

**Projekt ANSICHT**

**Spezifische Prozessanalysen**

**ARBEITSBERICHT**





PROJ	PSP	OBJ	FUNK	KOMP	BAUG	AG	UA	LFNR	RV
FE						BE	BY	0010	00

DOKID: 11780528  
ULV-Nr.: 659484

# Projekt ANSICHT

## Spezifische Prozessanalysen

### ARBEITSBERICHT

Autoren: Michael Jobmann  
Victoria Burlaka  
Artur Meleshyn  
André Rübel

Dieser Bericht wurde erstellt im Rahmen des FuE-Vorhabens **ANSICHT**  
(Methodik und Anwendungsbezug eines Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein HAW-Endlager im Tonstein)

Auftraggeber: KIT (PTKA-WTE) FKZ: 02E11061A/B  
Berichtsnummer: TEC-13-2016-B

Peine: 04.07.2016

Die diesem Bericht zugrunde liegenden Arbeiten wurden im Auftrag des BMWi von der BGR sowie vertreten durch den Projektträger Karlsruhe, Karlsruher Institut für Technologie (KIT) unter den Förderkennzeichen 02E11061A und 02E11061B von der GRS bzw. DBE TECHNOLOGY GmbH durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt liegt jedoch allein bei den Autoren.



**PTKA**  
**Projektträger Karlsruhe**  
Karlsruher Institut für Technologie

## Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Analytische Abschätzung zur Dauer der Aufsättigung des Grubengebäudes (André Rübel)</b>	<b>5</b>
<b>2</b>	<b>Abschätzung zur Gasproduktion im Nahfeld (André Rübel)</b>	<b>8</b>
2.1	Vorgehen bei der Berechnung	8
2.2	Endlagerstandortmodell NORD	9
2.3	Endlagerstandortmodell SÜD	11
2.4	Vergleichende Betrachtung	14
<b>3</b>	<b>Modellierungen zum Gastransport im Grubengebäude (André Rübel)</b>	<b>15</b>
3.1	Modell A: 1D-Modell	16
3.2	Modell B: 1D-Modell mit Berücksichtigung des Streckenausbaus und der Auflockerungszone	28
3.3	Modell C: 2D-Modell	30
3.4	Zusammenfassende Bewertung	34
<b>4</b>	<b>3D-Modellierungen zum gekoppelten Lösungs- und Gastransport im Endlager (Victoria Burlaka)</b>	<b>36</b>
4.1	Modellierung einer Einlagerungsstrecke	37
4.1.1	Standortmodell NORD	37
4.1.2	Standortmodell SÜD	39
4.1.3	Anfangsbedingungen	39
4.1.4	Randbedingungen	40
4.2	Modellierung der Einlagerungsfelder	42
4.2.1	Modellgeometrie Standortmodell NORD	42
4.2.2	Anfangsbedingungen	44
4.2.3	Randbedingungen	44
4.3	Materialeigenschaften	45
4.4	Ergebnisse	47
4.4.1	Modell mit einer Einlagerungsstrecke (NORD)	47
4.4.2	Modell mit einer Einlagerungsstrecke (SÜD)	53
4.4.3	Modell mit allen Einlagerungsfeldern (NORD)	55
<b>5</b>	<b>Analysen zu Temperatureffekten im Nahbereich der Behälter (Michael Jobmann &amp; Artur Meleshyn)</b>	<b>62</b>
5.1	Behälter, Innenliner und Außenliner	62
5.2	Glasmatrix der Wiederaufarbeitungsabfälle	62
5.3	Sandfüllung im Innenliner (Konzept NORD)	63
5.4	Buffermaterial	65
5.4.1	Thermo-hydro-mechanische (THM) Effekte	65
5.4.2	Chemische, Biologische und Mineralogische (CBM) Effekte	69
5.4.3	Bewertung der Effekte	79
<b>6</b>	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>81</b>

## Einleitung

Im Zuge der Projektbearbeitung war es notwendig, eine Reihe von spezifischen Prozessanalysen durchzuführen, um das Prozessverständnis für bestimmte Sachverhalte zu verbessern. Die Ergebnisse der Prozessanalysen fanden Eingang in die Entwicklung der Endlagerkonzepte sowie vor allem in die Erstellung und Beschreibung einzelner FEP.

Im Einzelnen wurden folgende Analysen durchgeführt:

- Gasproduktion im Endlager
- Migration der Gase im Streckensystem
- Dauer der Aufsättigung des Streckensystems mit und ohne Gasbildung
- Analysen zur thermischen Auswirkungen auf das Nahfeld

Die Ergebnisse dieser Analysen sind in dem vorliegenden Arbeitsbericht dokumentiert.

