jupitermonden Galileis mit dem kopernikalischen Sonnensystem. Hier läßt sich aus der Kenntnis des einen Systems auf das andere schließen. Hingegen ist der Vergleich zwischen Atomsystem und Sonnensystem unsinnig, denn die Analogie ist nur äußerlich und deshalb ist aus dem Vergleich nichts zu lernen. Es gilt also, äußerliche Analogieschlüsse zu vermeiden. Es ist unsinnig auf die Existenz 100 Millionen Jahre alter Gläser oder die 2 Milliarden Jahre Stabilität des Oklo-Reaktors und die teilweise geringe Beweglichkeit der Radionuklide zu verweisen, als Argument für die Sicherheit der Endlagerung hochradioaktiver Abfallstoffe. Sicherlich lassen diese Befunde uns hoffen, daß es auf der Erde Bedingungen gibt, unter denen Festkörper quasi ewig unverändert bleiben. Aber ebensowenig sollte man vergessen, daß es auch Bedingungen gibt, etwa bei thermischen Quellen in Island, unter denen natürliche Gläser nur hunderte von Jahren alt werden. Aus der Analogie des Oklo-Reaktors können wir nur insoweit etwas über die Langzeitstabilität direkt endgelagerter abgebrannter atomare Brennstoffe lernen, als die Stabilität von Uraninit (UO₂) in der Natur an das Vorherrschen reduzierender Bedingungen gebunden ist, und derartige Bedingungen durch die massiven Eisenmengen des Polluxbehälters im deutschen Endlager über lange Zeiten eingestellt bleiben könnten. Hinsichtlich der geringen Beweglichkeit der Radionuklide am Oklo-Reaktor gilt es jedoch zu bemerken, daß diese an das Vorhandensein großer Mengen von Tonmineralien gebunden ist und es sei auf das Fehlen dieser Materialien im deutschen Endlager hingewiesen. Will man die Beweglichkeit von Radionukliden bei der direkten Endlagerung mit Hilfe natürlicher Analoga unter reduzierenden Bedingungen untersuchen, so könnte man vielleicht die Rückhaltung von Spurenstoffen an archäologischen, teilweise korrodierten Eisensunden studieren.

Begrenzte Aussagekraft experimenteller Untersuchungen

Natürliche Analoga für HAW-Abfallgebinde sind das Thema der vorliegenden kurzen Abhandlung. Da ihre Bedeutung und Rolle jedoch erst vor dem Hintergrund der

begrenzten Aussagekraft experimenteller Arbeiten und theoretischer Modelle deutlich in Erscheinung tritt, seien jene zuerst behandelt.

Experimentelle Untersuchungen haben das Ziel, die für die Freisetzung von Radionukliden wesentlicher Prozesse zu identifizieren und zu quantifizieren. Im Hinblick auf HAW-Abfallgebinde konzentrieren sich die experimentellen Untersuchungen auf ihre chemische Stabilität ("Auslaugversuche"), weil nur über die Reaktion der Abfallformen mit fluiden Phasen Radionuklide remobilisiert werden können. Untersuchungen zur thermischen, mechanischen und Strahlenstabilität sind nur im Hinblick auf die chemische Stabilität und die Fähigkeit zur Rückhaltung von Radionukliden relevant, sehen wir einmal von der Transport- und Zwischenlagerfähigkeit der Abfallprodukte ab.

Aussagen aus Experimente haben drei wesentliche Einschränkungen: (1) den begrenzten Zeithorizont, (2) den kleinen räumlichen Abmessungen des untersuchten Systems und (3) artifiziellen Randbedingungen, d.h. daß relevante experimentelle Resultate immer von Artefakten unterschieden werden müssen. Im Hinblick auf die Aussagekraft von Korrosionsexperimenten mit HAW-Glas, abgebranntem Brennstoff oder mit Behältermaterialien auftreten, stellt sich z.B. die Frage, ob das experimentelle Verhältnis von Probenoberfläche zu Lösungsvolumen statischer bzw. dynamischer Versuche sich auf die natürlichen Bedingungen übertragen läßt, wo vielleicht Zeiten mit Wasserkontakt abgelöst werden von Zeiten der Trockenheit, oder von Zeiten, in denen Wasserdampfkorrosion vorherrscht. Andere Fragen sind, ob die gleichen Reaktionsprodukte in geologischen Zeiträumen zu erwarten sind, wie man sie in maximal 10-jährigen Laborexperimenten vorfindet, oder ob die Versuchsbehälter durch Sorption ausgelaugter Stoffe oder durch Freisetzung seiner Bestandteile die Versuchsergebnisse in einer Weise beeinflußt, die die Relevanz der experimentell determinierten Aussagen beeinträchtigt. Viele natürliche Randbedingungen lassen sich im Experiment nur schwer nachstellen. So kann man zwar den Einfluß des CO_2 Gehaltes der Grundwässer oder der Laugenvorkommen durch die Einstellung des CO_2 Partialdruckes der experimentellen Konfiguration simulieren, aber in der Natur kontrollieren oft Mineralien oder sich zersetzende organische Materialien den CO_2 -Gehalt der natürlichen aquatischen Systeme. Die Evolution des pH-Wertes im Verlaufe der Auflösungsreaktion eines Festkörpers ist durchaus unterschiedlich, je nachdem ob eine Gasphase oder eine Mineralphase den CO_2 Gehalt kontrolliert. So kann der Verlauf einer Reaktion durchaus stark von der Art der den CO_2 -Gehalt kontrollierenden Phasen abhängen.

Der Versuch, den Beschränkungen (2) und (3) durch Feldversuche zu entgehen (z.B. Einbringen von Glas in Bohrlöcher des Felslabors "Stripa" im Granitgestein oder im Salz der WIPP haben zwar gezeigt, daß das HAW-Glas unter derartigen Bedingungen meist stabiler ist als unter extremen Laborverhältnissen, haben aber gleichzeitig neue Artefakte produziert. Insbesondere erscheint es fast unmöglich, in Feldversuchen die hydrogeologische Situation in einem Endlager nachzustellen.

Limitierung von Modellvorstellungen

Konfigurationen, die dem Experiment oder Feldversuch nicht oder nur mit großem Aufwand zugänglich sind, lassen sich oft mit Computermodellen simulieren. Derartige Simulationen treten heute mehr und mehr gleichberechtigt neben Experiment und Theorie (Wettervorhersage, die "Grenzen des Wachstums" des Club of Rom, Nationalökonomie etc.). Im Falle der Abfallgebinde wurden für Glas und abgebrannten Brennstoff insbesondere thermomechanische, geochemische sowie "mass transfer" Modelle angewendet, darüberhinaus aber z.B. auch kinetisch orientierte Radiolysemodelle. So lassen sich z.B. Reaktionsgeschwindigkeiten und Änderungen im Phasenbestand sowie Änderungen der Zusammensetzung der fluiden Phasen erklären und mit Einschränkungen vorhersagen.

Grundsätzlich stellt jedes Modell die Wirklichkeit nur stark vereinfacht dar, indem es im Hinblick auf eine konkrete Fragestellung Wesentliches von Unwesentlichem scheidet. Darin besteht seine Stärke und zugleich seine Schwäche. Insbesondere bei größeren, teils unübersichtlichen Computermodellen mit vielen miteinander gekoppelten Einzelprozessen besteht die Gefahr des Außerachtlassens wesentlicher Synergismen und Antagonismen. Verschiedene (kontingente) Modelle können oft die gleichen Tatsachen oder experimentellen Daten gleich gut beschreiben, die Modelle sind in diesem Falle unterbestimmt (Oreskes et al. 1994).

In dem Maße, in dem die Langzeitsicherheitsanalyse auf Modellen beruht, muß der Nachweis der Voraussagekraft, Vollständigkeit und Gültigkeit der Modelle für extrem lange Zeiträume geführt werden.

(1) Gültigkeit: Experimentell fundierte Modelle oder Modellteile müssen Laborbedingungen eindeutig und genau beschreiben. Es sind Experimente durchzuführen, die es erlauben zwischen Modellen zu entscheiden, die den bisher bekannten Datenbestand gleich gut beschreiben, aber die zu unterschiedlichen Ergebnissen führen, wenn man sie außerhalb jener Bereiche anwenden will, für den ihre Gültigkeit nachgewiesen worden ist. So ist es für die Bewertung der Langzeitstabilität von HAW-Gläsern wichtig zu wissen, auf welche Weise man die experimentell oft beobachtete zeitliche Abnahme der Reaktionsrate auf lange Zeiten extrapolieren kann. Verschiedene Modelle sind vorgeschlagen worden: (a) Interdiffusion von H^+ mit Alkali Ionen oder Wasserdiffusion ins Glasnetzwerk, (b) Diffusion von H_4SiO_4 durch eine wachsende Oberflächenschicht (Oberfläche als Schutzschicht), (c) Verringerung der Oberflächenrauigkeit oder aktiver Oberflächenzentren mit der Zeit oder (d) Sättigung der Lösung mit H_4SiO_4 . Jedes dieser Modelle kann oft auf einen begrenzten Datensatz gleich gut angewendet werden, wohingegen sich die Ergebnisse von Langzeitextrapolationen um viele Größenordnungen unterscheiden (Grambow et al. 1987, 1994). Erst durch zusätzliche Experimente konnte gezeigt werden, daß Oberflächenschichten im allgemeinen keine Schutzwirkung haben und nur die Prozesse (a) und (d) nach langen Zeiten wichtig sind.

(2) **Vorraussagekraft:** Es reicht nicht, um beim vorhergehenden Beispiel zu bleiben, an Hand natürlicher Analoga (Datierung von Obsidianen durch Hydratationsschichtdicken) nachzuweisen, daß der Prozeß (a) über geologische Zeiten wirkt und, da er zur Datierung verwendet werden kann, er auch zur Extrapolation eingesetzt werden könnte. Derartige Datierungen sind nämlich bei basaltischen Gläsern, die in Ihrer Zusammensetzung den HAW-Gläsern viel näher stehen (s. weiter unten), längst nicht so einfach durchzuführen. Einen Prozeß, der in der Natur über lange Zeiten wirkt, eine notwendige aber noch keine hinreichende Bedingung für den Nachweis der Voraussagekraft von Modellen. Man muß mit gleicher Intensität nach Gegenbeispielen suchen. Man muß sich auch fragen, ob nicht die gegenüber dem natürlichen Beispiel veränderten Randbedingungen bei der Endlagerung dazu führen, daß der betreffende Prozeß in den Hintergrund gedrängt wird.

(3) **Vollständigkeit:** Dies betrifft insbesondere diejenigen Ereignisse und Prozesse, die mit Sicherheit oder auch nur großer Wahrscheinlichkeit das Endergebnis der Sicherheitsanalyse (Dosis, Risiko) beeinflussen, schließt jedoch nicht notwendig die genaue Simulation jedes Details in sich ein. Ob eine gewisse Modellvorstellung vollständig ist, ergibt sich erst aus einer Vielzahl verschiedenartiger Experimente, aus kritischer Bewertung natürlicher Analoga und aus systematischer Modellanwendung.

Natürliche Analoga für Abfallformen

Natürliche Analoga können helfen, dominierende Langzeitprozesse aufzufinden. Aber erst, wenn es gelingt, diese Prozesse mit den gleichen Modellen zu beschreiben wie die Experimente, hat man einen Schritt in Richtung der Validierung von Modellen bzw. von Modellaussagen getan. Erst dann können wir den Sicherheitsnachweis deduktiv aus den Modellen führen. Auf dieser Basis sind die natürlichen Analoga ein anschaulicher Hinweis sowohl für das Langzeitverhalten der Abfallformen, als auch für die Gültigkeit von Modellen.

Natürliche Analoga für Abfallformen müssen folgende Kriterien erfüllen: Es muß sich um datierbare Proben ähnlicher chemischer und mineralogischer Zusammensetzung handeln, die von Fundorten mit bekannten und relevanten Umgebungsbedingungen stammen. Natürliche und Abfallproben müssen sich unter gleichen Bedingungen ähnlich verhalten, d.h. eine experimentelle Studie muß für beide Proben zu ähnlichen Resultaten führen. Für die Validierung von Modellen, die das Verhalten von HAW-Gläsern beschreiben, lassen sich natürliche Gläser, Obsidian, Tektite und Basaltgläser heranziehen. Natürliches Glas findet man überall in geologischer Umgebung, unter Bedingungen, die einen weiten Bereich von Temperatur, Grundwasserzusammensetzungen und Wasserkontaktzeiten umspannen. Die Alter derartiger Analoga liegen zwischen Tausenden und Millionen von Jahren. Sinnvolle Fragen betreffen die Langzeitstabilität von Verwitterungsprodukten und die Konservierung von Spurenstoff in ihnen, den Langzeitkorrosionsmechanismus und seine mögliche zeitliche Änderung, Langzeitkorrosionsraten, den Effekt von Umgebungsbedingungen (T, P, pH, Eh, S/V, Advektion, Lösungszusammensetzung)

und vor allem die bereits weiter oben diskutierte Frage, ob Laborerfahrungen übertragbar sind. Die Limitierungen seien gleich mit angeführt: Die hydrogeologischen Randbedingungen sind oft nicht vollständig bekannt, die Altersbestimmungen sind teilweise unsicher, die Lagerung ist Endlageren im Detail nicht analog, die Gehalte an Th, U, Seltenen Erden Elementen, Zr etc. sind, verglichen mit den HAW-Produkten sehr gering.

Beispiel: Was läßt sich aus dem Verhalten von Basaltgläsern lernen?

Verschiedene Übersichtsartikel über Basaltgläser als natürliche Analoga für HAW-Glas wurden in jüngerer Zeit veröffentlicht (Percy 1991, McKenzie 1990). Gläser mit derselben Zusammensetzung wie HAW-Gläser existieren in der Natur nicht. Wegen der großen Ähnlichkeit in der Zusammensetzung von Basaltgläsern und HAW-Gläsern und des ähnlichen Verhaltens unter gleichen Randbedingungen (Lutze et al. 1985) wird sich die folgende Diskussion v.a. mit diesem Thema befassen. In der Zusammensetzung unterscheiden sich die Basaltgläser von den HAW-Gläsern neben den fehlenden Transuranelementen und Spaltprodukten vor allem durch das Fehlen von Bor und Lithium sowie den geringeren Alkaligehalt. Chemisch homologe Elemente können teilweise als Analoga für Aktiniden und Spaltprodukte angesehen werden: Zr für die vierwertigen, die Seltenen Erden für die dreiwertigen und Uran für die sechswertigen Aktiniden. Die Unterschiede in der Zusammensetzung führen jedoch nicht zu einem anderen Verhalten, weil das Verhalten des Glases im wesentlichen durch den Si-Gehalt bestimmt ist, und dieser bei beiden Glastypen ähnlich ist. Es ist bekannt, daß Basaltgläser in der Natur in drei verschiedenen geochemischen Milieus vorkommen: (1) Basaltgläser, die durch Abschreckung von Basaltmagma am Meeresboden entstanden sind und über ihre ganze Lebensdauer Salzwasser ausgesetzt waren, (2) Oberflächennahe Basaltgläser, die meteorischen Bedingungen (Süßwasser) ausgesetzt waren und (3) Kombinationen von (1) und (2).

Verwitterte Basaltgläser helfen, die Relevanz von Laborergebnissen nachzuweisen. So hat Byers (1987) gezeigt, daß die Verwitterungsprodukte von Basaltgläsern, welche meteorischen Bedingungen ausgesetzt waren, sich im Labor durch Hydratationsexperimente mit Wasserdampf reproduzieren lassen. Natürlich verwitterte Basaltgläser bilden sehr schlecht kristalline Oberflächenschichten, die den Mineralnamen "Palagonit" tragen. Crovisier (1992) hat gezeigt, daß Palagonit in seiner Zusammensetzung fast identisch ist mit intergranularen Tonmineralien, die ebenfalls mit dem Glas vorkommen. Palagonit ist das natürliche Analogon für die Gelschichten, die sich auf HAW-Glasoberflächen bilden. Detaillierte Untersuchungen (Jercinovic 1987) mit Hilfe der Transmissionselektronenmikroskopie zeigen, daß Palagonit aus einer Mischung von amorphen ($\text{SiO}_2(\text{am})$, hydratisierte Metalloxide) und kryptokristallinen (Smectite) Phasen bestehen. HAW-Gelschichten bestehen aus dem gleichen Material. Die Langzeit-Existenz derartiger amorpher bis kryptokristalliner Phasen ist auch ein Beweis dafür, daß die Bildungszeiten thermodynamisch stabilerer kristalliner Phasen oft geologische Zeiträume benötigt. Die Annahme, daß sich immer die thermodynamisch stabilsten Phasen bilden, wenn man nur genügend lange wartet, ist auch durch die Existenz zahlreicher metastabiler Mineralphasen auch in wäßriger Umgebung in der Natur widerlegt. Natürliche

Analoga können in diesem Sinne also auch zur Falsifizierung von Modellvorstellungen eingesetzt werden. Sekundäre Mineralien, die als Verwitterungsprodukte von Basaltglas und Palagonit gefunden wurden, sind Tonmineralien (Smectite wie z.B. Montmorillonit oder Saponit), die ebenso wie Zeolite (Analcim, Chabazit etc.) auf HAW-Glasoberflächen gefunden wurden. Der Nachweis der Ähnlichkeit der Reaktionsprodukte von Analogon und HAW-Glas kann als Nachweis dafür angesehen werden, daß es sich bei den im Labor gebildeten Phasen um Phasen mit Langzeitstabilität handelt. Wie anders als durch natürliche Analoga hätte man das beweisen können? Die Ähnlichkeit der Phasen ist auf den ersten Blick erstaunlich, sind doch die Bedingungen im Labor und in natürlicher Umgebung niemals gleich, z.B. variieren Grundwasserzusammensetzungen, wie die Auslauglösungen im Labor in weiten Bereichen. Erklären läßt sich dieser Befund damit das es sich bei den betreffenden Phasen meist um nichtstoichiometrische Verbindungen handelt, deren Zusammensetzung sich an geänderte Bedingungen gut anpassen kann. Deshalb muß man aber auch, gerade wegen dieser Variabilität vorsichtig sein, aus der Analogie von Palagonit und Gelschicht auf HAW-Gläsern darauf zu schließen, daß Elemente die im Palagonit gebunden sind auch beim HAW-Glas gebunden bleiben. Palagonit ist wie die Gelschichten porös und erlaubt bis in das Phaseninnere hinein den Austausch von gebundenen und in Lösung befindlichen Ionen. Insoweit müssen diese Austauschvorgänge untersucht werden. Es gibt deutliche Hinweise darauf, daß bei typischen pH-Werten von oberflächennahen Wässern (pH 5-9) z.B. die Seltenen Erden Elemente und Zirkon und Thorium, die den drei und vierwertigen Aktiniden homolog sind sich bei der Reaktion mit fluiden Phasen weitgehend immobil verhalten. Obwohl das untersuchte Basaltglas über Tausende von Jahren der Verwitterung unterlag und Oberflächenschichten (Palagonite) gebildet hat, wurden die ursprünglich in der Glasphase vorhandenen Elemente im Palagonit fixiert. Dieser Befund ist aber z.B. nur mit Einschränkungen auf die Endlagerung in Salz zu übertragen. Bei Zutritt Mg-haltiger Laugen zum HAW-Glas führt die Korrosion zwar auch zu Gelschichten (Saponit), aber es stellen sich saure pH-Werte (um 3) ein. Seltenen Erden Elemente werden hier nur mit sehr geringen Anteilen in der Gelschicht gebunden.