## 1 Analytische Abschätzung zur Dauer der Aufsättigung des Grubengebäudes (André Rübel)

Bei dem Verschließen eines Endlagers werden die aufgefahrenen Grubenräume weitgehend mit Versatz verfüllt. Im Fall des Endlagerkonzepts am Endlagerstandortmodell Nord ist als Versatz aufbereitetes Ausbruchsmaterial vorgesehen (Lommerzheim & Jobmann 2015), das unter Umständen noch mit Bentonit oder Sand vermischt werden kann. Der Porenraum des eingebrachten Versatzes ist nicht vollständig mit Lösung gefüllt, sondern weist, falls er nicht gezielt befeuchtet wird, nur eine geringe Sättigung auf. Weiterhin sind in den Firsten der Grubenräume unverfüllte Hohlräume zu erwarten, die entweder aus einer Setzung des Versatzes oder aus einer aus technischen Gründen unvollständigen Verfüllung resultieren können. Somit herrschen im Grubengebäude zum Zeitpunkt des Verschlusses des Endlagers nur ein geringer Sättigungsgrad mit Lösung und ein Fluidruck, der dem Atmosphärendruck in der Grubenluft entspricht. Als Folge des hohen Druckgradienten zwischen dem ungestörten Druck im Wirtsgestein auf der Endlagerteufe und dem Atmosphärendruck in den Grubenbauen des Endlagers wird mit dem Beginn der Auffahrung Lösung in das Grubengebäude zufließen bis ein Druckgleichgewicht erreicht ist; entweder dadurch, dass das Grubengebäude vollständig mit Lösung gesättigt ist und sich ein Lösungsdruck aufgebaut hat, der dem im ungestörten Wirtsgestein entspricht, oder dass der Druck in der Gasphase im Grubengebäude dem hydrostatischen Druck in der Endlagerteufe entspricht.

In diesem Kapitel wird durch einfache analytische Rechnungen die Zeitdauer für die vollständige Aufsättigung des Grubengebäudes abgeschätzt. Dabei wird der unbehinderte Lösungsfluss aus dem Wirtsgestein in das Grubengebäude betrachtet. Der Zufluss durch die Schächte, sowie eine eventuelle Behinderung des Lösungszutritts als Folge eines Druckaufbaus durch Gase im Endlager werden dabei vernachlässigt. Es werden zwei geometrische Grenzfälle betrachtet, für die analytische Lösungen eines Lösungsflusses nach dem Darcy-Gesetz vorliegen. Diese beiden Geometrien sind in Abb. 1.1 skizziert.

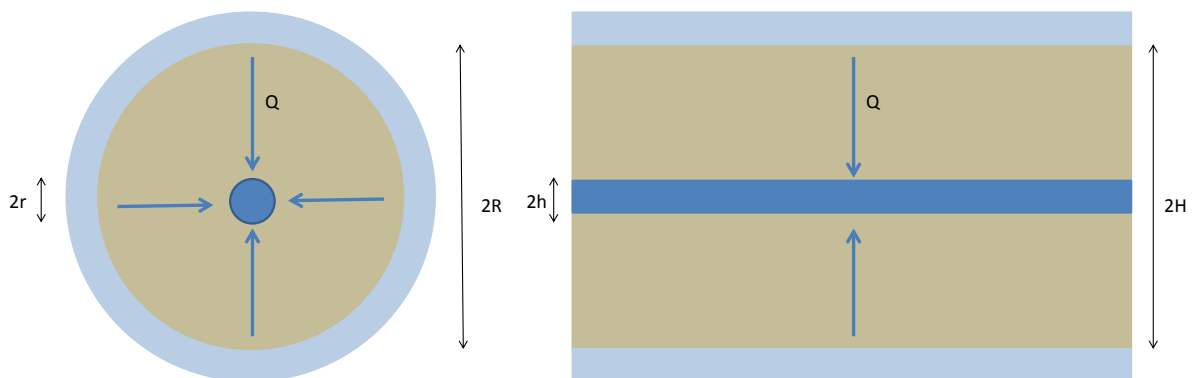


Abb. 1.1: Radiale Geometrie (links) und planare Geometrie (rechts) für die analytische Abschätzung des Lösungszutritts in das Endlager

Direkt nach dem Verschließen des Endlagers wird die Lösung aus allen Richtungen aus dem Wirtsgestein in die Grubenbaue, wie z. B. eine Strecke oder ein Bohrloch zufließen. Dabei entwickelt sich ein Absenkungstrichter des ungestörten Drucks im Wirtsgestein um den entsprechenden Grubenbau. Bei einem lateral nicht sehr weit ausgedehnten Grubenbau, wie einer Strecke, entspricht dieses Verhalten weitestgehend einer radialen Geometrie (Abb. 1.1 links). Im Fall einer anisotropen Permeabilität kann der Absenkungstrichter nicht rund, sondern auch ellipsenförmig ausgebildet sein. In horizontaler Richtung eines Grubenbaus sind im Allgemeinen nicht weit entfernt weitere Grubenbaue anzutreffen. Daher werden sich die Absenkungstrichter benachbarter Grubenbaue mit der Zeit überschneiden und die Potential-

differenz in horizontaler Richtung sinkt. Dies ist zumindest dann zu erwarten, falls die zur Wiederaufsättigung benötigte Wassermenge einem signifikanten Anteil der im Wirtsgestein um den Grubenbau vorhandenen Lösungsmenge entspricht. In diesem Fall wird der Lösungszufluss zu späteren Zeiten in erster Linie aus vertikaler Richtung des Endlagers erfolgen, wobei sich in der Endlagerteufe in horizontaler Richtung nach und nach ein Bereich mit niedrigerem hydrostatischem Potenzial ausbildet. Diese Situation entspricht dann weitestgehend einer planaren Geometrie (Abb. 1.1 rechts), bei der es einen nahezu gleichförmigen Zustrom in das Grubengebäude aus den liegenden und hangenden Gebirgsbereichen gibt. Beide Geometrien stellen Grenzfälle des betrachteten Aufsättigungsprozesses dar. Bei der radialen Geometrie sind tendenziell zu geringe Aufsättigungsdauern als Ergebnis der Abschätzung zu erwarten, während bei der planaren Geometrie eher zu lange Zeiträume abgeschätzt werden. Sowohl für die radiale (Gleichung 1.1), als auch für die planare Geometrie (Gleichung 1.2) sind für konstante Druckdifferenzen und einem Darcy-Fluss analytische Lösungen für den Lösungsfluss bekannt (Baer 1972). Die verwendeten Variablenbezeichnungen sind in Tab. 1.1 angegeben.

$$Q_r = \frac{2\pi k L}{\mu} \cdot \frac{p_1 - p_0}{\ln\left(\frac{R}{r}\right)} \quad (1.1)$$

$$Q_p = 2 \frac{k \cdot A}{\mu} \cdot \frac{p_1 - p_0}{H - h} \quad (1.2)$$

Tab. 1.1: Parameter zur Abschätzung des Lösungsstroms durch das Wirtsgestein in das Endlager

Parameter		Wert
Abstand $H$ bzw. $R$	[m]	150
Hydrostatischer Druck $p_1$ im Abstand $H$ bzw. $R$	[MPa]	6,5
Druck im Endlager $p_0$	[MPa]	0,1013
Streckenmaß $h$ bzw. $r$	[m]	4
Permeabilität des Wirtsgesteins $k$	[m <sup>2</sup> ]	10 <sup>-19</sup>
Viskosität der Lösung $\mu$	[Pa·s]	10 <sup>-3</sup>

Für die Abschätzung wird ein repräsentativer Ausschnitt des Endlagers betrachtet. Für die radiale Geometrie ist das ein Stück einer Strecke oder eines Bohrlochs der Länge von  $L = 1$  m und für die planare Geometrie ein Stück der Endlagerfläche von  $A = 1$  m<sup>2</sup>. Die in der Abschätzung verwendeten Werte für die benötigten Parameter sind in Tab. 1.1 angegeben. Der hydrostatische Druck in 150 m Abstand zum Endlager entspricht einer ungefähren Teufe von 600 m bei einer mittleren Dichte der Lösung von 1 095 kg/m<sup>3</sup>. Der Einfluss von Kapillardrücken auf die Druckdifferenz zwischen dem Grubengebäude und den Wirtsgestein wird im Folgenden vernachlässigt.

Der Lösungszufluss ergibt sich nach Gleichung 1.1 für die radiale Geometrie zu  $Q_r = 1,13 \cdot 10^{-9}$  m<sup>3</sup>/s/m, entsprechend  $3,6 \cdot 10^{-2}$  m<sup>3</sup>/a/m, entsprechend 36 l/a/m und für die planare Geometrie nach Gleichung 1.2 zu  $Q_p = 8,66 \cdot 10^{-12}$  m<sup>3</sup>/s/m<sup>2</sup>, entsprechend  $2,7 \cdot 10^{-4}$  m<sup>3</sup>/a/m<sup>2</sup>, entsprechend 0,27 l/a/m<sup>2</sup>. Bei einem Versatz mit einer Porosität von 30% berechnet sich für die radiale Geometrie der Hohlraum in einer 1 m langen Strecke mit einem Querschnitt von 50 m<sup>2</sup> zu  $V = 15$  m<sup>3</sup> und es ergibt sich eine Zeitdauer bis zur vollständigen Sättigung von ca. 420 Jahren, bzw. für die planare Geometrie ist das Volumen bei einer Endlagerfläche von 1 m<sup>2</sup> und einer Höhe des Endlagerbereichs von 8 m zu  $V = 2,4$  m<sup>3</sup>, und es ergibt sich eine Zeitdauer von ca. 8900 Jahren. Zum Vergleich können Ergebnisse einer numerischen Modellierung des Zweiphasenflusses bei der Wiederaufsättigung der Nagra angeführt werden,



die unter isothermen Bedingungen eine Zeitdauer für die Wiederaufsättigung von 100 bis einigen 100 Jahren ergibt, wobei dabei eine um eine Größenordnung geringere Permeabilität für das Wirtsgestein angenommen wurde (Nagra 2002).