Da die Analogie zwischen Palagonit und Gelschichten auf wesensmäßig gleichen Ursprung zurückgeführt werden kann, können wir, durch Studium der Bedingungen unter den Palagonit vorkommt, bestimmte Fragestellungen beantworten, die dem Experiment nicht unmittelbar zugänglich sind. Ebenso wie eine reale HAW-Kokille ist Basaltglas kein Monolith, sondern besteht aus vielen Bruchstücken mit feinsten Rissen. Die damit verbundene Vergrößerung der Oberfläche hat zu der Frage geführt, ob die feinen Rißoberflächen überhaupt zur Auslaugung beitragen, oder ob man bei oberflächenabhängigen Freisetzungsraten von einer wesentlich kleineren effektiven Oberfläche ausgehen kann. Bei Basaltglas läßt sich zeigen, daß selbst kleinste Risse mit gleich dicken Palagonitschichten überzogen sind, wie äußere Oberflächen (Jercinovic 1987). Damit kann als bewiesen angesehen werden, daß tatsächlich die Gesamtoberfläche berücksichtigt werden muß.

Auch mechanistische Modellvorstellungen lassen sich an Hand von Basaltgläsern studieren. So lassen sich für Gläser, die im Ozean liegen, Reaktionsraten aus der Palagonitschichtdicke und dem Alter der Proben abschätzen. Es konnte gezeigt

werden, daß die Reaktionsraten junger, auf dem offenen Ozeanboden liegender Basaltgläser etwa bei $3 \mu\text{m}/1000$ Jahren liegen, (bei 3°C), wohingegen die Raten wesentlich kleiner sind sobald die Gläser von einer Sedimentschicht bedeckt sind. Dies wurde mit Hilfe der Tatsache gedeutet, daß in den Porenwässern der Sedimente die H_4SiO_4 Konzentration wesentlich höher ist, als im offenen Ozean, mithin die Abnahme der Rate wie beim HAW-Glas auf einen Sättigungseffekt zurückgeführt werden könnte (Grambow et al. 1985). Hier sind noch wesentlich eingehendere Untersuchungen nötig, bevor man wirklich an Hand von natürlichen Analoga das weiter oben diskutierte Problem lösen kann, auf welche Weise man die im Labor gefundene zeitliche Abnahme der Reaktionsrate auf lange Zeiten extrapolieren kann.

Es sei abschließend bemerkt, daß auch im Salzgestein Basaltgläser vorkommen, deren eingehende Untersuchung in den kommenden Jahren ein vordringliches Ziel sein sollte.

Literatur

- C.D. Byers, M.J. Jercinovic, R.C. Ewing, "A Study of Natural Glass Analogues as Applied to Alterations of Nuclear Waste Glass"; Argonne National Laboratory Report ANL-86-46 (1987)
- J. L. Crovisier, J. Honnorez, B. Fritz, J.C. Petit. "Dissolution of Subglacial Volcanic Glasses From Iceland: Laboratory Study and Modelling"; Appl. Geochem. Suppl. Issü 1, 55-82 (1992)
- B. Grambow, M.J. Jercinovic, R.C. Ewing, C.D. Byers, "Weathered Basalt Glass: A Natural Analogue for the Effects of Reaction Progress on Nuclear Waste Glass"; Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol 50, (1985) pp. 263-272
- B. Grambow, "Remaining Uncertainties in Predicting Long-Term Performance of Nuclear Waste Glass from Experiments" MRS-Symposium Boston 1993, to be published in Proceedings 1994
- M.J. Jercinovic, und R.C. Ewing, "Basaltic Glasses from Iceland and Deep Sea: Natural Analogues to Borosilicate Nuclear Waste-Form Glass" Japanese Swiss Swedish Project JSS 88-01, Stockholm (1987)
- W. Lutze, G. Malow, R.C. Ewing, M.J. Jercinovic, K. Keil, "Alteration of Basalt Glass: Implications for Modelling the Long-Term Extrapolation of Glass Corrosion Processes" Nature 314, 252-255 (1985)
- W.F. McKenzie, Natural Glass Analogues to Alteration of Nuclear Waste Glass: A Review and Recommendations for further Study"; Lawrence Livermore National Laboratory Report UCID-21871 (1990)
- N. Oreskes, K. Shrader-Frechette, K. Belitz "Verification, Validation and Confirmation of Numerical Models in the Earth Sciences"; Science 263, pp. 641-646 (1994)
- W. Ostwald, "Grundriß der Naturphilosophie", Reclam Verlag, Leipzig 1908
- E.C. Percy und W.M. Murphy, "Geochemical Natural Analogs Literature Review, Center for Nuclear Waste Regulatory Analyses Report CNWRA 90-008 (1991)

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Langzeitbeständigkeit von Bitumen
und Asphalten aus geologischer
und historischer Sicht**

**U. Krakau
Jessberger + Partner**

**V. Köckritz
TU Bergakademie Freiberg**

Dr.-Ing. Ulrike Krakau, Prof. Dr.-Ing. Jessberger + Partner GmbH, Bochum

Prof. Dr.-Ing. Volker Köckritz, TU Bergakademie Freiberg, Freiberg

Workshop "Natürliche Analoga zur Endlagerung radioaktiver Abfälle" am 04./05.11.1993 im Kernforschungszentrum Karlsruhe

Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalten aus geologischer und historischer Sicht

Die Langzeitbeständigkeit eines jeden Materials ergibt sich aus seiner Widerstandsfähigkeit gegenüber den jeweils herrschenden Milieubedingungen, wobei Druck, Temperatur und die chemischen Verhältnisse maßgebliche Einflußfaktoren darstellen. In den weiteren Ausführungen werden die für die Langzeitbeständigkeit wesentlichen Bitumen- und Asphalteigenschaften aus geologischer und historischer Sicht unter Berücksichtigung des Einsatzes dieser Materialien in einem Endlager als Dichtmaterial (z. B. für Strecken- oder Schachtverschlüsse) näher diskutiert. Dabei sind einerseits die Milieubedingungen bis zum Ende seiner Betriebsphase und andererseits nach seinem Verschuß, d. h. in der Nachbetriebsphase, zu berücksichtigen. In der Phase vor dem Verschuß, die sich in der Regel auf einige Jahrzehnte beschränkt, herrscht dort eine sogenannte "Bergwerksatmosphäre" vor, d. h. Temperatur und Feuchte der Luft wechseln /1/. Auch ist die Einwirkung von Kondens- und Bergwasser nicht auszuschließen. Nach dem Verschuß stellen sich je nach Standort im Laufe der Zeit unterschiedliche, aber dann in der Regel annähernd konstante Milieubedingungen ein /1/.

Die Genese der natürlichen Bitumen und Asphalte /2/ /3/ beginnt mit bei den in den Meeren unserer Erde lebenden kleinen, meist einzelligen Lebewesen, dem Plankton. Die abgestorbenen Reste sinken zusammen mit den vom Festland herangeführten Sink-Stoffen, der sogenannten Ton-Trübe, auf den Meeresboden, wo aus der organischen Substanz beim Vorherrschen anaerober Bedingungen, d.h., beim völligen Fehlen von Sauerstoff ein schwarz gefärbter, stinkender Faulschlamm gebildet wird. Dieser Faulschlamm ist die erste Voraussetzung für die Entstehung von Kohlenwasserstoffen. Mit zunehmender Sedimentüberdeckung gelangen diese "Erdöl-Muttergesteine" unter erhöhten Druck und vor allem unter erhöhte Temperaturen, wodurch die organischen Substanzen wie Eiweiße, Fette und Kohlenhydrate in Erdöl und Erdgas umgewandelt werden (s. Abb. 1). Bei geeigneten geologischen Voraussetzungen reichern sich diese im Speichergestein an und bilden im Laufe der Zeit Lagerstätten. Durch Alterungsprozesse, wie z. B. Mineralstoffeintrag werden

die Erdöllagerstätten in Bitumen- bzw. Asphaltlagerstätten umgewandelt. Durch geologische Prozesse mit nachfolgender Verdunstung leichter flüchtiger Anteile des Erdöles können "Asphaltseen" entstehen. Dazu zählen Lagerstätten z.B. Pitch Lake bei La Brea, Trinidad; Bermudez bei Pedernales, Venezuela; Rancho La Brea bei Los Angeles, USA oder der Coal Oil Point bei Santa Barbara, USA. Weiterhin sind Imprägnierungen von porösen Gesteinen bzw. Füllungen von feinen Rissen und Klüften in Karbonaten mit Asphalt, z. B. in Pechelbronn im Elsaß; in Escherhausen bei Hannover oder in Ragusa in Sizilien bekannt. Die dritte Gruppe der Asphaltvorkommen stellen gang- und spaltenförmig auftretende Lagerstätten dar, wobei die Mächtigkeit der saiger einfallenden Gänge einige Meter erreichen kann. Hierzu gehören z.B. kleinere Vorkommen in den USA, Peru, Argentinien, Kuba, Trinidad, Mexiko und Irak /4/.

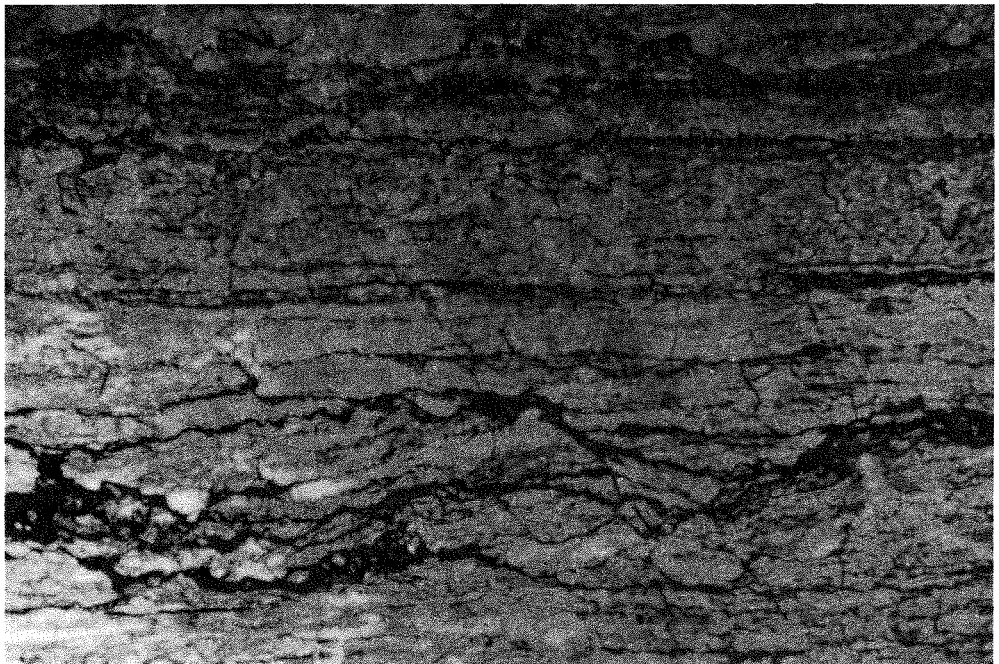


Abb. 1: Bräunlich gefärbtes Bitumen mit schwarzen Tonfasern im Dolomit des Zechsteines
/2/

Die Palette der natürlich vorkommenden Bitumen und Asphalte erstreckt sich vom fast mineralstofffreien Bitumen bis hin zum Gestein mit nur geringem Bitumengehalt. Der bekannteste natürliche Asphalt wird aus dem Trinidadere Asphaltsee gewonnen. Die Seefläche beträgt ca. 40 ha und die Tiefe über 60 m. Der natürliche "Seeasphalt" enthält etwa 39 % Bitumen, ca. 30 % Mineralstoff, der teilweise in kolloidaler Form vorliegt, und ungefähr 31 % emulgiertes Salzwasser /15/. Nach der Reinigung des natürlichen "Seeasphaltes" entsteht der raffinierte Trinidadasphalt oder "Trinidad Epure". Größer als der Trinidadere Asphaltsee ist der Asphaltsee im sogenannten Orinoco-Gürtel, im südlichen Teil des ostvenezolanischen Beckens in Bermuda. Jedoch beträgt seine durchschnittliche Tiefe nur 2,5 m. Der

Bitumengehalt im natürlichen Bermudaasphalt beträgt ca. 64 %, die Menge an Mineralstoffen ungefähr 2 % und sein Gehalt an Wasser etwa 30 % /17/. Darüber hinaus sind noch ca. 4 % nicht mineralische, in Schwefelkohlenstoff unlösliche Komponenten enthalten.

Industriell kann Bitumen durch destillative Aufarbeitung des Erdöles bzw. aus Naturasphalt hergestellt werden /2/ /3/ und bleibt damit ein natürliches Produkt.

Bitumen sind zu beschreiben als schwerflüchtige dunkelfarbige Gemische verschiedener Kohlenwasserstoffe mit einer mittleren Molmasse von 600 bis 1.000 kg/mol. Sie sind hauptsächlich aus n-, iso- und cyclo-Alkanen, Aromaten und Naphthenaromaten, Asphaltene sowie sauren, neutralen und basischen Heteroatomen aufgebaut /5/ und als hochviskose Flüssigkeiten mit kolloidchemischer Struktur zu betrachten. Die kolloiddispersen Bestandteile des Bitumens sind die Erdölharze und die Asphaltene, die in einem Dispersionsmittel, d.h. einer homogenen überwiegend aus Kohlenwasserstoffen zusammengesetzten öligen Phase gelöst sind. Sie sind polydisperse, sphärische, resoluble, oleophile Mizellkolloide /5/ /6/, die in naphthenischen und naphthenoaromatischen Kohlenwasserstoffen aromatisiert sind und sich besonders hinsichtlich ihrer Teilchengröße und Zusammensetzung unterscheiden /7/.

Unter Asphalt ist ein natürlich vorkommendes oder technisch hergestelltes Gemisch aus Bitumen oder bitumenhaltigen Bindemitteln und Mineralstoffen sowie ggf. weiteren Zuschlägen und/oder Zusätzen zu verstehen /8/.

Im Hinblick auf die Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalt zeigt die Bildung von Bitumen in der Natur, daß dieses Material als Bestandteil von Erdöl Zeiträume von Hunderten von Millionen von Jahren überdauern kann. Dies bedeutet, daß unter der Erdoberfläche Milieubedingungen anzutreffen sind, die eine Erhaltung des organischen Materials über diesen langen Zeitraum ermöglichen. Denkbare Abbauprozesse können unter den vorherrschenden Bedingungen (Chemismus, Druck und Temperatur) nur sehr verlangsamt ablaufen. Dies ist auf die Ausbildung abbauhemmender Milieubedingungen, insbesondere auf den Abschluß gegen Sauerstoff, zurückzuführen. Dieser Abschluß wird oft durch Wasser oder wassergesättigte Schichten erzielt, in denen sich zum einen der Sauerstoff nur durch Diffusion ausbreiten kann und zum anderen der Restsauerstoffgehalt durch sauerstoffzehrende Prozesse begrenzt wird.

Bitumen- und Asphaltlagerstätten können aus nachfolgend genannten Gründen als ein natürliches Analogon für ein Endlager betrachtet werden:

- Die technisch hergestellten Qualitäten des Destillationsbitumens unterscheiden sich in den Eigenschaften nicht von den natürlichen Bitumen.
- Auch unter den Endlagerbedingungen unterliegen Bitumen und Asphalte ähnlichen Druck- und Temperaturbedingungen wie in einer Lagerstätte.
- Bei den Endlagern ist von einem Sauerstoffausschluß auszugehen, so daß der Abbau von Bitumen und Asphalten praktisch ausgeschlossen ist.
- Mineralische Beimengungen, d. h. Füllstoffe, in Bitumen können für Dichtsysteme so gewählt werden, daß sie vergleichbare Eigenschaften zu denen in natürlich vorkommenden Asphalten aufweisen. Sie sind i. a. nicht oder nur schwer wasserlöslich.
- Ähnlich wie in den Lagerstätten können sich die Milieufaktoren auch in einem Endlager mit der Zeit einstellen. Der Zeitraum bis zum Erreichen eines vorläufigen Endzustandes, der mit demjenigen einer Lagerstätte vergleichbar ist, kann von geologischer Dimension sein.

Über Asphalt und Techniken zu seiner Anwendung lagen bereits vor Jahrtausenden im Kulturraum der Sumerer, Babylonier, Assyrer und Ägypter große Kenntnisse vor, wie zahlreiche archäologische Funde und Hinweise von klassischen Geschichtsschreibern und Dichtern (z. B. bei Homer (900 v. Chr.), Herodot (450 v. Chr.), Aristoteles (350 v. Chr.), Virgil und Plinius (50 v. Chr.) sowie Tacitus (100 n. Chr.)) belegen /2/ /9/ /10/.

Im an Erdölausbissen reichen Mesopotamien wußten bereits in der Jungsteinzeit manche Siedler das Bitumen zu schätzen, z.B. bei Sichern für das Verbinden der Schneide aus Feuerstein mit dem Holzgriff, für Spinnwirteln, kunstvolle Frauenplastiken mit einem hochgetürmten Kopfschmuck aus Asphalt als Grabbeigaben oder mit Bitumenmörtel verputzte Schilfgeflecht-Matten - vermutlich Teile uralter menschlicher Behausung.

Etwa in der Mitte des vierten Jahrtausends v. Chr. siedelten sich die Sumerer im Süden Mesopotamiens an, wo sie erstaunliche Bauten aus Mauerwerk errichteten. Häufig diente Bitumen als Mörtel. So wurde bei der Stadt Uruk, heute Warka, in dem Innenraum des dem Himmelsgott Anu geweihten "Weißen Tempel" ein teilweise von einem jüngeren Ziegel-Lehm-Estrich überdeckter Asphaltfußboden gefunden. Neuere Ausgrabungen führten zu einem noch älteren, um 3000 v. Chr. wahrscheinlich unterirdisch angelegtem Heiligtum aus Kalkstein, dessen Fußboden mit einem Mörtelüberzug und einer Asphalt-Isolierung versehen ist.

Damals kam auch die bis in die heutige Zeit gebräuchliche runde Bootsform, die Guffah, ein aus Knüppeln der Tamariske, Gerten der Weide und den Rippen der Palmblätter geflochtener großer Korb mit einer Tragfähigkeit bis zu etwa zehn Tonnen auf, den ein Asphaltüberzug gegen das Eindringen von Wasser abdichtete. Einstmals wurde damit auch das aus zahlreichen Sickerstellen bei der Stadt Hit zu Tage tretende Bitumen transportiert (s. Abb. 2).