Die im Vorangegangenen abgeschätzten Zeitdauern bis zur vollständigen Aufsättigung des Versatzes unterliegen folgenden Unwägbarkeiten, die das berechnete Ergebnis zum Teil wesentlich beeinflussen können:

- **Geometrie:** Im Prinzip ist für die Berechnung der Wiederaufsättigung eine mehrdimensionale Betrachtung der Endlagergeometrie notwendig. Wie im Vorangegangenen bereits beschrieben liefert die eindimensionale Betrachtung mit der radialen Geometrie eine eher zu geringe und jene mit der planaren Geometrie eine eher zu lange Zeitdauer bis zur vollständigen Wiederaufsättigung.
- **Potenzialdifferenz:** Für die Berechnung der Wiederaufsättigung mit den angegebenen Gleichungen ist die Distanz maßgeblich, über die der Lösungsstrom durch das Wirtsgestein erfolgen muss und der dazugehörige hydrostatische Druck in der entsprechenden Entfernung. Am Endlagerstandortmodell Nord ist es schwierig diese Distanz anzugeben, da es nur wenige ausgeprägte Aquifere im Modell gibt.
- **Gasdruck:** Durch die Kompression der im Endlager eingeschlossenen Luft und durch die Gasproduktion entsteht im Grubengebäude ein Gasdruck, welcher den hydrostatischen Druckgradienten zwischen Endlager und Wirtsgestein und somit auch den Lösungszustrom verringert.
- **Temperaturerhöhung:** Durch die Temperaturerhöhung in der Umgebung der Einlagerungsorte wärmeproduzierender Abfälle dehnt sich die Lösung im Wirtsgestein aus. Die Vergrößerung des Lösungsvolumens auf Grund der Temperatur beschleunigt den Lösungszutritt in das Grubengebäude, insbesondere in den Bereichen mit wärmeproduzierenden Abfällen. Sobald die Temperatur im Wirtsgestein wieder sinkt, wird der Prozess umgekehrt und das Porenwasser zieht sich wieder zusammen. Der Wiederaufsättigungsprozess darf daher eigentlich nicht isotherm betrachtet werden.

Der Einfluss des letzten der genannten Punkte soll im Folgenden kurz grob abgeschätzt werden. Bei einer Erhöhung der Temperatur im Wirtsgestein<sup>1</sup> von 40°C auf über 90°C nimmt das spezifische Volumen einer gesättigten NaCl-Lösung um etwa 2% zu (Gevantman 1981). Das Porenvolumen im Buffer eines Bohrlochs entsprechend dem Endlagerkonzept für das Endlagerstandortmodell Nord ist bei einer Porosität von 30% etwa 0,7 m<sup>3</sup> pro Meter des Bohrlochs. Wenn aus der Umgebung des Bohrlochs die durch die Erwärmung sich ausdehnende Lösung in das Bohrloch Zutritt, dann ist bei einer Ausdehnung von 2% und einer Porosität im Wirtsgestein von 20% (Nowak & Maßmann 2013) der Zufluss des allein durch die Ausdehnung austretenden überschüssigen Wassers eines Gebirgsvolumen von 175 m<sup>3</sup> um das Bohrloch herum ausreichend, um den Buffer vollständig aufzusättigen. Dieses Gebirgsvolumen entspricht einer Umgebung von lediglich 7,5 m um das Bohrloch herum. Die Erwärmung des Gebirges durch die wärmeentwickelnden Abfälle kann somit die Wiederaufsättigung im Grubengebäude deutlich beschleunigen. Eine detailliertere Betrachtung des thermischen Einflusses auf die Wiederaufsättigung erfordert die Berücksichtigung der tatsächlich vorliegenden Temperaturverhältnisse im Wirtsgestein, da die Temperatur im Wirtsgestein mit dem Abstand zum Bohrloch deutlich abnimmt und somit der Effekt in dieser Abschätzung eher überschätzt wird.

<sup>1</sup> Die Temperatur in der Endlagerteufe ergibt sich aus dem geothermischen Gradient am Endlagerstandortmodell von 40 K/km und einer mittleren Temperatur an der Oberfläche von 8°C (Reinhold et al. 2013).

## 2 Abschätzung zur Gasproduktion im Nahfeld (André Rübel)

In diesem Kapitel werden Abschätzungen zur Gasproduktion im Nahfeld an den Endlagerstandortmodellen Nord und Süd dargestellt. In einem Endlager für radioaktive Abfälle können bei Anwesenheit von Wasser durch unterschiedliche Prozesse Gase, darunter vor allem Wasserstoff, gebildet werden. Die erzeugten Gasmengen sind dabei im Allgemeinen erheblich und führen zu einem Gasdruckaufbau im Endlager. Die zu betrachtenden gasbildenden Prozesse sind neben der Radiolyse vor allem chemische und mikrobielle Reaktionen.

In einem Endlager für hochradioaktive Abfälle mit dickwandigen Endlagerbehältern aus Stahl ist die anaerobe Korrosion von Eisen der wichtigste gasbildende Prozess. Bei der anaeroben Korrosion des Eisens bildet sich unter Verbrauch von Wasser und Bildung von Wasserstoff zunächst Eisen(II)oxid, das anschließend in Magnetit umgewandelt wird (Müller et al. 1992). Bei der Korrosion von einem Kilogramm Eisen werden dabei bis zu 0,535 Normalkubikmeter Wasserstoff gebildet. Die Korrosion verschiedener Behältermaterialien in Lösungen unterschiedlicher Ionenstärke wurde in zahlreichen nationalen und internationalen Forschungsvorhaben untersucht (z. B. Smailos et al. 1999, King 2008 und Shaw 2013). Bei der Verwendung von Neutronenmoderatoren aus Polyethylen im Behälter kann es zu einer zusätzlichen Gasproduktion durch die mikrobielle Umwandlung des Polyethylens kommen. Dabei können je nach Umwandlungsprozess Kohlendioxid, Wasserstoff, Methan, Stickstoff und Schwefelwasserstoff gebildet werden. Der mikrobielle Umwandlungsprozess von Polyethylen ist allerdings im Allgemeinen sehr viel langsamer, als die Korrosion von Eisen.

Im Folgenden wird die Gasproduktion durch die anaerobe Korrosion von Eisen im Nahfeld der beiden Endlagerstandortmodelle Nord und Süd abgeschätzt. Dabei werden zum einen die unterschiedlichen im Endlagerkonzept definierten Behälterkonzepte, als auch zum anderen die zu erwartenden hydrochemischen Randbedingungen berücksichtigt. Nicht berücksichtigt werden im Folgenden die Beiträge zur Gasproduktion der sich in den betrachteten Behältern endgelagerten Abfälle und anderer im Nahfeld befindlicher Materialien, welche nicht aus Eisen sind, wie z. B. das genannte Polyethylen, welches in den Behältern zur Neutronenabsorption vorgesehen ist.

Die ermittelten Gasbildungsraten dienen in weiteren Teilen des vorliegenden Berichts als Grundlage für die Modellierung des Gastransports im Endlager.

### 2.1 Vorgehen bei der Berechnung

Die Abschätzung der zeitlichen Entwicklung der Gasproduktion erfolgt anhand der experimentell bestimmten Abtragungsrate einer metallischen Oberfläche durch flächige Korrosion bei gegebenen hydrochemischen Bedingungen. Diese Rate wird üblicherweise in Mikrometer abgetragenes Material pro Jahr angegeben und anhand von Materialproben im Labor bestimmt. Aus der Dicke  $d$  des zu korrodierenden Materials und der Abtragungsrate  $a$  errechnet sich die Korrosionsdauer  $T$  in Jahren bis zur vollständigen Umsetzung des Materials zu:

$$T = \frac{d}{a} \quad (2.1)$$

Aus der Masse des korrodierenden Materials  $M$  und der Korrosionsdauer ergibt sich eine jährliche Massenabtragungsrate  $m$ , die wiederum mit Hilfe der spezifischen gebildeten Gasmenge  $g$  für das korrodierte Material (für Eisen gilt  $g = 28,87 \text{ Mol/kg}$ ) in die jährliche Gasbildungsrate  $G$  umgerechnet wird:

$$m = \frac{M}{T} \quad (2.2)$$

$$G = \frac{g}{m} \quad (2.3)$$

Bei Endlagerkomponenten bei denen keine Daten über deren Masse, sondern lediglich Informationen zur Geometrie vorliegen, wird die Masse aus deren Geometrie und einer Dichte für Eisen von  $7\,800\text{ kg/m}^3$  abgeschätzt.

Entsprechend der angegebenen Gleichungen wird bei dieser Abschätzung davon ausgegangen, dass der Massenabtrag proportional zur Korrosionsdauer, bzw. der abgetragenen Materialdicke ist. Dies bedeutet, dass die angegebenen Gleichungen prinzipiell nur für homogene Platten gelten. Für inhomogene Körper oder andere Körperformen stellt diese Abschätzung eine gemittelte Gasproduktionsrate dar. Bei einer zylindrischen Geometrie, wie der von Linern oder Endlagerbehältern, nimmt die reale Gasproduktionsrate bei einer Korrosion von außen nach innen durch die sich verringernde Oberfläche des Zylindermantels mit der Zeit ab. Der Fehler der Mittelung wird dabei umso größer, je geringer der Durchmesser des Zylinders und je dicker die Wandstärke des Zylindermantels ist. So beträgt der relative Fehler der Mittelung bei einem eher dünnwandigen Stahl liner mit einem Durchmesser von 1,9 m und einer Materialstärke von 0,05 m weniger als  $\pm 2\%$ . Bei einem dickwandigen Endlagerbehälter mit einem Außendurchmesser von 0,8 m und einer Materialstärke von 0,35 m beträgt der relative Fehler bis zu  $\pm 20\%$ . In Anbetracht der Ungewissheiten über die tatsächlichen spezifischen Korrosionsraten bei den zu erwartenden hydrochemischen Bedingungen an einem generischen Endlagerstandortmodell und der Auslegung der Endlagerkomponenten erscheint dieser Fehler aber als eher gering gegenüber den sonstigen Ungewissheiten der den Abschätzungen zu Grunde liegenden Daten.

## 2.2 Endlagerstandortmodell NORD

Für das Endlagerstandortmodell NORD wird die Gasproduktion für ein Bohrloch entsprechend dem in Lommerzheim & Jobmann (2015) beschriebenen Endlagerkonzept abgeschätzt. Das Bohrloch enthält einen Außenliner, einen Innenliner und drei Rückholbare Kokillen. Die verwendeten Daten für diese Endlagerkomponenten sind gemäß dem Endlagerkonzept in Tab. 2.1 zusammengestellt.