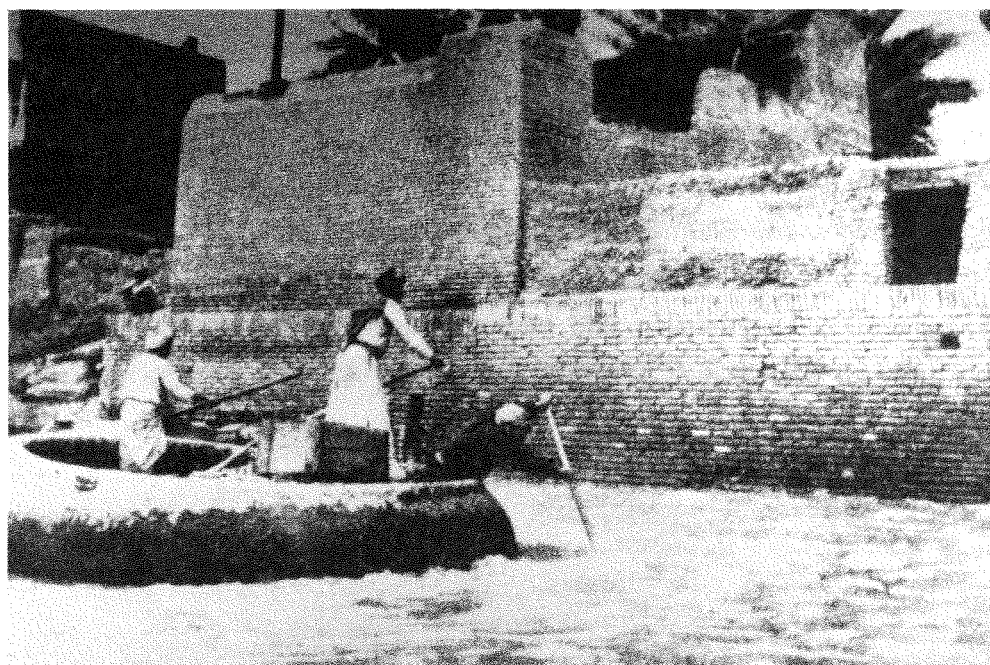


Abb. 2: Guffah /2/

In der Nähe des Tempelturmes von Ur wurde ein um 2500 v. Chr. angelegter Königsfriedhof mit Gewölben aus mit Bitumen-Mörtel verlegten Ziegeln freigelegt, in dessen Gräbern Kunstwerke wie die "Standarte von Ur" und der "Widder am Blütenstrauch" gefunden wurden, die auch aufgrund des Bitumenanteiles gut zu restaurieren waren. Die sogenannte Standarte ist ein Holzkasten mit Mosaiken, die in Asphalt eingelegt sind und das Treiben in Sumer vor ca. 4500 Jahren darstellt. Bei der Widder-Statuette war der Kopf mit Asphalt auf der Holzunterlage festgeleimt und das Ganze mit einer dicken Asphaltschicht überzogen, wobei der Asphalt auf dem Rücken und an den Flanken auch die Haarlocken zu halten hatte.

In Mesopotamien wurden häufig Holztüren mit Bitumen bestrichen. Es wurden Säulen mit einem geschätzten Alter von ca. 4500 bis 5000 Jahre gefunden, die aus Palmenstämmen mit einem Schutzmantel aus Asphalt, in den ein Mosaik aus bunten Steinen und aus Perlmutter zur Verbesserung des Oberflächenschutzes eingelegt wurde, bestehen.

Auf Tontafeln mit Keilschrift, die sich aus der etwa um 2900 v. Chr. von den Sumerern erfundenen Schrift entwickelt hat, wird u.a. auch auf den Verkauf, Kauf und Verleih von Bitumen eingegangen.

Auch das heute im Vorderasiatischen Museum zu Berlin aufbewahrte Obsidian-Messer aus dem vierten Jahrtausend weist Bitumen-Anteile auf, die wohl einst als Klebmasse zur Befestigung der Handgriffe dienten.

Im Elam, das ostwärts der Euphrat- und Tigris-Mündung gelegen ist, wurden bereits im frühen zweiten Jahrtausend v. Chr. aus bitumenhaltigen Kalksteinen Gefäße hergestellt.

In geringem Umfang wurde Bitumen auch rund zweitausend Kilometer weiter im Osten, am Unterlauf des Indus, verwendet. Es diente dort vor allem dazu, Bauwerke für rituelle Waschungen wasserdicht herzustellen und gegen Feuchtigkeit zu schützen, wie z.B. beim Becken des "Großen Bades" in Mohenjo Daro die senkrechte Bitumenschicht zeigt (s. Abb. 3).

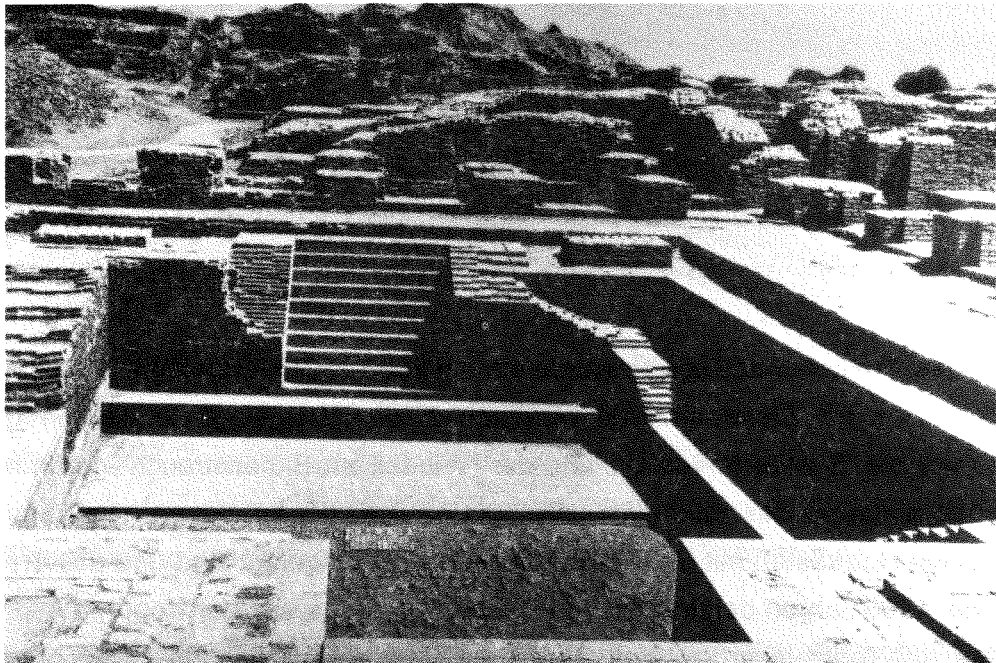


Abb. 3: Becken des "Großen Bades" in Mohenjo Daro /2/

Nach dem Sieg der Akkader in Mesopotamien und der Assimilation der Sumerer hatte sich in der Stadt Babylon eine Asphalt-Kultur entwickelt. So wurden die Steine der prachtvollsten Straßen des Altertums, zwischen ca. 3200 bis 500 v. Chr., in Asphalt gebettet. Ein von der Prozessionsstraße stammende 1,05 m² große Pflasterstein weist noch Asphaltspuren auf. Auch z.B. zum Bau von Kaimauern, für den Bodenbelag eines weitläufig bewässerten

Dachgartens oder für den "Turm zu Babel" wurde Asphalt verwendet. Beim Bau der mit Tieren reich verzierten Festungsmauer von Babylon kam auf jede Ziegelsteinschicht eine Lage Asphalt und darauf eine Lage Lehm, auf die wieder eine Schicht Ziegelsteine gesetzt wurde. Noch heute erzählen von vergangener Macht und Pracht die mit herrlichen Emailarbeiten verzierten Mauern, die mit Asphalt- und Lehm-Mörtel verfugt sind. Um das Wasser in die gewünschten Bahnen zu lenken, wurde Asphalt verwendet. Dies ist z.B. bei der Pforte mit Kanal in der Nordmauer der Hauptburg von Babylon zu sehen. Asphalt wurde aber auch als kompakte Masse für die Herstellung eines Ankers für ein seegehendes Schiff verwendet, wie aus einem etwa 4000 Jahre alten Brief zu entnehmen ist. Ebenfalls setzten Maler Bitumen ein. Ferner wurde es als formfähiges Material für kleine Figuren, wie z.B. für die Alabaster-Figur mit Asphalt-Perücke, einer Grabbeigabe, für Reliefs und Gefäße und als Kern bei großen Figuren eingesetzt. Auch Brettspiele wurden in Bitumen eingelegt (s. Abb. 4).

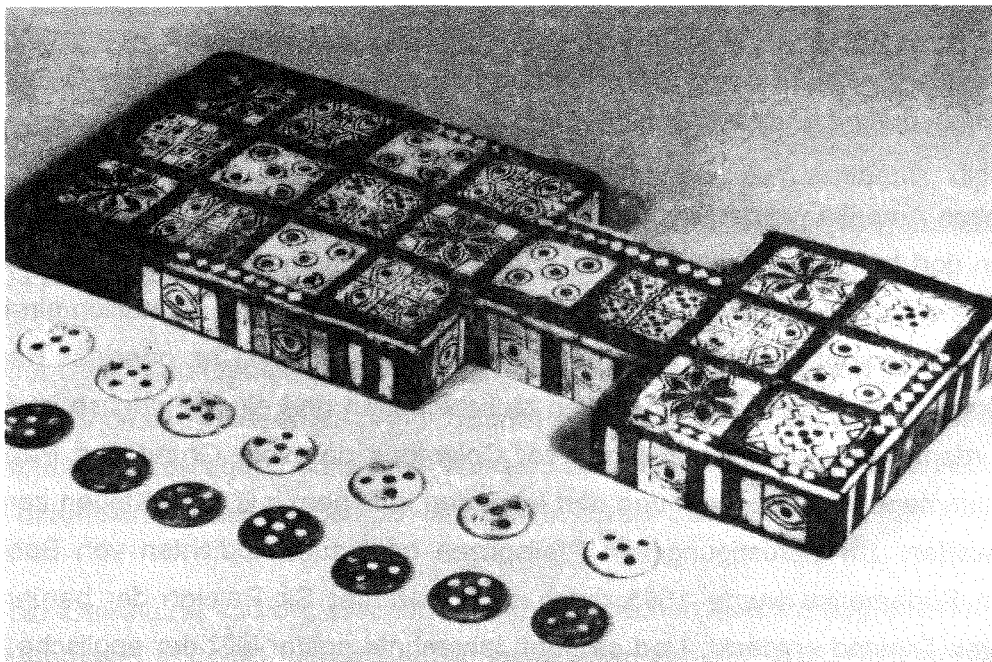


Abb. 4: Brettspiel in Bitumen eingelegt /2/

Langsam gewann auch das Bitumen in anderen Gegenden erheblich an Bedeutung. So ist aus der Zeit Cäsars bekannt, daß die Anwohner der beiden gegenüberliegenden langgestreckten Ufer des Toten Meeres um das Herausfischen des aufschwimmenden Bitumens, einem lohnenden Exportartikel nach Ägypten, kämpften (s. Abb. 5). In Ägypten, in der Nähe des Nil-Delta, wurde eine etwa 5500 Jahre alte Sichel mit Bitumenspuren gefunden, wobei das Bitumen als Haftmittel für die Feuerstein-Zähne diente. Weiterhin ist bekannt, daß Bitumen nicht nur in Ägypten, sondern später auch in Europa zur Mumifizierung verwendet wurde.

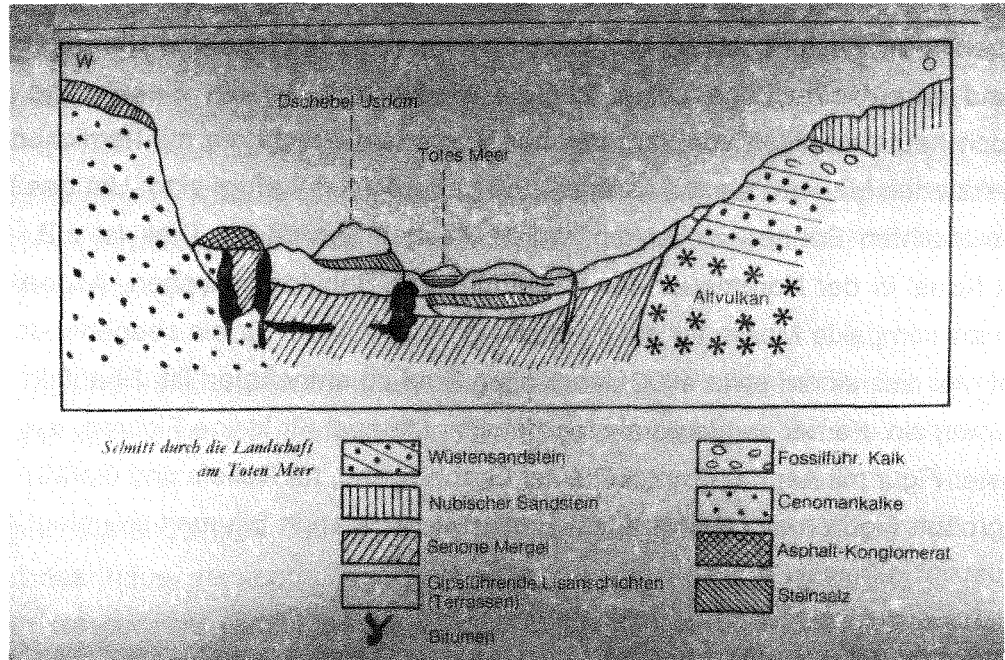


Abb. 5: Schnitt durch Landschaft am Toten Meer /2/

Auch im alten Amerika wurde Bitumen schon lange bevor Menschen mit weißer Hautfarbe den Boden dort betraten vielfältig benutzt. So sind in Mittelamerika verschiedene Tonfiguren mit Bitumenbemalung gefunden worden, wie z.B. eine Tonfigur, vermutlich ein Krieger, der einen Raubtierkopf als Helm trägt, aus der Zeit 500 bis 700 n.Chr. oder das Rauchrohr aus Speckstein mit in Bitumen eingelegten Muschelperlen und einer Eidechse im Flachrelief. In Nordamerika wurde schon lange vor Columbus das vom Grund des Pazifischen Ozeans stammende Bitumen von den dort lebenden Indianern z.B. zum Kleben zerbrochener Steinwaffen, zur Befestigung von Pfeilspitzen oder zum Abdichten von Booten gebraucht. In Südamerika wurde 1595 durch den Seefahrer Sir Raleigh der berühmte Asphaltsee von Trinidad entdeckt. Und ca. fünf Jahrzehnte später läßt der englische Admiral Sir Drake auf der Landspitze Santa Elena aussickerndes Bitumen zum Kalfatern der Planken und Taue seiner Schiffe "kochen". Noch heute liegt der alte Bitumenkochkessel am Strand von Santa Elena. Vom Ende des 18. Jahrhunderts ist die Darstellung der Aufbereitung des Naturasphalts in dem Bergwerk Mina La Brea im heutigen Peru erhalten geblieben, das z.B. die Inkas beim Straßenbau einsetzten.

Die archäologischen Funde beruhen auf zwei wesentlichen Faktoren, einerseits sind sie vom Material und andererseits von den mehr oder weniger konstanten Milieubedingungen am Fundort abhängig. Damit zeigen sich Analogien zur Endlagerung, wo verschiedene Materialien einem bestimmten chemischen und physikalischen Milieu ausgesetzt sind. Besonders günstig hat sich für die Erhaltung von Bitumen und Asphalt das feuchte bis

nasse Milieu bei prähistorischen Seeufersiedlungen erwiesen. Dabei ist oft das Material von wassergesättigtem Schlick umgeben, der den Zutritt von Sauerstoff und damit Oxidationsvorgänge wirksam verhindert. In Mooren, wo ein reduzierendes (sauerstoffarmes), schwach basisches oder schwach saures Milieu herrscht, sind Bitumen und Asphalte resistent. Aber auch eine trockene Umgebung wirkt sich nicht nachteilig auf die Erhaltung dieser Materialien aus, wie eine Reihe von archäologischen Funden bewiesen hat. Dagegen fördern wechselnde Feuchtigkeit und ein fehlender Schutz gegen die Einwirkung des atmosphärischen Sauerstoffes die chemischen und mikrobiologischen Abbauprozesse des Bitumens bzw. Asphaltes.

Durch den Kontakt mit Luftsauerstoff wird eine oxidative Bitumenalterung, d. h. eine Verhärtung und Versprödung des Materials /11/ - /13/, hervorgerufen. Im Dunkeln verläuft dieser Prozeß wesentlich langsamer als bei Lichteinwirkung, so daß er dort auf maximal 10^{-4} m von der Oberfläche her beschränkt bleibt /8/. Im Vergleich zu den unter Zufuhr von Luft bei Temperaturen von 250 bis 290 °C im Reaktor gezielt hergestellten geblasenen Bitumenqualitäten beträgt die Reaktionsgeschwindigkeit hier praktisch Null. Dieser geringe Einfluß kommt auch an den in historischen Zeiten unter Verwendung von Bitumen und Asphalten errichteten Bauwerken und hergestellten Kunstgegenständen zum Ausdruck, die Jahrhunderte und Jahrtausende überdauert haben und heute von den Archäologen häufig unversehrt und unverändert ausgegraben werden können /2/ /9/.

Infolge der oleophilen Oberfläche des (nicht oxidierten) Bitumens werden bei der Berührung mit Wasser und/oder Wasserdampf nur Spuren des Wassers an seiner Oberfläche gelöst. Die Hauptmenge des aufgenommenen Wassers ist in einer dünnen äußeren Zone enthalten und diffundiert nur außerordentlich langsam in tiefere Schichten /14/ /15/.

Gegen die Einwirkung von organischen und anorganischen Salzen, aggressiven Wässern, Kohlensäure und anderen schwachen anorganischen Säuren jeder Konzentration sowie gegenüber konzentrierten Alkalien sind Bitumen beständig /8/ /13/. Dagegen werden sie von vielen organischen Lösungsmitteln z. T. oder ganz gelöst /18/.

Unter der Einwirkung von mechanischen Beanspruchungen zeigen die Bitumen und Asphalte ein ausgeprägtes elasto-viskoses Verhalten. Kurzzeitige schlagartige Belastungen werden wie von elastischen Körpern durch elastische Verformungen bzw. Zubruchgehen aufgenommen. Langzeitbelastungen bei geringer Belastungsgeschwindigkeit führen zu einem viskosen Verhalten. Unter solchen Belastungen können Bitumen als hochviskose Flüssigkeiten ohne Fließgrenze und mit einer temperaturabhängigen Strukturviskosität betrachtet und auch mathematisch modelliert werden.