Der Außenliner ist zur Ermöglichung des Lösungszutritts aus dem Wirtsgestein zum Buffer perforiert. Die Verringerung der Masse auf Grund der Perforation wird bei der Abschätzung der Gasproduktion vernachlässigt. Auf Grund der Perforation kann der Außenliner vom Beginn der Nachverschlussphase an sowohl von der Außen-, wie auch von der Innenseite her korrodieren. Für den Innenliner und die Rückholbare Kokille gilt, dass diese zu Beginn lösungsdicht sind. Somit erfolgt eine Korrosion des Innenliners zu Beginn der Nachverschlussphase ausschließlich von außen. Die Rückholbare Kokille beginnt erst dann zu korrodieren, sobald der Innenliner seine Lösungsdichtheit verloren hat. Eine anfängliche geringfügige Korrosion des Innenliners und der Rückholbaren Kokille auf Grund von eingeschlossener Feuchtigkeit wird vernachlässigt. Für den Innenliner und die Rückholbare Kokille wird jeweils angenommen, dass sie ihre Lösungsdichtheit verlieren, sobald 50 % der Wandstärke korrodiert sind.

Für die Korrosion wird eine Abtragungsrate von  $50\text{ }\mu\text{m/a}$  für Gusseisen (Bechthold et al. 2004, S.161) und von  $5\text{ }\mu\text{m/a}$  für Feinkornbaustahl (Smailos et al. 1999, S.10) angenommen. Beide Abtragungsraten wurden jeweils in Laborexperimenten in gesättigter NaCl-Lösung bei einer Temperatur von  $90^\circ\text{C}$  bestimmt. Am Endlagerstandortmodell Nord wird demgegenüber ein geringerer Salzgehalt in der Lösung von ca.  $150\text{ kg/m}^3$  erwartet (Reinhold et al. 2013), wodurch die Korrosionsrate eher geringer ausfällt. Für diese Salinität sind jedoch keine Daten verfügbar. Bei der Temperatur ist mit einem variablen Temperaturverlauf zu rechnen. Dabei wird das Temperaturmaximum über den angenommenen  $90^\circ\text{C}$  liegen, während für

andere Zeitbereiche die Temperatur darunter liegt. Generell lässt sich sagen, dass mit höherer Temperatur auch die Korrosionsrate geringfügig zunimmt.

Als Ergebnis der Abschätzung ergibt sich für das Endlagerstandortmodell NORD unter den beschriebenen Annahmen, dass die insgesamt pro Bohrloch produzierte Gasmenge ca.  $1,7 \cdot 10^6$  Mol Wasserstoff beträgt, entsprechend einem Volumen von  $3,7 \cdot 10^5$  m<sup>3</sup> Gas bei Normalbedingungen, bzw. von ca. 450 m<sup>3</sup> Gas bei einem angenommenen Druck von 8,3 MPa entsprechend dem hydrostatischen Druck in der Endlagertiefe von 770 m unter Geländeoberkante. Der Wert der insgesamt gebildeten Gasmenge entspricht einer spezifischen gebildeten Gasmenge pro Brennelement von  $1,8 \cdot 10^5$  Mol. Der zeitliche Verlauf der Gasproduktionsrate und der gebildeten Gasmenge ist in Abb. 2.1 dargestellt. Markante Zeitpunkte im zeitlichen Verlauf der Gasbildungsrate sind in Tab. 2.2 erläutert.

Auf Grund der hohen Korrosionsrate des Gusseisens und der großen Oberfläche des Außen- und Innenliners ist die Gasbildungsrate mit ca. 2 500 Mol/a zu Beginn der Nachverschlussphase am höchsten. Bereits nach 500 Jahren ist der Außenliner vollständig korrodiert und die Korrosionsrate geht auf etwa 800 Mol/a zurück bis schließlich nach 750 Jahren auch der Innenliner vollständig korrodiert ist und die Korrosionsrate auf einen niedrigen Wert um 20 Mol/a zurückgeht. Nach 8 000 Jahren sind mit beiden Linern und der Rückholbaren Kokille alle Nahfeldkomponenten aus Eisen vollständig korrodiert und die daraus resultierende Gasproduktion endet. Eine weitere Gasproduktion ist prinzipiell durch die Korrosion von Abfallbestandteilen wie Zirkalloy oder durch die Degradation von Polyethylen möglich, das zur Neutronenabsorption im Deckelbereich der Rückholbaren Kokille eingesetzt wird. Diese möglichen Quellen der Gasproduktion werden beide auf Grund derzeit zu hoher Ungewissheiten in den Randbedingungen der relevanten Prozesse und der Zersetzungsraten in dieser Abschätzung nicht berücksichtigt. Zumindest bei den Polyethylenbestandteilen ist aber mit einer sehr langsamen Zersetzung und somit mit einer geringen Gasbildungsrate über lange Zeiträume auszugehen.