Hinsichtlich des Strahlenschutzes weisen Bitumen gute Sorptionseigenschaften auf. Mit zunehmender Strahlendosis kommt es zu einer Volumenvergrößerung des Bitumens, d. h. die Dichte nimmt ab. Die Schwellung ist auf die Bildung von Radiolysegas, das sich hauptsächlich aus Wasserstoff und in geringen Mengen aus Methan und anderen flüchtigen Kohlenwasserstoffen zusammensetzt, zurückzuführen. Dieses Gas kann nicht schnell genug in die Umgebung entweichen, so daß im Bitumen kleine Bläschen gebildet werden.

Die mikrobiologische Degradation von Bitumen wird durch die Freisetzung von Gasen sowie organischen Flüssigkeiten angezeigt. Wie aus der Literatur /19/ bekannt ist, sind bitumenabbauende Mikroorganismen ubiquitär. Hauptsächlich erfolgt der Abbau durch den direkten Kontakt der Mikroorganismen mit dem organischen Material, so daß folglich die mikrobielle Aktivität durch die zur Verfügung stehende Bitumenoberfläche begrenzt ist. Pro Jahr dringt der mikrobielle Abbau etwa $5,5 \cdot 10^{-6}$ m vor. Unter aeroben Bedingungen werden bei einer Oberfläche von 1 m^2 ca. 20 bis 50 g Bitumen pro Jahr mikrobiell abgebaut, wobei ungefähr 15 bis 40 l Kohlendioxid gebildet und außerdem Stickstoff, Schwefelwasserstoff und in Spuren Methan freigesetzt werden. Dagegen ist die Abbaurate unter anaeroben Bedingungen im Vergleich zum aeroben Abbau etwa 100 mal geringer. Die Existenz der im Tertiär vor rund 1 bis 60 Millionen Jahren entstandenen natürlicher Asphaltseen beweisen die niedrige Degradationsrate und die Langzeitbeständigkeit der Bitumen und Asphalte auch über geologische Zeiträume.

In den letzten 20 Jahren wurden Bitumen und Asphalte in immer stärkerem Maße aufgrund der Langzeitbeständigkeit und der vielen günstigen Eigenschaften mit großem Erfolg auch untertägig eingesetzt, z. B. für Abdichtpackungen für Schacht-, Strecken- und Bohrlochverschlüsse, Gleit- und Schutzschichten für das Gebirge und untertägige Grubenbaue, als Ringraumdichtungen für Schächte, Bohrlöcher und Vorbausäulen, als Fixierungsmaterial für einzulagernde Abfälle, als Injektionsmaterial, für Abdeck- und Basisdichtungsschichten für Deponien sowie für Aufgaben bei der Verwahrung von Altbergbau.

Literatur

- /1/ Eletrowatt Ingenieurunternehmung AG, Zürich: Verfestigung schweizerischer radioaktiver Abfälle mit Bitumen. - NAGRA. - Baden/Schweiz.- NTB 85-28, Nov. 1988.
- /2/ Hansen, G.: Steinöl und Brunnenfeuer. - Kassel: Wintershall Aktiengesellschaft, 1980.
- /3/ Lühje, Gall, Reuber: Lehrbuch der Chemie. - 4. Aufl. - Universitätsdruckerei Würzburg, 1970. - S. 349-350.
- /4/ Bender, F.: Angewandte Geowissenschaften, Bd. III: Geologie der Kohlenwasserstoffe, Hydrologie, Ingenieurgeologie, Angewandte Geowissenschaften in Raumplanung und Umweltschutz. Ferdinand Enke Verlag, Stuttgart, 1984.

- /5/ Neumann, H.J.: Bitumen - neue Erkenntnisse über Aufbau und Eigenschaften. -In: Erdöl und Kohle, Erdgas und Petrochemie. - Leinfelden-Echterdingen, 34 (1981) 8. - S. 336 - 342.
- /6/ Neumann, H.J.; Rahimian, I.; Taghizadeh, D.: Zur analytischen Bestimmung der sogenannten Asphaltene; ein Beitrag zu ihrer Definition. - In: Brennstoff-Chemie. - Essen, 48 (1967) 3. - S. 66-69.
- /7/ Neumann, H.J.; Rahimian, I.: Über die Kolloidchemie des Bitumens.- In: Bitumen. -Hamburg 35 (1973) 1. S. 1-5.
- /8/ Taschenbuch: Bitumen und Asphalt. - 5. Neubearb. Aufl. - Wiesbaden und Berlin: Bauverl. GmbH, 1976.
- /9/ Suhling, L.: Erdöl und Erdölprodukte in der Geschichte.- Abhandlungen und Berichte. - Dt. Museum München 43 (1975) 2, 3.
- /10/ Hansen, G.: Erdöl ungewöhnlich kommentiert. - Kassel: Wintershall Aktiengesellschaft, 1966.
- /11/ Neumann, H.J.: Oxidationsverhalten von Bitumen bei Gebrauchstemperaturen.- In: Erdöl-Erdgas-Kohle. - Hamburg/Wien 103 (1987) 3. - S. 131-133.
- /12/ Pfeiffer, J.Ph.: The Properties of Asphaltic Bitumen. - New York·Amsterdam·London·Brüssel-Elsevier-Publishing-Company, 1950.
- /13/ Dübner, R.: Baustoffe im Asphaltstraßenbau. - Arbit-Schriftenreihe, Hamburg, Heft 50 (1991).
- /14/ Hoiberg, A.I.: Bituminous Materials: Asphalt, Tars and Pitches. Vol. II Part I. - New-York-London·Sydney-Interscience Publisher, 1964.
- /15/ Raudenbusch, H.: zur Frage der Wasseraufnahmefähigkeit und der Wasserbestimmung bei bituminösen Stoffen. - In: Bitumen. - Hamburg 30 (1964) 4. - S. 98 - 102.
- /16/ Mitchel, D.L.; Speight, J.G.: The solubility of asphaltenes in hydrocarbon solvents. - In: Fuel. - London 52 (1973) April. - S. 149-152.
- /17/ Zakar, P.: Bitumen. - Leipzig: Dt. Verl. f. Grundstoffind., 1967.
- /18/ Rahimian, I.; Zenke, G.: Zum Verhalten organischer Lösungsmittel gegenüber Bitumen. - In: Bitumen. - Hamburg 48 (1986) 1. - S. 2-8.
- /19/ Wolf, M.: Mikrobieller Abbau von Bitumen. - NAGRA. - Baden/Schweiz. - NTB 89-14, April 1989.

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Möglichkeiten der Bewertung der
Langzeitstabilität von Bentonit
durch natürliche Analoga**

**P. Sitz
M. Gruner
TU Bergakademie Freiberg**

1. Grundsätzliche Bemerkungen zur Langzeitsicherheit

Für Untertagedeponien und Endlager sind standortbezogene Langzeitsicherheitsnachweise bzw. Langzeitsicherheitsbetrachtungen für das Gesamtsystem durchzuführen. In diesem Gesamtsystem spielen die technischen und die geotechnischen Barrieren eine wesentliche Rolle. Die Wirksamkeit dieser Barrieren in der Nachbetriebsphase, d.h. der angestrebte langfristige Einschluß des Deponiegutes, wird neben der konstruktiven Ausführung durch die Langzeitstabilität der eingesetzten Materialien bestimmt.

Unter Langzeitstabilität versteht man, daß in Abhängigkeit vom zeitlich möglichen Feld der Umgebungsparameter, bzw. der Elementarlasten:

- Druck, (z.B.: Gebirgsdruck, Flüssigkeitsdruck, Gasdruck)
- Temperatur, (Gebirgstemperatur, Zusatztemperaturfeld durch Abfälle)
- Chemisches Umfeld

die daraus resultierenden Materialeigenschaften konstant bleiben oder sich in einem Toleranzbereich bewegen bzw. sich bei einem kurzzeitigen Verlassen dieses Toleranzbereiches nur reversibel ändern.

Für die Bewertung der Langzeitstabilität der Materialien sind daher Kenntnisse über die in Abhängigkeit von elementaren Lastzuständen, bzw. Umgebungsparametern (Druck, Temperatur, chemische Einflüsse) zu erwartenden Änderungen der Materialeigenschaften und der Grad ihrer Reversibilität erforderlich. Die beispielsweise für Abdichtmaterialien für UTD oder Endlager wichtigsten Materialeigenschaften sind:

- hydraulische Leitfähigkeit (als schnellster möglicher Stofftransport),
- Beanspruchungs - Verformungsverhalten, Erosionsverhalten,
- Quellpotential (als Maß des Selbstheilvermögens, der Kontaktbereichsdichtung und des Impermeabilisierungsvermögens für die aufgelockerte Randzone).

Die Verschlechterungen nur einer dieser Eigenschaften (z.B. Reduzierung des Quellvermögens) führt zu einer Erhöhung der Versagenswahrscheinlichkeit bzw. zu einem niedrigerem Sicherheitsniveau.

Die Kenntnis der quantitativen Stoffcharakteristika und das Maß ihrer Reversibilität ist erste Voraussetzung zur Bewertung der Langzeitstabilität der eingesetzten Verschlussmaterialien. Diese Informationen können durch experimentelle Untersuchungen erhalten werden.

Allerdings wird man die für den Ingenieur über unvorstellbar lange Zeiträume ablaufenden komplexen Vorgänge in ihrer Gesamtheit weder durch Einzelexperimente noch durch auf diesen Daten bzw. Stoffgesetzen fundierenden Modellrechnungen umfassend beschreiben können. Die Gründe sind folgende:

- * komplizierte heterogene Stoffsysteme mit hohen Freiheitsgraden;
- * die zu betrachtenden Stoffe können nicht als Phase im thermodynamischen Sinne definiert werden, sondern stellen selbst ein System einer anderen Strukturhierarchie dar (z.B. Tone);
- * Einfluß der Reaktionskinetik über lange Zeiträume und der zeitvariablen Randbedingungen (z.B. Deckschichtenbildung, Sekundärreaktionen), wodurch sich der Verlauf einer Reaktionskette nicht eindeutig bestimmen läßt.

Für die Lösung dieser für den Ingenieur sehr ungewöhnlichen Aufgabenstellung bieten sich, neben einem systematischen Vergleich der in den einzelnen Ländern entwickelten Modelle sowie der experimentellen und in situ Überprüfung einzelner Modelteile, gemäß dem Grundsatz - ungewöhnliche Aufgaben verlangen ungewöhnliche, unkonventionelle Lösungsmethoden - zur Berücksichtigung des extremen Zeitfaktors noch die folgenden Möglichkeiten von Archäologie und Geologie an.

1. Nutzung und Auswertung der von unseren Vorfahren unbewußt vor vielen hundertern oder wenigen Tausenden von Jahren für uns angesetzten Langzeitexperimente.

Es sei hier nur an nachfolgende Beispiele erinnert:

- die über 3000 Jahre alten künstlichen Gläser,
- die vor rund 5000 Jahren unter Verwendung von Bitumen und Asphalt errichteten Kaimauern an Euphrat und Tigris,
- die über 2000 Jahre alten, 4 m tief eingegrabenen Eisennägel auf einem Römerkastell,

- die bis zu 3000 Jahre alten Betone aus zum Teil noch heute genutzten Betonbauwerken in Italien, der Schweiz, auf Kreta, in Griechenland und Zypern (z.B.: das von Kaiser Hadrian im Jahre 125 nach Christi Geburt erbaute Pantheon in Rom mit einer Kuppel mit einem Durchmesser von 43,4 m),
 - die über 300 Jahre auf dem Meeresboden im Ton abgelagerte Schiffskanone des ehemaligen schwedischen Kriegsschiffes "Kronan" aus Bronze mit hohem Kupferanteil.
2. Eine weitere, noch wesentlich längere Zeiträume umfassende Möglichkeit, ist ein Vergleich der in der UTD bzw. dem Endlager ablaufenden Vorgänge mit ähnlichen in der Natur abgelaufenen bzw. noch ablaufenden Vorgängen, d.h. Suche und Deutung der von der Natur selbst gemachten Experimente.

Bevor solche natürlichen geologischen Analoga etwas ausführlicher durch Auswertung schwedischer und schweizer Literatur am Beispiel des Bentonits erläutert werden, sollen nachfolgend einige Analoga für UTD oder Endlager zusammengestellt werden.

- Die Uranlagerstätten in Oklo in Afrika (Gabun) als Beispiel für ein Analogiesystem. Hier wurden vor rund 2 Milliarden Jahren durch spontane Kernspaltung in Teilen der Lagerstätte mehrere Tonnen hochradioaktiven Abfalls, so z.B. Plutonium, Cäsium, Strontium produziert und fixiert. Der Naturreaktor war ca. 500 000 Jahre aktiv und verbrauchte 10 t U-235.
- Uranerzlagerstätten, bei denen trotz hoher Konzentration Auswirkungen auf den Lebensbereich ferngehalten werden (z.B.: Immobilisierung des extrem reichen Uranerzes des Cigar Lake in Canada durch Tonschichten) oder auch Überdrucklagerstätten von flüssigen und gasförmigen Medien, die über geologische Zeiträume hermetisch abgedichtet sind.
- Gläser vulkanischer Herkunft, als Beispiel für die zum Einschluß von hochaktiven Abfall genutzte Glasmatrix.
- Der natürliche Asphalt des Asphaltsees in Trinidad.
- Das im Salinar eingeschlossene Kohlendioxid (z.B.: durch die vor 15 - 25 Millionen Jahren erfolgten Basaltintrusionen im Werra-Fulda Kalirevier) und die umfangreichen Erfahrungen des Kalibergbaus mit "Kohlensäureausbrüchen" sowie die sekundären Laugeneinschlüsse von vielen 100 m³ im Zechstein.

- Untersuchungen an einigen mehrere 100 Millionen Jahre alten Bentonitproben aus verschiedenen Lagerstätten, in denen der Bentonit seit seiner Entstehung ähnlichen bzw. vergleichbaren Bedingungen wie in einem Endlager unterworfen ist.

Über diese Untersuchungen wird nachfolgend berichtet.

2. Die Langzeitstabilität von Bentoniten

Bei der Bewertung der Langzeitstabilität von Materialien mit Hilfe geologischer Analoga geht man davon aus, daß natürlich existierende Materialien den Nachweis ihrer Stabilität über den Zeitraum ihrer Existenz erbracht haben. Dabei schreibt diese Bewertungsmethode vor,

- daß es sich um gleiche, bzw. vergleichbare Ausgangsstoffe gehandelt hat,
- daß die Bedingungen und ihre zeitlichen Variationen, denen das geologische Analogon ausgesetzt war, denen gleichgesetzt werden können, die in der UTD oder im Endlager zu erwarten sind.

Nach diesen methodischen Grundlagen liegen bereits Bewertungen der Langzeitstabilität von Bentoniten unter Endlagerbedingungen vor, die z.B. im Rahmen der schwedischen, finnischen und schweizer Endlagerkonzepte durchgeführt wurden. In allen diesen Ländern übernimmt nämlich der Bentonit sowohl in den schwach- und mittelaktiven als auch in den hochaktiven Endlagern eine wesentliche Rolle innerhalb des Mehrbarrierenkonzeptes. Das Schweizer HAA-Konzept sieht beispielsweise vor, die Abfallbehälter in einer Tiefe von über 1000 m im Granit in Strecken einzulagern und den 1,8 m breiten Zwischenraum zwischen Abfallbehälter und Ausbruch mit hochverdichteten Bentonit zu verfüllen. In der Anfangsperiode der Einlagerung rechnet man mit einer Temperatur von max. 120 °C [1, 2].

Die chemische Langzeitbeständigkeit des Hauptbestandteiles des Bentonits, des Montmorillonits (MX-80 und Montigel enthalten mindestens 60 % Montmorillonit) wird durch den Prozeß der Illitisierung beeinflusst [1, 3], der deshalb kurz erläutert werden soll:

Durch primär im Wasser enthaltene oder sekundär, d.h. durch Auflösung von Begleitmineralen gebildete K^+ - und Al^{3+} - Ionen kann die Umwandlung von Montmorillonit zu Illit nach folgendem Mechanismus erfolgen:

- Erhöhung der Schichtladung durch isomorphen Austausch von Silizium gegen Aluminium,
- nachfolgende Kompensation der Schichtladung durch K^+ - Ionen.

Die Illitisierung erfordert also ein entsprechendes Angebot verfügbarer K^+ - und Al^{3+} -Ionen. Die Umwandlung von Smectiten in Illite führt u. a. zur Verringerung oder zum Verlust der Quellfähigkeit und zur Erhöhung der hydraulischen Leitfähigkeit. Ca-Bentonit ist gegen die Illitisierung wesentlich resistenter als Na-Bentonit. Ebenso gilt Magnesium als Montmorillonit-stabilisierend [3, 4], da es auch bevorzugter als Kalium in die Zwischenschicht eingetauscht wird. Bei der geringen Durchlässigkeit des Bentonits, wird die Geschwindigkeit der Illitisierung durch die Aufnahme, bzw. das Eindringen der Kaliumionen limitiert.

Die erste Umwandlungsstufe des Montmorillonits im Prozeß der Illitisierung ist ein Metabentonit mit sich ausbildenden Smectit-Illit-Wechselagerungen. Der Grad der Umwandlung von Bentonit in Metabentonit kann an Hand folgender Eigenschaften der Smectit-Illit-Wechselagerungen untersucht werden [2]:

1. der isomorphe Ersatz von Si durch Al
2. die Zunahme der Zwischenschichtladung
3. die Aufnahme von nicht austauschbarem Kalium in den Zwischenschichtraum und die Abnahme der Austauschkapazität
4. der Ordnungsgrad der Wechselagerung
5. die Abnahme der innerkristallinen Quellfähigkeit

Dabei ist die Quellfähigkeit die technische Zielgröße für die Betrachtung der Funktionsfähigkeit des Bentonits, da diese auch als Kenngröße für andere wichtige Materialeigenschaften wie die hydraulische Leitfähigkeit angesehen werden kann. Für die Bewertung der Langzeitstabilität ist vor allem die Geschwindigkeit der Abnahme der Quellfähigkeit und somit die zeitabhängige Verschlechterung der Bentoniteigenschaften von Bedeutung. Laufen diese Vorgänge langsam ab, haben sie für die Sicherheitsanalyse in der Betriebsphase keine bzw. eine vernachlässigbar geringe Bedeutung. Für Langzeitsicherheitsbetrachtungen sind daher sowohl die Eigenschaften dieser Metabentonite bzw. Kalium-Bentonite in den verschiedenen Umwandlungsstufen als auch ihre Umwandlungsgeschwindigkeiten maßgebend.