Tab. 2.1: Verwendete Daten für die Endlagerkomponenten Außenliner, Innenliner und Rückholbare Kokille

<b>Außenliner</b>	
Länge	19,00 m
Innendurchmesser	1,85 m
Wandstärke	0,05 m
Material	Sphäroguss
<b>Innenliner</b>	
Länge	17,00 m
Innendurchmesser	0,76 m
Wandstärke	0,05 m
Material	Sphäroguss
<b>Rückholbare Kokille</b>	
Länge	5,06 m
Innendurchmesser	0,45 m
Wandstärke	0,05 m
Material	Feinkornbaustahl

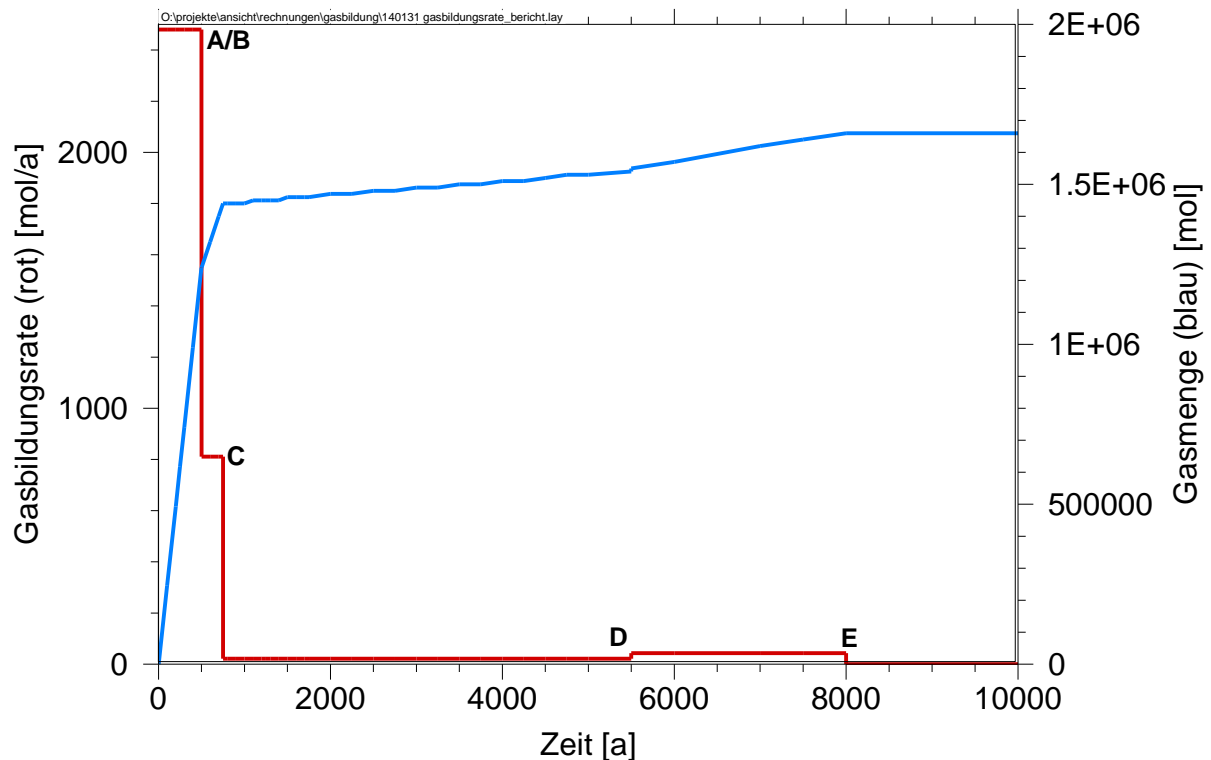


Abb. 2.1: Zeitliche Entwicklung der Gasbildungsrate und der gebildeten Gasmenge pro Bohrloch im Endlagerstandortmodell NORD

Tab. 2.2: Zeitlicher Ablauf der Gasproduktion am Endlagerstandortmodell NORD

Ereignis		Zeitpunkt [a]
	Beginn der Korrosion	0
A	Außenliner vollständig korrodiert	500
B	Innenlinerwand zur Hälfte korrodiert	500
	Innenliner fällt aus	
	Beginn der Korrosion der Rückholbaren Kokille	
C	Innenliner vollständig korrodiert	750
D	Kokillenwand zur Hälfte korrodiert	5500
	Kokille fällt aus	
E	Kokille vollständig korrodiert	8000
	Ende der Gasproduktion	

### 2.3 Endlagerstandortmodell SÜD

Für das Endlagerstandortmodell SÜD wird die Gasproduktion für jeweils einen Endlagerbehälter entsprechend dem in Jobmann & Lommerzheim (2015) beschriebenen Endlagerkonzept abgeschätzt. Berücksichtigt werden dabei alternativ ein Pollux-9 oder ein Pollux-3-Behälter. Die verwendeten Werte für die Daten zu diesen beiden Behältertypen sind in Tab. 2.3 zusammengestellt und dem Endlagerkonzept entnommen. Der Detaillierungsgrad der Planungen zum Aufbau der Pollux-3-Behälter ist bisher deutlich geringer als jener für die



Pollux-9-Behälter. Daher werden die Daten zu den Durchmessern an der Grenze von außen- zu Innenbehälter, sowie die Massen des Außen- und Innenbehälters abgeschätzt. Diesen Abschätzungen liegen folgende beiden Annahmen zu Grunde: Zum einen wurde angenommen, dass das Massenverhältnis von außen- zu Innenbehälter jenem des Pollux-9 entspricht (Faktor 1,7) und zum anderen, dass die mittlere Dichte des Außenbehälters durch die Aussparungen zum Einbringen der Moderatorstäbe in gleicher Weise reduziert wird, wie bei dem Pollux-9-Behälter (Faktor 0,73).