Als Analogiesysteme wurden u.a. folgende natürliche Tone untersucht:

Der Metabentonit von Kinnekulle in Schweden [2, 5, 6]

Der ursprüngliche Bentonit entstand aus vulkanischer Asche, die vor 450 Mill. Jahren abgelagert wurde. Vor ca. 280 Mill. Jahren wurde dieser Bentonit über einige 100

Jahre einer Temperatur von mindestens 100 °C ausgesetzt. Diese thermische Belastung wurde durch eine Basalt-Intrusion bewirkt, die etwa 90 m über der untersuchten Bentonitschicht liegt. Der Bentonit war einem Überlagerungsdruck der Größenordnung von 20 MPa ausgesetzt, der etwa einer Teufe von 1000 m entspricht.

Es wurde festgestellt, daß selbst nach 450 Mill. Jahre der Prozeß der Illitisierung nicht abgeschlossen ist und daß die Umwandlungsgeschwindigkeit geringer ist, als durch das verfügbare Kaliumangebot zu erwarten war. Selbst bei der konservativen Annahme, daß die Kaliumzufuhr und dessen Aufnahme durch die Austauschreaktion sofort und ungehemmt erfolgt, ergibt sich eine minimale Umwandlungszeit für eine Bentonitendlagerverfüllung von 3,1 Mill. Jahren. Innerhalb der 1,8 m mächtigen Kalium-Bentonitschicht nimmt der Kaliumgehalt der Wechsellagerung von außen nach innen ab, was eindeutig auf die diffusionskontrollierte Kaliumzufuhr, also niedrige Transportgeschwindigkeit zurückzuführen ist.

Auch sich bildenden Smectit-Illit-Wechsellagerungen sind quellfähig, wenn auch die gemessenen Quelldrücke bei gleicher Trockendichte geringer, als bei Ca-Bentonit sind - im Mittel 20 % des Quelldruckes des Ca-Bentonits. Für den Metabentonit wurden immerhin Quelldrücke bis 15 MPa (bei einer Trockendichte von 2,02 g/cm³) bestimmt, bei einer reduzierten Trockendichte von 1,8 g/cm³ lagen die Quelldrücke noch bei 2 bis 5 MPa, bei $\rho = 1,6$ g/cm³ immerhin noch bei 1 bis 2 MPa.

Gerade dieser Kinnekulle-Bentonit ist ein gutes Beispiel für die Langzeitstabilität des Bentonits in den geplanten bzw. ausgeführten Endlagern in Finnland, Schweden und der Schweiz. In den geplanten HAA-Endlagern liegen Druck, Temperatur, Schichtmächtigkeit und Chemismus in der gleichen Größenordnung. Die Kaliumgehalte der für den Einsatz vorgesehenen Bentonite MX 80 und Montigel sind niedrig (0,6 bis 1,2 Gew. % K₂O), der größte Teil des zur Umwandlung in Illit erforderlichen Kaliums muß durch Diffusion aus Tiefenwässern aufgenommen werden. Die Kaliumaufnahme des Ca-Bentonites Montigel ist gehemmt.

Kalium-Bentonit von Montana [5]

Dieser Bentonit entstand vor ca. 110 Mill. Jahren aus vulkanischer Asche, die im marinen Milieu abgelagert wurde. Durch Überschiebung mit anderen Schichten stiegen Druck und die Temperatur (bis 200 °C) an. Im Gegensatz zu den in Kalium-armen Kalken eingebetteten Kinnekulle-Bentonit war der 2,5 m mächtige Montana-Bentonit von Kalium-reichen marinen Tonschiefern umgeben.

Die Quelldrücke des Montana-Bentonits erreichten Werte von 10% des Quelldruckes von Ca-Bentonit. Die im Vergleich zum Kinnekulle-Bentonit größere Beeinträchtigung des Quellvermögens ist in erster Linie auf die wesentlich höhere Temperatur und das größere Kaliumangebot zurückzuführen.

Alle diese umfangreichen, hier nur sehr kurz dargestellten Untersuchungen zeigen, daß auch unter ungünstigen Bedingungen die Stabilität des Bentonits in der Nachbetriebsphase erhalten bleibt. Bei dem sehr konservativen Ansatz, eines sofortigen und vollständigen Eintausches des durch den Grundwasserfluß transportierten Kaliums [2] errechnet sich eine Umwandlungszeit der Bentonitverfüllung in die Kaliumform als erste Stufe einer möglichen Illitisierung nach folgender Formel, die das Verhältnis der Menge der austauschbaren Kationen in der Bentonitverfüllung zur Zufuhrgeschwindigkeit von austauschfähigen Kationen darstellt.

$$t = \frac{X_{Kat.-Bentonit}}{\dot{X}_{Kat.-H_2O}}$$

Setzt man die entsprechenden technischen Größen ein, erhält man für die Zeitdauer des vollständigen Kaliumaustausches unter konservativer Annahme die folgende Formel:

$$t = \frac{\pi}{4} M_{K^+} d^2 s KAK \frac{\rho_{tr}}{Q [K^+]}$$

Dabei ist	M_K	die molare Masse des Kaliums (39,098 g/mol)
	d	der Streckendurchmesser, [m]
	s	die betrachtete Streckenlänge (= 1m)
	KAK	die Kationenaustauschkapazität, [mol/Mg]
	ρ_{tr}	die Trockenrohddichte der Bentonitverfüllung, [Mg/m ³]
	Q	der mögliche Grundwasservolumenstrom durch die Strecke der Bentonitverfüllung $d*s$ [l/a]
	[K ⁺]	der möglicher Kaliumgehalt im Grundwasser, [g/l]

Für die Werte	d	=	3,7	m
	s	=	1	m
	KAK	=	764	mol/Mg (Bentonit MX-80)
	ρ_{tr}	=	1,7	Mg/m ³
	Q	=	3	l/a
	[K ⁺]	=	0,04	g/l

erhält man eine Umwandlungszeit von 4,55 Mill. Jahren. Aufgrund der konservativen Annahme der sofortigen und vollständigen Umwandlung in die Kaliumform ist die erhaltene Umwandlungszeit als die Pessimistischste anzusehen. Daß der Prozeß der Kaliumaufnahme und der daraus resultierenden Illitisierung wesentlich langsamer verläuft zeigen die angeführten Beispiele der natürlichen Analoga. So wurde im Falle des Kinnekulle-Bentonits selbst nach 450 Mill. Jahren das Kalium noch nicht vollständig eingetauscht. Dadurch verläuft der Prozeß der Illitisierung eines Bentonits im

Verlauf dieser Zeiträume nur bis zum Stadium der Smectit-Illit-Wechselagerung, die nachweisbar an untersuchten natürlichen Proben noch eine Dominanz der typisch smectitischen Eigenschaften aufweist, wie z.B. die zwar reduzierte aber noch vorhandene innerkristalline Quellfähigkeit belegt.

Die zu beiden Analogiesystemen erhaltenen Untersuchungsergebnisse decken sich mit den Resultaten früherer Betrachtungen zur Temperatur -Druck bzw. Tiefe - Abhängigkeit der Stabilität natürlicher Tonminerale (zitiert in [1]). In Abb. 1 sind die zusammenfassenden Befunde verschiedener Autoren zu den untersuchten natürlichen Tonproben dargestellt.

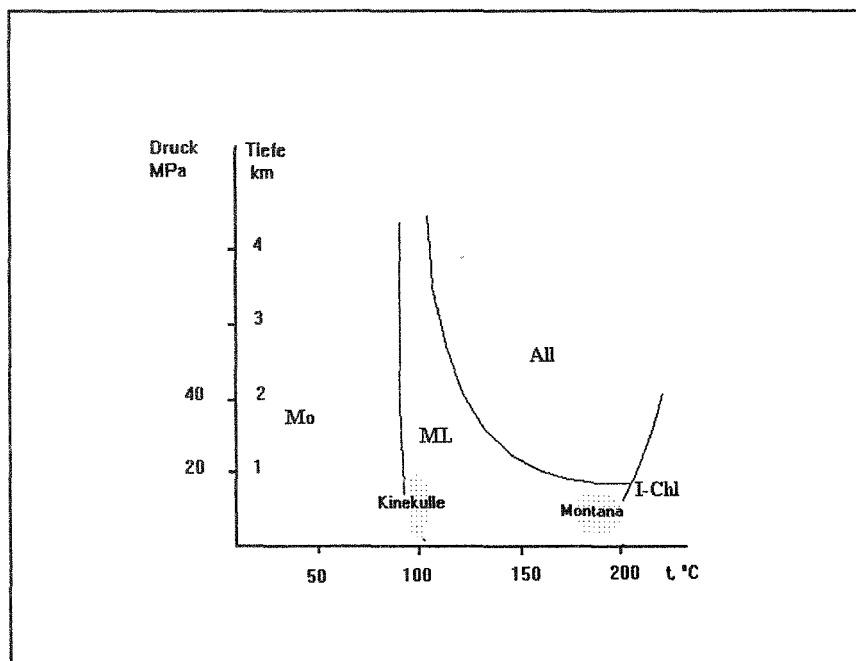


Abb. 1 Stabilitätsfelder natürlicher Tonminerale in einem Temperatur/Tiefe - Diagramm [1]

- Mo: vollständig quellbare Phasen
- ML: ungeordnete und geordnete Wechselagerungen
- All: Allevardit
- I-Chl: Illit-Chlorit-Paragenese

Daraus ist ersichtlich, daß bei niedrigen Temperaturen Montmorillonit als stabile Form erhalten bleibt. Bei Temperaturen > 80 ... 100°C bilden sich Wechselagerungen als stabile Form. Bei der Untersuchung natürlicher Smectite wurde festgestellt, daß bei Temperaturen unter 140 °C der maximale Illitanteil etwa 80 % beträgt und unabhängig vom geologischen Alter ist [3].

3. Schlußfolgerungen für UTD und Endlager im Salinar

Die Langzeitstabilität von Bentonit ist, mitbedingt durch die geologischen Analoga, durch Untersuchungsergebnisse für viele Hartgesteinsendlagerbedingungen belegt. Dadurch besitzen die Verschluß-, Verfüll- und Versiegelungskonzepte auf Basis bzw. unter Einbeziehung von Bentoniten, wie sie beispielsweise in Finnland, Schweden, der Schweiz und Canada verfolgt werden, ein hohes Sicherheitsniveau in der Nachbetriebsphase.

Die Umgebungsparameter von UTD und Endlagern im Salinar weichen jedoch vor allem in bezug auf das chemische Umfeld sehr stark von diesen Bedingungen ab, hier ist auch im Rahmen von Sicherheitsbetrachtungen der Kontakt hochkonzentrierter gesättigter Salzlösungen mit dem Verschluß- bzw. Versiegelungsmaterialien zu betrachten. Für das Verhalten, insbesondere das Langzeitverhalten der möglichen Verschluß- bzw. Versiegelungsmaterialien Ton oder Bentonit unter den Bedingungen des Salinar, gibt es aber praktisch noch keine sichere Datenbasis, obwohl im Salinar neben dem Salzgestein unter anderem mächtige Tonschichten, die vor einigen 100 Mill. Jahren mit den Salzlagerstätten entstanden sind und den Nachweis der Langzeitstabilität an sich erbracht haben, anzutreffen sind. Zu prüfen ist, ob diese Tone als geologische Analoga für einen Verschluß oder eine Versiegelung aus Ton oder Bentonit unter den vorliegenden UTD- oder Endlagerbedingungen geeignet sind. In solche Betrachtungen sollten auch submarine Sedimente und Salztone in jüngeren Salzseen, bzw. in entstehenden Salzlagerstätten mit einbezogen werden.

Für eine Bewertung des möglichen Analogiesystemes fehlen aber für diese Salztone konkrete Angaben für technisch relevante Parameter, wie rheologisches Verhalten, hydraulische Leitfähigkeit, Quellpotential, Diffusivität, Sorptionskapazität.

Es wird deshalb vorgeschlagen, solche Untersuchungen zum Stoffverhalten von Ton-Salz-Systemen, die als Dichtmaterialien eingebracht werden, sowie zu den Materialeigenschaften natürlicher Salztone, durchzuführen. Dabei soll das Langzeitverhalten der Abdichtmaterialien auf Ton/Bentonit-Basis aus natürlichen Analoga (Salzton) abgeleitet werden. Diese natürlichen Analoga sind zur Bewertung der Langzeitstabilität von Tonen im Kontakt mit Salzlösungen anwendbar, wenn erstens der Ausgangsstoff (z.B. Ton oder Bentonit) als vergleichbar angesehen werden kann und wenn zweitens die Belastungszustände (Druck, Temperatur, Chemismus) über die Zeit den in der UTD (im Störfallszenario) zu erwartenden Belastungsfällen analog sind. Um die Eigenschaften des Stoffsystems quasi in einem späteren Zustand zu beurteilen, werden die für die Funktionalität der Verschlußmaterialien relevanten Eigenschaften (Porosität, Durchlässigkeit, Sorptionskapazität, Quelldruck, Beanspruchungs/Verformungsverhalten) für die Salztone bestimmt und mit den Werten der Ausgangsstoffe verglichen. Darauf aufbauend soll die Langzeitstabilität der Materialien auf Ton/Bentonit-Basis abgeschätzt bzw. bewertet werden.

Literatur:

- [1] R. Grauer
Bentonit als Verfüllmaterial im Endlager für hochradioaktiven Abfall: Chemische Aspekte.
NAGRA Techn. Bericht 86-12, Januar 1985

- [2] M. Müller-Vonmoos, G. Kahr
Langzeitbeständigkeit von Bentonit unter Endlagerbedingungen.
NAGRA Techn. Bericht 86-25, März 1985

- [3] R. Grauer
Zum chemischen Verhalten von Montmorillonit in einer Endlagerverfüllung.
NAGRA Techn. Bericht 88-24, Juli 1988

- [4] Smectite alteration; Proceedings of a colloquium at State University of New York at Buffalo, May 26-27 1982.
In: Teknisk Rapport 83-03, SKBF / KBS, 1983

- [5] M. Müller-Vonmoos, F. Bucher, G. Kahr, F. Madsen, P.-A. Mayor
Wechselagerung und Quellverhalten von Kalium-Bentoniten.
NAGRA Techn. Bericht 91-13, Mai 1991

- [6] R. Pusch
Stability of deep-sited smectite minerals in crystalline rock - chemical aspects.
Teknisk Rapport 83-16, SKBF / KBS, 1983

Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Natürliche Phosphate und ihr Bindungsvermögen
für Schwermetalle und Actinoide**

**R. Gauglitz
FU Berlin**

NATÜRLICHE PHOSPHATE UND IHR BINDUNGSVERMÖGEN FÜR SCHWERMETALLE UND ACTINOIDE

R. Gauglitz

FU-BERLIN , Institut für Anorganische und Analytische Chemie,
FG.: RADIOCHEMIE , FABECKSTR. 34-36 , D -14195 Berlin

Die Nutzung von Radioisotopen in der Forschung, der Nuklearmedizin und der Kernindustrie erzeugt täglich unterschiedliche radioaktive Reststoffe. Besondere Beachtung verlangen hierbei die Kernbrennstoffe, welche als Abfallstoffe des nuklearen Brennstoffkreislaufes zurückbleiben. Es handelt sich hierbei vorwiegend um Abfälle, die beim Betrieb unterschiedlicher Kernreaktoren, der Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen, der Herstellung von Brennelementen sowie der Anreicherung und Förderung von Uran anfallen. Bei der Endlagerung der radioaktiven Abfälle wird bisher das Konzept verfolgt, die betreffenden Substanzen durch unterschiedliche Barrieren von der Biosphäre abzuschließen. Dieses in der Literatur als Barrierenkonzept beschriebene Szenario zieht unterschiedliche natürliche und künstliche Migrationsbarrieren in Erwägung [1] [2]. Der primäre Einschluß der Radionuklide soll hiernach in Borosilikatglas, Bitumen oder Zement erfolgen, oder es soll, wie im Falle der direkten Endlagerung vorgesehen, die bestehende Brennelementmatrix, also UO_2 , welches die Spaltprodukte fixiert, erhalten bleiben. Diese Reststoffmatrix fixiert die radioaktiven Isotope und bildet somit die erste Migrationsbarriere [3][4]. Die solcher Art konditionierten Reststoffe werden dann in verschiedene Arten von Endlagerbehältern, wie Polluxbehälter, Polluxkokillen oder 400 l Fässer verstaut. Die jeweils verwendeten Behältermaterialien bilden die zweite Migrationsbarriere. Weiterhin wird nun vorgeschlagen, diese Reststoffbehälter in einer geeigneten geologischen Formation, wie z. B. Salzstöcke, Granit, Tuff, usw. , in großer Tiefe in Stollen oder Bohrlöchern zu lagern. Die hierbei ausgewählte geologische Formation stellt die dritte Migrationsbarriere dar, und das darüber befindliche Deckgebirge bildet die vierte Migrationsbarriere [5-9].

Ausgehend von diesem Barrierenkonzept ergibt sich noch eine weitere Möglichkeit zur Immobilisierung der Reststoffe durch die Verwendung geeigneter Versatzmaterialien bei der Verfüllung der Stollen [10-12].

Die an ein Endlager für radioaktive Substanzen gestellte Anforderung lautet in Kurzform: Fixierung der radiotoxischen Reststoffe für mindestens 10.000 Jahre, um hierdurch eine Ausbreitung dieser Substanzen bis in die Biosphäre hinein zu verhindern. Die Gefahr einer Ausbreitung besteht jedoch nur dann, wenn Wasser bis an die Endlagerbehälter vordringt. Durch das Wasser kann eine Korrosion der Behälter und der Reststoffmatrix eintreten, wodurch die eingeschlossenen Radionuklide in großer Menge gelöst werden könnten. Das radioaktiv belastete Wasser könnte hiernach aus dem Endlagerbereich herausgelangen und schließlich auf seinem weiteren Weg irgendwann mit dem Grundwasser in Berührung kommen. Daher könnten die gelösten Radionuklide in den Wasserkreislauf und schließlich in die Nahrungskette geraten. Ein Versatzmaterial ist unter diesen Gesichtspunkten nur dann geeignet, wenn es

- a) die Korrosivität des angreifenden Wassers vermindert
- b) die Löslichkeit der problematischen Radionuklide senkt

und somit der Nuklidausbreitung insgesamt entgegenwirkt. Der Versatz sollte also die Möglichkeit bieten, die Fixierung der Radionuklide anstelle der Reststoffmatrix zu übernehmen. Für die Auswahl eines solchen Materials ist daher die genaue Kenntnis der Reststoffe und ihrer Reaktionen in der Geosphäre erforderlich.

Bei den hochaktiven, wärmeentwickelnden Reststoffen handelt es sich in der Hauptsache um Uran, welches mit Spuren von Spaltprodukten und Aktivierungsprodukten angereichert ist. Ein geeignetes Versatzmaterial sollte daher vordringlich mit dem Element Uran eine schwer lösliche Verbindung bilden [13-22].

Für die Suche nach einer geeigneten Verbindung bietet sich in besonderem Maße eine Analyse der mineralogischen Erkenntnisse auf dem Gebiet der Uranminerale an. Die Mineralogie beschreibt die in der Natur vorkommenden und z.T. über Millionen von Jahren beständigen Uranminerale. Uran ist auf der Erde recht weit verbreitet, und es befinden sich große Mengen dieses Metalls gelöst in den Weltmeeren. Doch auch mineralische Ablagerungen, welche teilweise über Jahrmillionen in der Erdkruste eingeschlossen sind, kann man auf allen Kontinenten beobachten. Das Uran ist in diesen schwerlöslichen Mineralen vorwiegend mit Phosphat, Silikat oder Oxid verbunden. Die bisher bekannten uranhaltigen Minerale verteilen sich wie folgt zwischen den unterschiedlichen Gruppen. Es existieren insgesamt 61 Minerale aus der Gruppe der Oxide-

Hydroxide-Titanate-Niobate-Tantalate und 65 Minerale aus der Gruppe der Phosphate-Arsenate-Vanadate. Demgegenüber findet man nur 7 Minerale aus der Gruppe der Sulfide-Selenite-Tellurite, 12 Minerale aus der Gruppe der Sulfate-Molybdate, 17 Minerale aus der Gruppe der Carbonate und 21 Minerale aus der Gruppe der Silikate [23-25].

Die Phosphatminerale haben demnach eine besonders ausgeprägte Bindungstendenz zum Uran, welches in diesen Mineralen als Uranylion UO_2^{2+} in der sechswertigen Oxidationsstufe auftritt. Von den etwa 3.500 bisher bekannten Mineralen sind 215 Phosphate, 110 Arsenate und 33 Vanadate (zusammen 358). Eine der bemerkenswerten Eigenschaften der Phosphatminerale ist die Bildung von Mineralgruppen, in denen verschiedene Metallkationen oder auch Anionen im Kristallgitter substituiert werden können, ohne daß hierdurch eine grundsätzliche Veränderung der Gitterstruktur auftritt. So findet man bei den wasserfreien Phosphaten ohne fremde Anionen die Triphylin-Reihe, die Xenotim-Reihe und die Monazit-Reihe und bei den wasserfreien Phosphaten mit fremden Anionen die Libethenit-Reihe, die Crandallit-Reihe und die Apatit-Reihe. In diesen Reihen können viele unterschiedliche Anionen wie z.B. Ca^{2+} , Pb^{2+} , Sr^{3+} , SEE^{3+} , Ba^{2+} , K^+ , Na^+ , Mn^{2+} , Fe^{2+} , usw. und Anionen wie PO_4^{3-} , AsO_4^{3-} , VO_4^{3-} , SO_4^{2-} , SiO_4^{4-} , CrO_4^{2-} , F^- , Cl^- , OH^- , Br^- , usw. in das jeweilige Gitter eingebaut werden (Abbildung 1). Die wasserhaltigen Phosphate ohne fremde Anionen bilden die Strengit-Gruppe, die Vivianit-Gruppe, die Fairfieldit-Gruppe und die Brushit-Gruppe, und die wasserhaltigen Phosphate mit fremden Anionen bilden die Gordonit-Reihe und die Türkis-Reihe (Abbildung 2) [26].

Besonders beachtenswert ist das Auftreten einer selbstständigen Unterklasse von Uranylphosphaten innerhalb der Klasse der Phosphate-Arsenate-Vanadate, denn mit keinem anderen Anion bildet sich eine spezielle Unterklasse von Uranverbindungen aus. Auch innerhalb dieser Unterklasse finden sich Reihen und Gruppen von Mineralen mit austauschbaren Ionen. Wichtig sind hier die Uran-Glimmer und die Phosphuranylit-Parsonit-Reihe. Innerhalb der Uran-Glimmer können die Kationen Mg^{2+} , Fe^{2+} , Ca^{2+} , Cu^{2+} , Zn^{2+} , Co^{2+} , Mn^{2+} , Ba^{2+} , K^+ , NH_4^+ , H^+ , usw. und die Anionen PO_4^{3-} und AsO_4^{3-} sowie unterschiedliche Wassermengen in das jeweilige Gitter eingebaut werden. Beispiele sind die häufigen Minerale Saleeit und Autunit (Abbildung 3). In den Uran-Glimmern existieren parallele, zueinander verschiebbare $[\text{UO}_2-\text{PO}_4]$ -Schichten, zwischen denen Kationen und Wassermoleküle eingelagert werden können, wodurch sich der Schichtabstand leicht verändert. Die

spezielle Bauweise der Uran-Glimmer-Kristalle bietet eine ideale Möglichkeit, Uran zu binden, weitere Oxokationen wie PuO_2 , NpO_2 oder AmO_2 in die Schichten einzubauen und viele Metallkationen auch in unterschiedlichen Oxidationsstufen zwischen den Schichten einzulagern. Weiterhin zeigen die Uran-Glimmer Eigenschaften von Anionenaustauschern, was in der Literatur für die Alkalimetallionen beschrieben wird [27].

Aus der Geologie und Lagerstättenkunde ist bekannt, daß Uran oft in Phosphatlagerstätten anzutreffen ist, wie z.B. in Afrika und Nordamerika [28]. Die Florida-Phosphate (Apatit) enthalten derartig viel Uran, daß man speziell für sie ein Extraktionsverfahren zur Abtrennung des Urans entwickelt hat [29]. Im "Freeport Experiment" wurde eine sehr kostengünstige Herstellung des "yellow cake" aus den Restlaugen der Phosphorsäureherstellung beeindruckend dokumentiert. Es gelang sogar, die Preise der südafrikanischen Hersteller zu unterbieten und gleichzeitig ein saubereres Produkt herzustellen. Weiterhin befinden sich in Algerien Lagerstätten, welche Autunit und Tobernit enthalten und in Zentralafrika in der Nähe von Bakouma Lagerstätten, in denen das Uran in mikrokristallinen Fluorapatit eingebaut vorliegt.

Es bleibt somit zusammenfassend festzuhalten, daß Uranylphosphate eine besondere Langzeitstabilität zeigen, eine herausragende Stellung im Vergleich zu anderen uranhaltigen Mineralen einnehmen, die Möglichkeit eines diadochen Austausches mit anderen Kationen und Anionen bieten und zudem äußerst schwer löslich sind. Es wäre daher wünschenswert, ein Versatzmaterial zu finden, welches im Falle eines Wasserzutritts eine Umwandlung des gelösten Urans und der gleichzeitig gelösten Spalt- und Aktivierungsprodukte in schwerlösliche Phosphate ermöglicht.

Ausgehend von den beschriebenen mineralogischen und geologischen Erfahrungen haben wir zur Bildung von Actinoiden- und Schwermetallphosphaten die Verbindung Hydroxylapatit (HAP bzw. $\text{Ca}_5\text{OH}(\text{PO}_4)_3$) als phosphatpendende Substanz vorgeschlagen. Vorabuntersuchungen mit verschiedenen Übergangsmetallen in konzentrierten Salzlösungen innerhalb eines Temperaturbereiches von 25° - 120°C bestätigten unsere Vermutungen und zeigten die prinzipielle Wirksamkeit eines HAP-Zusatzes. HAP ist eine sehr billige, ausreichend verfügbare, leicht zu verarbeitende und völlig ungiftige, lebensmitteltaugliche Substanz.

Die nachfolgend beschriebenen Arbeiten wurden im Rahmen eines von BMFT geförderten Pilotprojektes ausgeführt [30]. Ziel dieser Untersuchungen war es, in einem engen zeitlichen Rahmen die immobilisierende Wirkung von Hydroxylapatit unter möglichst endlagerrelevanten Bedingungen zu untersuchen, wobei die Möglichkeit der Nutzung von Hydroxylapatit als Zuschlagstoff zum Versatzmaterial zu prüfen war. Dieser Bereich wurde bisher noch nicht im Rahmen der F+E-Arbeiten zur Endlagerung von radioaktiven Abfällen untersucht, und es war daher notwendig, zunächst grundlegende Fragen zum Rückhaltevermögen zu bearbeiten.

Die Untersuchungen gliederten sich in die drei Hauptbereiche:

- Untersuchung der gebildeten Festkörper (Strukturuntersuchungen)
- Untersuchung des Abreicherungsgrades (Immobilisierungsexperimente)
- Untersuchung der Reaktionskinetik (Kinetische Untersuchungen)

Es sind in der Hauptsache die beiden Aktinidenelemente Uran und Thorium untersucht worden, die Elemente Neptunium und Plutonium aus Gründen des Strahlenschutzes jedoch nur im Hinblick auf den Abreicherungsgrad und die Reaktionskinetik. Alle Experimente wurden in drei unterschiedlichen endlagerrelevanten Salzlösungen durchgeführt, die den Empfehlungen des HAW-Arbeitskreises des BMFT entsprechen (Q-Lauge, Lösung-II und Lösung-III). Da in einem Endlager wegen des geothermischen Temperaturgradienten einerseits und der Wärmeentwicklung des HAW andererseits mit erhöhten Temperaturen zu rechnen ist, erfolgten die Experimente vorerst bei 25°C, 75°C und 120°C.

Für die Strukturuntersuchungen wurden die Aktinoidenphosphate in den drei Lösungssystemen bei drei verschiedenen Temperaturen durch Reaktion von suspendiertem Hydroxylapatit mit gelösten Aktinoidenionen gezüchtet. Die Experimente erfolgten in batch-Versuchen unter ständigem Rühren bei konstanter Temperatur mit einem molaren Verhältnis von Hydroxylapatit zu Aktinoid von 1/5. Die Versuchszeit betrug hierbei vier Wochen. Die Aktinoiden wurden in Form von Uranyl nitrat (0.1 mol/l) und Thoriumnitrat (0.1 mol/l) in Lösung gebracht. Die gebildeten Festphasen wurden nach Beendigung der Experimente abgetrennt, gewaschen und konnten dann mit Hilfe der Röntgenpulverdiffraktometrie, Polarisationsmikroskopie, Rasterelektronenmikroskopie und EDAX untersucht werden. Des Weiteren wurde der jeweilige Schwermetallgehalt quantitativ bestimmt.

Die Strukturuntersuchungen zeigen, daß es sich bei dem Immobilisierungsprozess keinesfalls um eine Sorption an Hydroxylapatit handelt. Vielmehr wird der eingesetzte Hydroxylapatit vollständig umgewandelt, und es bilden sich in Abhängigkeit von den eingesetzten Aktinoiden andere Kristallstrukturen aus (Abbildung 4). Lediglich im Falle des Thoriums erhält man bei 25°C röntgenamorphe Substanzen. Eine Erhöhung der Temperatur führt aber auch für Thorium zu kristallinen Strukturen, die bisher mit der Röntgendiffraktometrie nicht aufgeklärt werden konnten. Uranylionen werden bei allen Temperaturen überwiegend als Doppelphosphate vom eingangs beschriebenen Uranglimmertyp gefällt. Zwischen den $[\text{UO}_2^{2+}|\text{PO}_4^{3-}]$ -Schichten werden hierbei ein- oder zweiwertige Kationen eingelagert, die mit H_2O -Molekülen umgeben sind. Wir fanden in gesättigter MgCl_2 -Lösung und in Lösung II bei 25°C Saleit $\text{Mg}(\text{UO}_2|\text{PO}_4)_2 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$ und in gesättigter NaCl -Lösung und Lösung-III bei 25° und 75°C Meta-Autunit $\text{Ca}(\text{UO}_2|\text{PO}_4)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$. Die Uranglimmer sind als eine Mischkristallreihe anzusehen, so daß sich bei dem großen Ionenangebot in den Salzlösungen vor allem in der Q-Lauge nicht genau definierte reine Phosphatphasen, sondern vielmehr Mischphasen ausbilden, die mit der Röntgenpulverdiffraktometrie nicht exakt bestimmt werden können. Die prinzipielle Kristallstruktur dieser Mischphasen, also die Uranglimmerstruktur, ist aber die gleiche. Es kommt in Abhängigkeit von der Größe der in den Zwischenschichten eingebauten Ionen lediglich zu einer Aufweitung oder Verkleinerung der Schichtabstände in Richtung der c-Achse. Demgegenüber zeigte sich in reinem Wasser bei Versuchen mit HAP und einer $\text{Na}_2\text{HPO}_4/\text{NaH}_2\text{PO}_4$ -Mischung bei 75° und 120°C die Bildung von Uranylphosphat $(\text{UO}_2)_3(\text{PO}_4)_2 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$.

Im Falle des Neptuniums war es aufgrund seiner sehr hohen α -Aktivität nicht möglich, Strukturuntersuchungen mit Hilfe der Röntgendiffraktometrie durchzuführen. Untersuchungen von G. Hoffmann [12] belegen aber, daß Neptunium ebenfalls in der Uranglimmerstruktur auskristallisieren kann.

Für die Immobilisierungsexperimente wurde bei allen batch-Versuchen ein molares Verhältnis von Hydroxylapatit zu Aktinoiden von 10/1 eingestellt. Die Ausgangskonzentration von Uran- und Thoriumnitrat betrug dabei jeweils 10^{-2} mol/l, die Ausgangskonzentration von Neptunylhydroxid $8 \cdot 10^{-4}$ mol/l und die des Plutoniumnitrats $6.4 \cdot 10^{-4}$ mol/l (hierbei lag das Pu in den unterschiedlichen Oxidationsstufen IV, V und VI vor). Die verwendeten Ausgangskonzentrationen sind im Vergleich zu den in einem Endlager zu erwartenden Konzentrationen

zwar sehr hoch, doch sie waren für den analytischen Nachweis der in Lösung verbleibenden Restkonzentrationen aufgrund instrumenteller Erfassungsgrenzen notwendig.

Die Ergebnisse der Versuche mit langen Standzeiten bis hin zu 308 Tagen sind für Uran und Thorium in etwa vergleichbar. Es kommt in allen drei Lösungssystemen und bei allen drei Temperaturen zu einer drastischen Abnahme der Ausgangskonzentration. Die verbleibenden Restkonzentrationen liegen ungefähr bei 10^{-6} bis 10^{-7} mol/l, was einem Abreicherungsfaktor von 1/10.000 bis 1/100.000 entspricht (Abbildung 5). Bei diesen Experimenten zeigten sich keine signifikanten Abhängigkeiten in Bezug auf die Art der Lösungssysteme sowie im Hinblick auf die unterschiedlichen Temperaturen. Für das Element Neptunium zeigte sich dagegen bei den Langzeitversuchen eine Abhängigkeit der Restkonzentrationen von den unterschiedlichen Lösungssystemen. In der Lösung-II waren nach 100 Tagen Versuchsdauer etwa 75%, in der Q-Lauge ca. 95% und in der Lösung-III nahezu 100% des vorgelegten Neptuniums immobilisiert. Die Versuche mit Plutonium wurden nur in der Lösung-II durchgeführt, und es zeigte sich dort, daß nach 90 Tagen etwa 30% des eingesetzten Plutoniums immobilisiert war. Dieses Experiment haben wir dann unter Zusatz von Uranyl nitrat wiederholt, und es ergab sich eine signifikante Verbesserung der Immobilisierung auf 80%, was wir auf einen Einbau von Plutonium in den Uranglimmer zurückführen. Das Plutonium-Experiment zeigt deutlich, daß unter endlagerrelevanten Bedingungen, also hohe Urankonzentrationen und vergleichsweise niedrige Konzentrationen sämtlicher der Spalt- und Aktivierungsprodukte, neben der direkten Bildung von Spalt- und Aktivierungsproduktphosphaten noch eine weitergehende Immobilisierung durch den Einbau dieser Elemente in die Uranphosphatphasen erwartet werden kann, welche das Rückhaltevermögen des Versatzes nochmals erhöht (Abbildung 7).

Die Kinetik des Immobilisierungsprozesses ist für die Elemente Uran, Thorium, Neptunium und Plutonium untersucht worden. Die Versuchszeiten variierten dafür von sehr kurzen Zeiten von 5 Minuten bis 24 Stunden bis hin zu Langzeitexperimenten von 1 Tag bis zu 1 Jahr.

Im Falle des Thoriums wurde die Reaktionsgeschwindigkeit mit einem 10fachen molaren Überschuß an Hydroxylapatit im Vergleich zur Thoriumkonzentration bestimmt. Es stellte sich bei den Kurzzeitexperimenten schon nach 5 Minuten die gleiche Restkonzentration wie bei den Langzeitexperimenten ein; unter diesen Versuchsbedingungen

verläuft die Reaktion also extrem schnell. Im Gegensatz dazu verläuft die Immobilisierung des Neptuniums und auch die des Plutoniums wesentlich langsamer. Selbst nach 100 Tagen Versuchsdauer ist die Immobilisierung noch nicht vollständig abgeschlossen (Abbildung 7 und 8). Es ist dabei deutlich zu sehen, daß die unterschiedlichen Lösungssysteme einen großen Einfluß auf die Reaktionsgeschwindigkeit ausüben. In der Lösung-II verläuft die Reaktion am langsamsten, in der Lösung-III am schnellsten. Genau dasselbe Geschwindigkeitsgefälle von Lösung-II über Q-Lauge hin zu Lösung-III zeigen die Versuchsergebnisse der Uranimmobilisierung (Abbildung 6). Da die Uranimmobilisierung ungefähr genau so schnell wie die Immobilisierung des Thoriums verläuft, wurde in einer gesonderten Versuchsreihe das molare Verhältnis von Hydroxylapatit zu Uran von 10/1 auf 5/2 erniedrigt, also mit einem geringerem HAP-Überschuß gearbeitet, um den Immobilisierungsprozeß zu verlangsamen. Dies war erforderlich, um für Kontaktzeiten von mehr als 5 Minuten überhaupt unterscheidbare Meßwerte zu erhalten, da die Reaktion bei einem Verhältnis von 10/1 innerhalb von 5 Minuten nahezu vollständig verläuft. Man sieht, abgesehen von den erwähnten Einflüssen der unterschiedlichen Lösungssysteme, daß die Immobilisierung unter diesen Bedingungen nach 7 Tagen noch nicht vollständig abgeschlossen ist. Langzeitexperimente zeigten allerdings, daß es sich dabei nur um einen Anfangseffekt handelt und die nach 5 Monaten gemessenen Restkonzentrationen ungefähr gleich sind. Daraus wird ersichtlich, daß in den verschiedenen Lösungssystemen die prinzipielle Immobilisierungsreaktion dieselbe ist und die unterschiedlichen Reaktionsgeschwindigkeiten wohl nur durch die stark unterschiedlichen Viskositäten der drei Lösungssysteme hervorgerufen werden. Aus diesem Grunde haben wir die Viskositäten der drei Lösungssysteme vermessen, und es zeigte sich hierbei, daß die zuvor beschriebene Reihenfolge eingehalten wird. Die Viskosität nimmt von Lösung-II über Q-Lauge hin zu Lösung-III stark ab.

Die Ergebnisse der reaktionskinetischen Untersuchungen lassen den Schluß zu, daß es in einem Endlager mit den zu erwartenden wesentlich geringeren Aktinidenkonzentrationen und dem damit verbundenen noch größeren Überschuß an Hydroxylapatit zu einer nahezu quantitativen und sehr schnellen Immobilisierung zumindest der hier untersuchten Elemente kommt.

Zusammenfassend kann gesagt werden, daß sich mit diesem als Pilotprojekt konzipierten BMFT-Vorhaben die Rückhaltewirkung von Hydroxylapatit auf die Elemente Uran, Thorium, Neptunium sowie

Plutonium eindrucksvoll bestätigt hat. Die Schwermetallfixierung erfolgt aufgrund einer chemischen Reaktion, die zur Bildung extrem wasserunlöslicher Verbindungen führt. Die Immobilisierung erfolgt auch in hochkonzentrierten Salzlösungen und bei Temperaturen bis zu 120°C. Die Geschwindigkeit der Immobilisierung ist für die Elemente Uran und Thorium bei einem 10fachen Überschuß an Hydroxylapatit sehr schnell und für die Elemente Neptunium und Plutonium unter dem Gesichtspunkt der zeitlichen Abläufe in einem Endlager völlig ausreichend.

Abschließend soll noch einmal betont werden, daß Hydroxylapatit eine ausreichend verfügbare, relativ preiswerte und völlig ungiftige Substanz ist, die sogar in der Lebensmittelindustrie Verwendung findet.

Die vielversprechenden Ergebnisse dieses Pilotprojektes lassen es sinnvoll erscheinen, in einem Nachfolgeprojekt die grundsätzliche Wirkungsweise des Hydroxylapatits als Zusatz zum Versatzmaterial im Detail weiter zu erforschen. Wie für ein Pilotprojekt üblich, wurde vorerst mit einer hauptsächlich phänomenologischen Betrachtungsweise an die Fragestellungen herangegangen. In weiterführenden Arbeiten müßte deshalb vordringlich die physikalische Chemie der Immobilisierung untersucht werden, und es sollten hierbei insbesondere die Löslichkeitsprodukte der entstehenden Phosphatphasen bestimmt werden, welche für Modellrechnungen zur Langzeitsicherheit von Endlagern benötigt werden.

Ein weiterer Untersuchungsschwerpunkt wäre die Wechselwirkung von Hydroxylapatit mit den in riesigen Mengen in ein Endlager eingebrachten Behältermaterialien (Pollux-Behälter ect.), d.h. der Einfluß auf die Korrosionsgeschwindigkeit, die Möglichkeit von Konkurrenzreaktionen oder mögliche Auswirkungen auf die Immobilisierungseigenschaften des Hydroxylapatits.

Neben diesen Hauptschwerpunkten gibt es noch eine Reihe weiterer Fragestellungen, denen vor einem Einsatz von Hydroxylapatit als Zuschlag zum Versatzmaterial unbedingt nachgegangen werden sollte:

- a) Beeinflussen Komplexbildner die Immobilisierung durch HAP ?
- b) Wie stark ist das Ionenaustauschvermögen der Uranglimmer in gesättigten Salzlösungen gegenüber Problemelementen wie Cs-137 und Tc-99 ?
- c) Wie verhält sich der Zuschlagstoff HAP gegenüber MAW- und LAW- Abfällen ?

LITERATURVERZEICHNIS

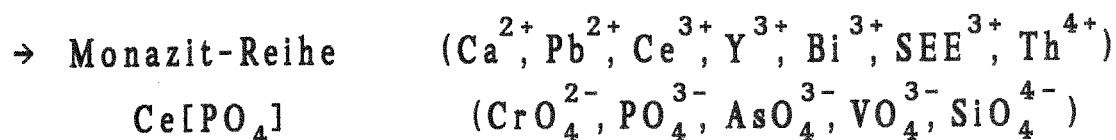
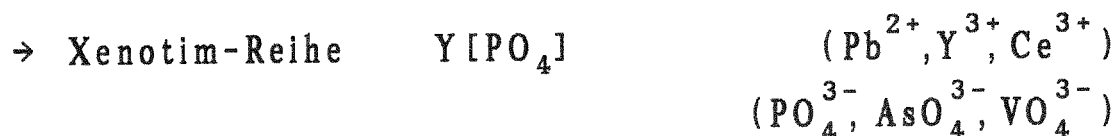
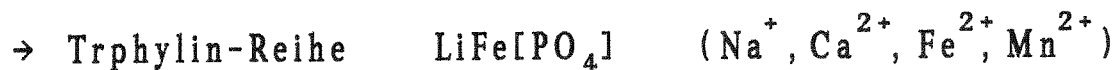
- [1] HERRMANN, A.G.
Geochemische und mineralogische Grundlagen für die Endlagerung
radioaktiver Substanzen in Salzdiapiren Norddeutschlands
Fortschritte der Mineralogie - 58. Band - Stuttgart 1980
- [2] ROXBURGH, I.S.
Geology of High-Level Nuclear Waste Disposal
Verlag - Chapman and Hall - London/New York 1987
- [3] BROOKINS, D.G.:
"Geochemical Aspects of Radioactive Waste Disposal",
Springer-Verlag 1984, p.281 ff.
- [4] BAUMGÄRTNER, F.
Chemie der Nuklearen Entsorgung - Teil I, II, III
Verlag Karl Thiemig - München 1978 und 1980
- [5] STORK, R., ASCHENBACH, J., HIRSEKOM, R.P.,
NIES, A., STELTE, N.
PAGIS - Disposal in Salt Formations
GSF-Report 23/88 - European Communities 1988 / EUR 11778 EN
- [6] BUHMANN, D., NIES, A., STORK, R.
Analyse der Langzeitsicherheit von Endlagerkonzepten für
wärmeerzeugende radioaktive Abfälle
GSF-Bericht 27/91
- [7] BECHTHOLD, W., BRAUN, W., BRÜCKNER, C., CLOSS, K.D.,
KNAPP, U., PAPP, R.
Systemanalyse Mischkonzept
KfK - KWA-Nr. 2190 A1 - Karlsruhe 1989
- [8] BREWITZ, W., FABER, P., FEIN, E., HEEMANN, U.,
KÜHLE, TH., ZUDE, F.
Wissenschaftliche Grundlagen der Endlagersicherheit in der
Nachbetriebsphase eines Endlagers für hochradioaktive Abfall-
stoffe in einem Salzstock
GSF-Bericht 15/93
- [9] MOAK, D.P. 1981:
"Waste Package Materials Screening and Selection".
Battelle Mem.Inst.Report ONWI-312, Columbus, Ohio. 1981
- [10] COONS, W.E., MOORE, E.L., SMITH, M.J. AND KASER, J.D.
"The Function of an Engineered Barrier System for a Nuclear
Waste Repository in Basalt". DOE Report RHO-BWI-LD-23, 1980
- [11] NOWAK, E.J.:
"The Backfill Engineered Barrier for Nuclear Waste Management."
Sandia National Laboratories, Albuquerque, New Mexiko
SAND 79-0990C. (1979)

- [12] WINSLOW, C.D.:
"The Sorption of Cesium and Strontium from Concentrated Brines by Backfill Materials."
Sandia National Laboratories Report SAND 80-2046. (1981)
- [13] BROWN, J.R., FYFE, W.S., MURRAY, F., KRONBERG, B.I.:
"Immobilization of U-Th-Ra in Mine Wastes"
Can. Min. J., V. 102(3), p. 71-76 (Mar. 1981)
- [14] SUROTO,:
"Coprecipitation Process Studies of Liquid Uranium Waste by Using Many Kinds Flocculents"
Report Gama Research Centre, Jogjakarta (Indonesia)
(2584150) PPGM-L-165-78, 1978 18 p
- [15] YAMABE, TAKOE, TAKAI, NOBUHARU
"Separation of Uranium from Sea Water by Precipitation Method"
Nippon Kaisui Gakkei-Shi, 24 (127), pp. 16-19
- [16] PORUBAEV, V.P., SVYADOSHCH, Yu.N., SALIN, A.A.,
KULESHOV, V.A., SIROTKINA, V.D.
"Use of Inorganic Sorbents for Purifying Waste Waters"
Tr. Gos. Nauch-Issled. Proekt. Inst. Obogashch. Rud Tsvet.,
Metal "Kasmekhanobr", No.3, pp. 314-29
- [17] VAN DER HORST, J.M.A.
"Fighting Pollution with a Pollutant"
Effluent Water Treat. J. 13 (8), pp. 495-497
- [18] KINOSHITA, HISAHIRO
"Treatment of Metal-Containing Waste Water"
Japan. Kokai JP 49/121359 (74/121359), 20. Nov. 1974, 3 pp.,
Appl. or Pr. 7334, 072, 27. Mar. 1973
- [19] SCOTT, D.S.
"Removal and Recovery of Metals and Phosphates from Municipal Sewage Sludge"
(Research rept. Sep. 76-Oct. 78) Waterloo Univ. (Ontario), Dept. of Chemical Engineering, Sponsor: Municipal Environment Research Lab., Cincinnati, OH. Wastewater Research Div. (018479009)
- [20] NIKOLAEV, A.V., MAZUROVA, A.A.
"Removal of Heavy Metal Ions from Waste Waters"
Institute of Inorganic Chemistry, Novosibirsk, USSR SU 558004,
5. Nov. 1977, From: Otkrytiya Izobret, Prom. Obraztsy,
Tovarnye Znaki 1977, 54 (41), 234.
- [21] JOVANOVIC, D.
"Purifying Waters".
Fed. Rep. Ger., Gebr. Offen. DE 3206851 A1, 15. Sep. 1983, 8 pp.,
Appl. 3206851, 26. Feb. 1982

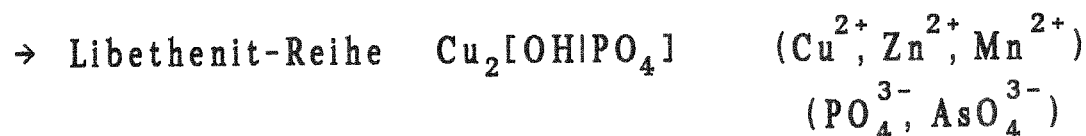
- [22] TWIDWELL, L.G., ROBINS, R.G., DAHNKE, D.R.
"Method for Recovering Metal Values from Mixed-Metal
Aqueous Solutions by Selective Phosphate Precipitation"
Eur. Pat. Appl. EP 221760 A2, 13. May 1987, 13 pp., Designated
States: BE, DE, ES, FR, GB, Appl. 86/308398, 29. Oct. 1986
US Appl. 794106, 1. Nov. 1985
- [23] SEIM, R. UND TISCHENDORF, G.
Grundlagen der Geochemie
VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie - Leipzig 1988
- [24] RAMDOHR, P. , STRUNZ, H. , KLOCKMANN, F.
Lehrbuch der Mineralogie
Verlag Ferdinand Enke - Stuttgart 1978/1980
- [25] RÖSLER, H.J.
Lehrbuch der Mineralogie
VEB Deutscher Verlag für Grundstoffindustrie - Leipzig 1984
- [26] NRIAGU, J.O. , MOORE, P.B.
Phosphate Minerals
Verlag Springer - Berlin/Heidelberg/New York/Tokyo 1984
- [27] CLEARFIELD, A.
Inorganic Ion Exchange Materials
Verlag CRC-Press Boca Raton, Florida USA 1982
- [28] DAHLKAMP, F.J.
Uranium Deposits
Gmelin - Teilband - Uran - Part A - Supl. Vol. 1
Verlag Springer - Berlin/Heidelberg/New York/Tokyo 1979
- [29] MOLLERE, PH.D.
"Uranium Recovery from Phosphoric Acid by Solvent Extraction:
A Review of the Freeport Experience"
Proceedings of the "International Solvent Extraction Conference"
ISEC - München - 1986, Vol.II , pp 49-56
- [30] GAUGLITZ, R., HOLTERDORF, M., FRANKE, W., MARX, G.
"Untersuchung der Verstärkung der Rückhaltewirkung des
Nahbereichs eines Endlagers in einem Salzdom gegenüber
mehrwertigen Kationen durch Hydroxylapatit"
Abschlußbericht über das BMFT-Projekt 02 E 80 30 3 (1994)

Gruppen von Phosphatmineralen in denen Kationen und Anionen im Gerüst ausgetauscht werden können

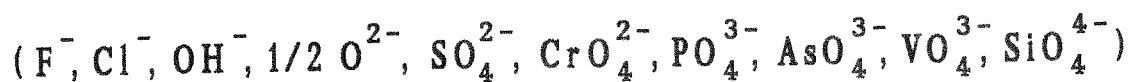
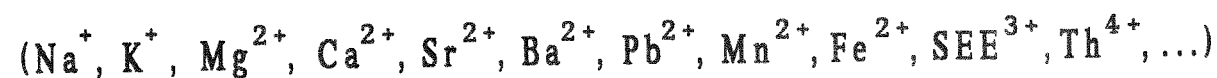
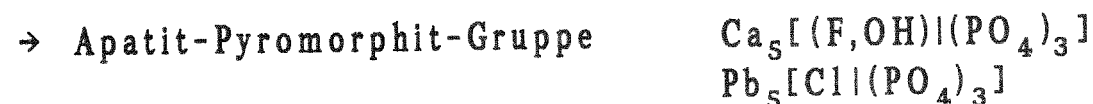
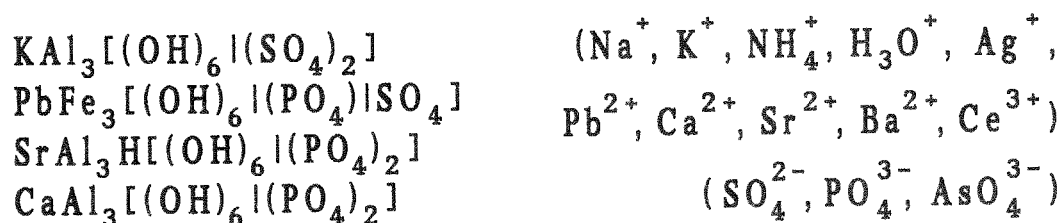
A) wasserfreie Phosphate ohne fremde Anionen



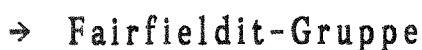
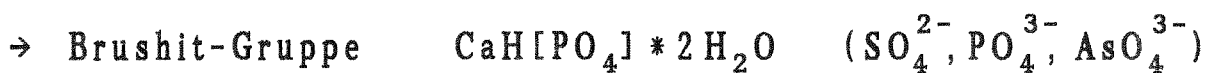
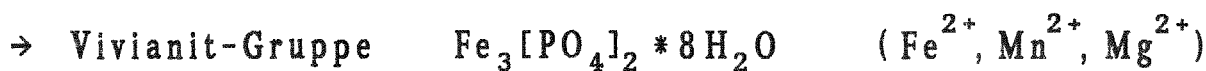
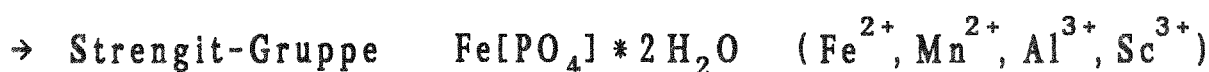
B) wasserfreie Phosphate mit fremden Anionen



→ Alunit-Beudantit-Goyazit (Crandallit)-Gruppe



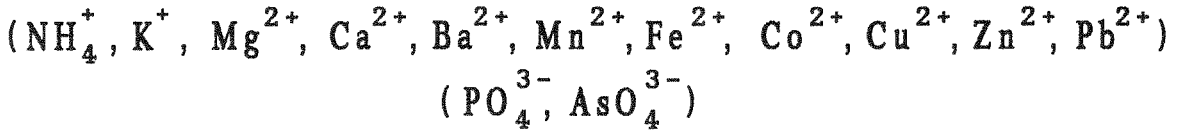
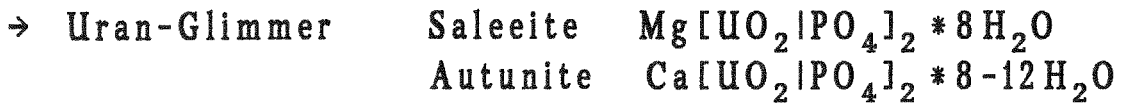
C) wasserhaltige Phosphate ohne fremde Anionen



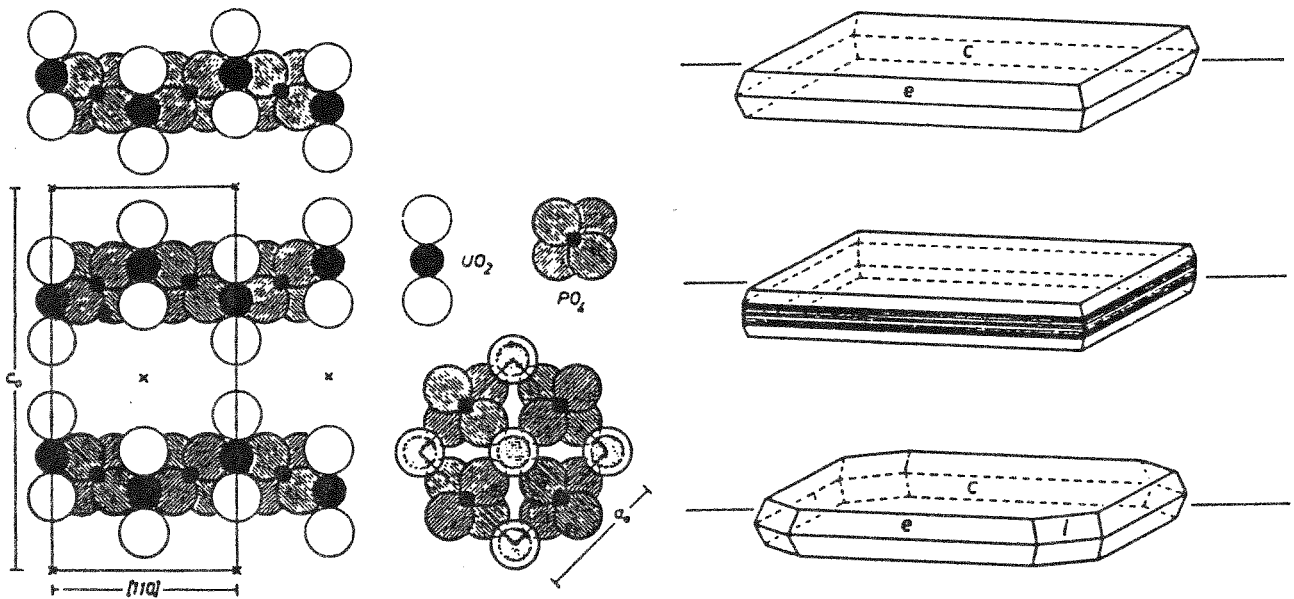
D) wasserhaltige Phosphate mit fremden Anionen



E) Uranyl-Phosphate



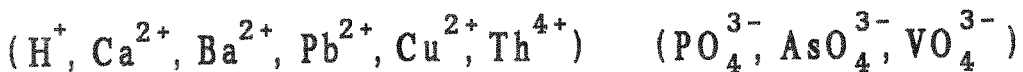
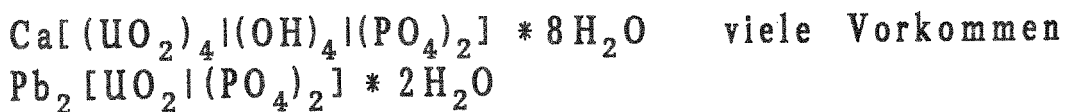
Die Meta-Formen haben einen geringeren Wassergehalt



Schichtstruktur

Kristallform

→ Phosphuranylit-Parsonit-Gruppe



Reaktion einer HAP-Suspension mit Uran
Untersuchung der isolierten Feststoffe
durch Röntgen-Pulver-Diffraktometrie

	Q-Lauge	Lösung II	Lösung III
25°C	kristallin	Saléelit	Meta-Autunit I
75°C	kristallin	kristallin	Meta-Autunit I
120°C	kristallin	Meta-Autunit II	kristallin

Fünffacher molarer Uranüberschuß bei 4 Wochen Kontaktzeit
 $5 \cdot 10^{-3}$ mol/l UO_2^{2+} und $3 \cdot 10^{-3}$ mol/l PO_4^{3-}

Reaktion einer HAP-Suspension mit Thorium
Untersuchung der isolierten Feststoffe
durch Röntgen-Pulver-Diffraktometrie

	Q-Lauge	Lösung II	Lösung III	Wasser
25°C	amorph	amorph	amorph	-----
75°C	kristallin	kristallin	kristallin	kristallin
120°C	kristallin	kristallin	kristallin	kristallin

Fünffacher molarer Thoriumüberschuß bei 4 Wochen Kontaktzeit
 $5 \cdot 10^{-3}$ mol/l Th^{4+} und $3 \cdot 10^{-3}$ mol/l PO_4^{3-}

Prozentualer Gewichtsanteil an Uran in den
isolierten Phosphatphasen (HAP)

	Q-Lauge	Lösung II	Lösung III
25°C	58%	57%	59%
75°C	52%	54%	54%
120°C	59%	54%	60%

Fünffacher molarer Uranüberschuß bei 4 Wochen Kontaktzeit
 $5 \cdot 10^{-3}$ mol/l UO_2^{2+} und $3 \cdot 10^{-3}$ mol/l PO_4^{3-}

Prozentualer Gewichtsanteil an Thorium
in den isolierten Phosphatphasen (HAP)

	Q-Lauge	Lösung II	Lösung III
25°C	40%	24%	30%
75°C	40%	42%	30%
120°C	25%	40%	35%

Fünffacher molarer Thoriumüberschuß bei 4 Wochen Kontaktzeit
 $5 \cdot 10^{-3}$ mol/l Th^{4+} und $3 \cdot 10^{-3}$ mol/l PO_4^{3-}

Immobilisierung von Uran durch
Hydroxylapatit $\text{Ca}_5\text{OH}(\text{PO}_4)_3$

	Q-Lauge	Lösung II	Lösung III
25°C	$6.5 \cdot 10^{-7}$ 42 Tage	$1 \cdot 10^{-6}$ 70 Tage	$8 \cdot 10^{-6}$ 70 Tage
75°C	$1 \cdot 10^{-6}$ 42 Tage	$4.5 \cdot 10^{-7}$ 113 Tage	$1.4 \cdot 10^{-7}$ 308 Tage
120°C	$4 \cdot 10^{-8}$ 199 Tage	-----	$7 \cdot 10^{-8}$ 199 Tage

Kontaktzeit und Restkonzentration (mol/l)
Ausgangskonzentration 10^2 mol/l Uran und 10^1 mol/l HAP

Immobilisierung von Thorium durch
Hydroxylapatit $\text{Ca}_5\text{OH}(\text{PO}_4)_3$

	Q-Lauge	Lösung II	Lösung III
25°C	$9.4 \cdot 10^{-6}$ 156 Tage	$1.2 \cdot 10^{-6}$ 210 Tage	$5.5 \cdot 10^{-7}$ 210 Tage
75°C	$2.5 \cdot 10^{-5}$ 156 Tage	$8.2 \cdot 10^{-7}$ 156 Tage	$1.0 \cdot 10^{-6}$ 156 Tage
120°C	$1.9 \cdot 10^{-6}$ 102 Tage	$1.9 \cdot 10^{-6}$ 102 Tage	$5.0 \cdot 10^{-7}$ 72 Tage

Kontaktzeit und Restkonzentration (mol/l)
Ausgangskonzentration 10^2 mol/l Thorium und 10^1 mol/l HAP

Immobilisierung von Uran durch
Hydroxylapatit $\text{Ca}_5\text{OH}(\text{PO}_4)_3$

	Q-Lauge	Lösung II	Lösung III
25°C	6/100000 42 Tage	1/10000 70 Tage	8/10000 70 Tage
75°C	1/10000 42 Tage	4/100000 113 Tage	2/100000 308 Tage
120°C	4/1000000 199 Tage	-----	7/1000000 199 Tage

Kontaktzeit und Abreicherungsfaktor (Restkonz./Ausgangskonz.)
Ausgangskonzentration 10^2 mol/l Uran und 10^1 mol/l HAP

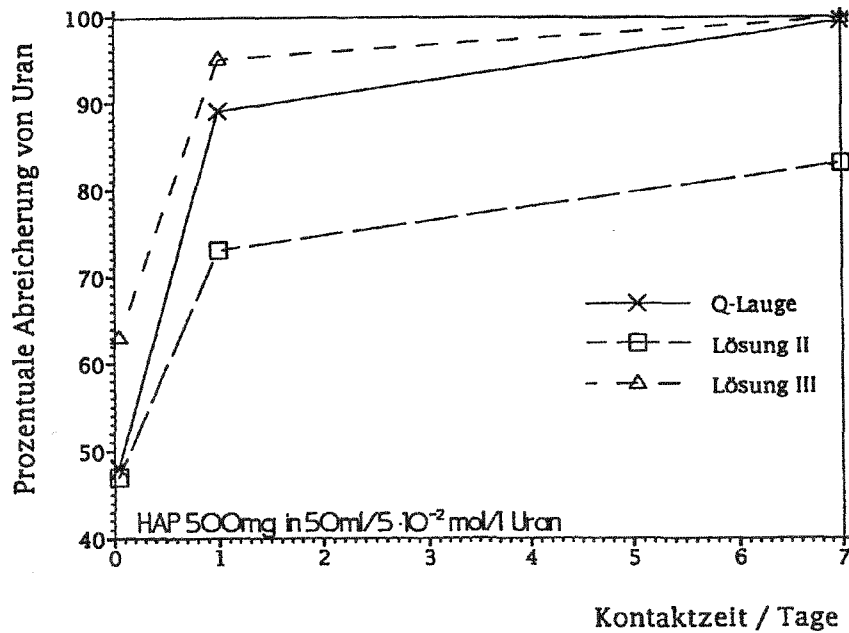
Immobilisierung von Thorium durch
Hydroxylapatit $\text{Ca}_5\text{OH}(\text{PO}_4)_3$

	Q-Lauge	Lösung II	Lösung III
25°C	9/10000 156 Tage	1/10000 210 Tage	5/100000 210 Tage
75°C	2/1000 156 Tage	8/100000 156 Tage	1/10000 156 Tage
120°C	2/10000 102 Tage	2/10000 102 Tage	5/100000 72 Tage

Kontaktzeit und Abreicherungsfaktor (Restkonz./Ausgangskonz.)
Ausgangskonzentration 10^2 mol/l Thorium und 10^1 mol/l HAP

Abb. 5

Zeitabhängigkeit der Uranimmobilisierung
in verschiedenen Lösungssystemen durch
Hydroxylapatit bei 298 K



Kinematische Viskosität
als Funktion der Temperatur

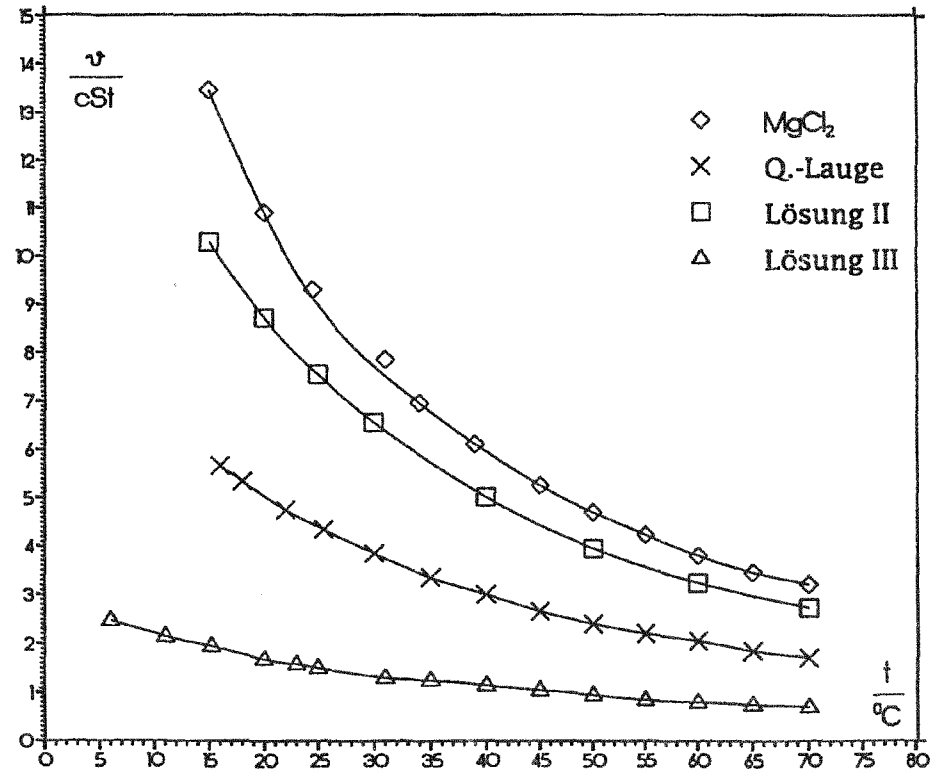
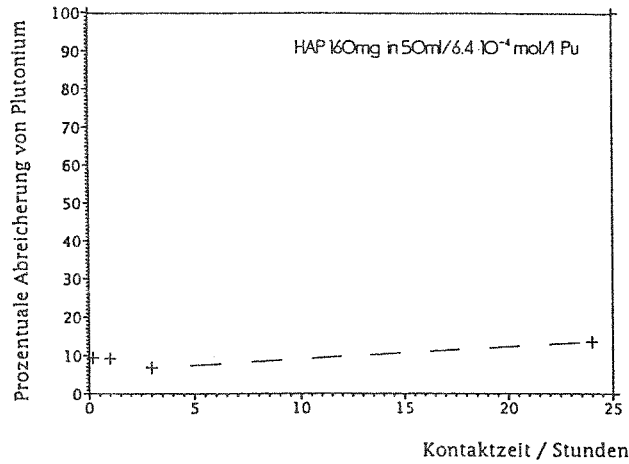
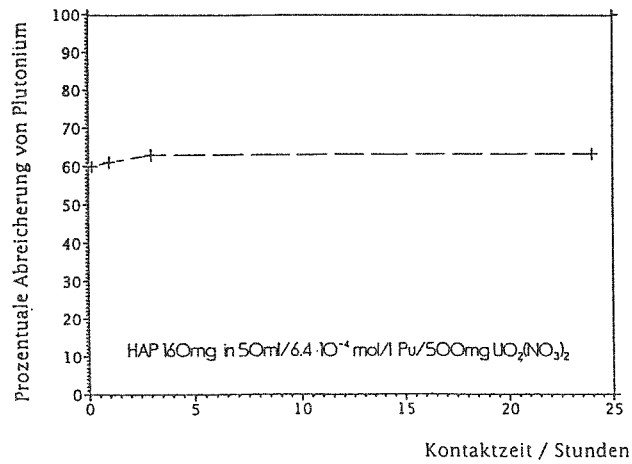


Abb. 6

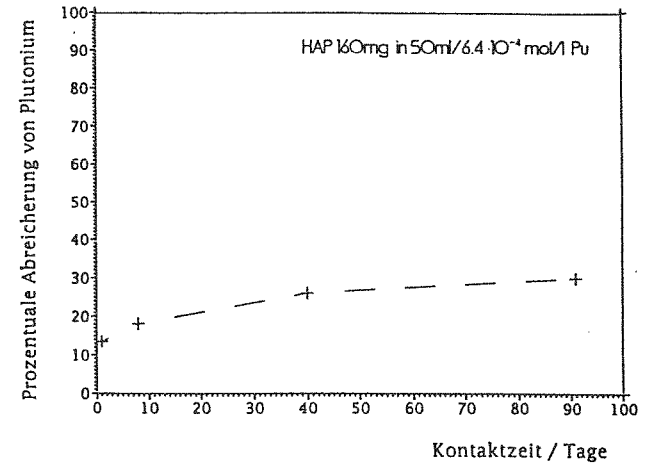
Zeitabhängigkeit der Plutoniumimmobilisierung
in Lösung II durch Hydroxylapatit bei 298 K



Zeitabhängigkeit der Plutoniumimmobilisierung
in Lösung II durch Hydroxylapatit
bei 298 K in Gegenwart von Uran



Zeitabhängigkeit der Plutoniumimmobilisierung
in Lösung II durch Hydroxylapatit bei 298 K



Zeitabhängigkeit der Plutoniumimmobilisierung
in Lösung II durch Hydroxylapatit bei 298 K
mit einem hundertfachen HAP-Überschuß

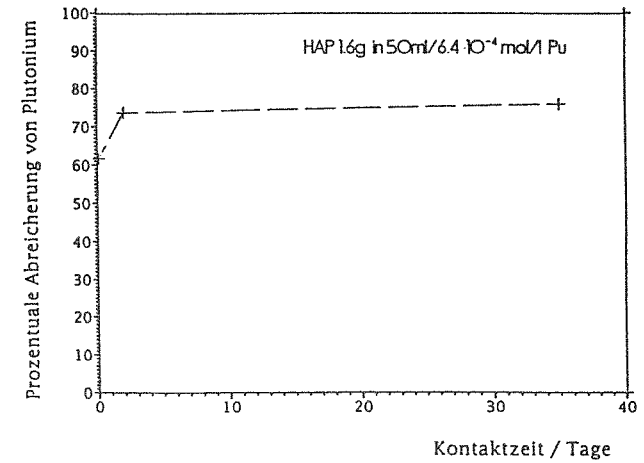
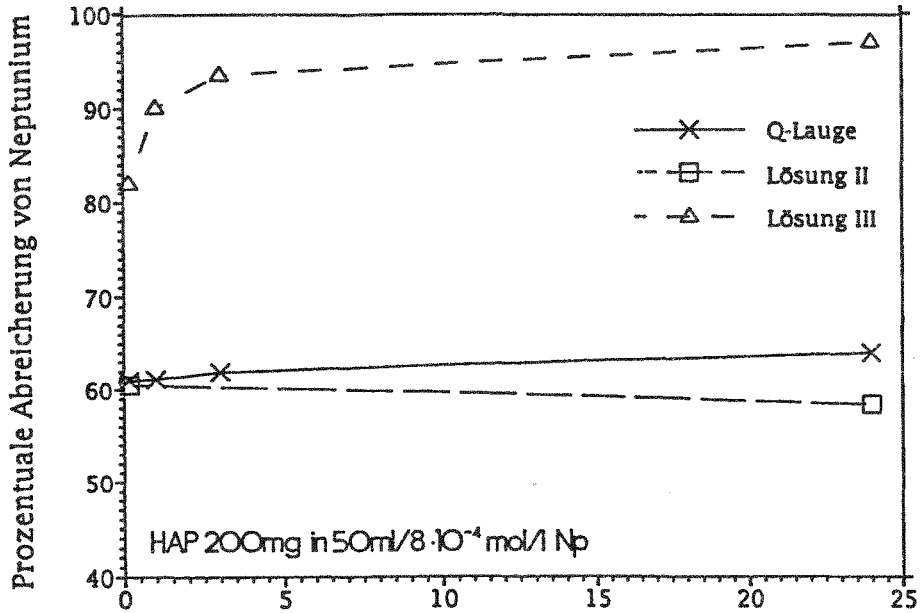
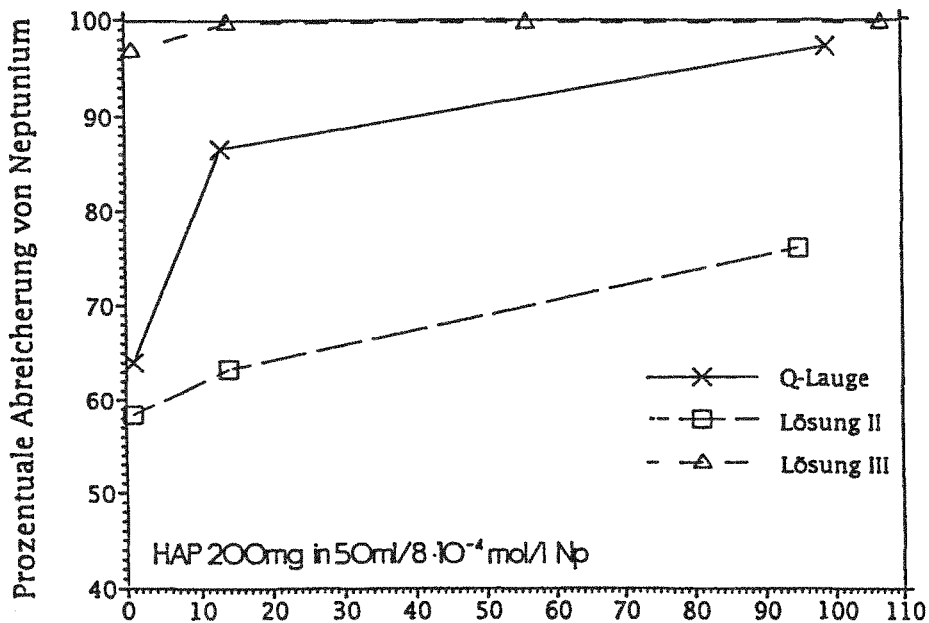


Abb. 7

Zeitabhängigkeit der Neptuniumimmobilisierung in verschiedenen Lösungssystemen durch Hydroxylapatit bei 298 K



Zeitabhängigkeit der Neptuniumimmobilisierung in verschiedenen Lösungssystemen durch Hydroxylapatit bei 298 K



Kernforschungszentrum Karlsruhe

**Workshop
Natürliche Analoga zur Endlagerung
radioaktiver Abfälle
4. + 5. November 1993**

**Natürliche Analoga im Hinblick auf
kolloidale Verbindungen und Migration
von Radionukliden in Aquifersystemen^{*)}**

**J. Kim
KfK-INE**

^{*)} Eine schriftliche Ausarbeitung dieses Beitrages lag bei Drucklegung des Berichtes nicht vor