Die Korrosion des Außenliners startet mit dem Beginn der Nachverschlussphase. Durch die Hohlräume im Außenliner zur Einbringung der Moderatorstäbe muss der Außenliner nicht vollständig korrodieren, bis die Korrosion des Innenliners beginnt. Dazu wurde angenommen, dass der Beginn der Korrosion des Innenliners erfolgt, sobald der Außenliner zu einem Drittel korrodiert wurde. Für die Korrosionsrate des Feinkornbaustahls wird für die Abtragsrate unter den hydrochemischen Bedingungen im Opalinus-Ton ein Wert von  $1 \mu\text{m/a}$  angenommen (Nagra, 2002, King, 2008). Für Gusseisen sind keine verlässlichen Daten für die Korrosion unter den hydrochemischen Verhältnissen im Opalinus-Ton bekannt. Aus diesem Grund wurde angenommen, dass das Geschwindigkeitsverhältnis der Korrosionsraten von Gusseisen zu Feinkornbaustahl jenem in hochsalinaren Lösungen von 10:1 entspricht (siehe Abschnitt 2.2) und somit eine Abtragsrate für Gusseisen im Endlagerstandortmodell Süd von  $10 \mu\text{m/a}$  angenommen.

Als Ergebnis der Abschätzung ergibt sich für das Endlagerstandortmodell Süd unter den beschriebenen Annahmen, dass die pro Pollux-9-Behälter insgesamt produzierte Gasmenge ca.  $1,3 \cdot 10^6$  Mol Wasserstoff entsprechend einem Volumen von  $3,0 \cdot 10^4 \text{ m}^3$  Gas bei Normalbedingungen, bzw. von ca.  $360 \text{ m}^3$  Gas bei einem Druck von etwa 8,3 MPa entsprechend dem hydrostatischen Druck in der Endlagertiefe von 770 m unter Geländeoberkante beträgt. Der Pollux-9-Behälter ist im Endlagerkonzept Süd derzeit nicht für die Endlagerung von abgebrannten Brennelementen vorgesehen. Würden die Behälter dennoch zur Endlagerung von neun Brennelementen verwendet, so entspräche der Wert der insgesamt gebildeten Gasmenge einer spezifischen gebildeten Gasmenge pro Brennelement von  $1,5 \cdot 10^5$  Mol. Pro Pollux-3-Behälter ergibt sich eine produzierte Gasmenge von ca.  $9,0 \cdot 10^5$  Mol Wasserstoff entsprechend einem Volumen von  $2,0 \cdot 10^4 \text{ m}^3$  Gas bei Normalbedingungen, bzw. von ca.  $245 \text{ m}^3$  Gas bei einem Druck von 8,3 MPa. Der Wert der insgesamt gebildeten Gasmenge entspricht einer spezifischen gebildeten Gasmenge pro Brennelement von  $3,0 \cdot 10^5$  Mol.

Die Gasbildungsrate beträgt zu Beginn der Nachverschlussphase etwa 30 Mol/a für beide Pollux-Behältertypen. Mit Beginn der Korrosion des Innenbehälters nimmt sie jeweils zu. Nach der vollständigen Korrosion des Außenbehälters nach etwa 20 000 Jahren für den Pollux-3 und 27 000 Jahren für den Pollux-9-Behälter geht die Gasbildungsrate auf niedrige Werte unter 5 Mol/a zurück. Bis zur vollständigen Korrosion der Behälter und dem Ende der Gasproduktion vergehen jeweils etwa 180 000 Jahre.

Eine weitere Gasproduktion ist prinzipiell durch die Korrosion von Abfallbestandteilen wie Zircalloy oder durch die Degradation von Polyethylen zur Neutronenabsorption in Form von Stäben im Außenbehälter und Platten im Deckelbereich der Pollux-Behälter möglich. Die Menge eingebrachten Polyethylens ist bei den Pollux-Behältern erheblich und beträgt mehr als 1 500 kg pro Behälter. Diese möglichen Quellen der Gasproduktion werden beide auf Grund derzeit zu hoher Ungewissheiten in den Randbedingungen der relevanten Prozesse und der Zersetzungsraten in der Abschätzung nicht berücksichtigt. Zumindest bei den Polyethylen ist aber mit einer sehr langsamen Zersetzung und somit mit geringen Gasbildungsraten auszugehen.

Der zeitliche Verlauf der Gasproduktionsrate und der gebildeten Gasmenge ist in Abb. 2.2 dargestellt.

Tab. 2.3: Verwendete Daten für die Endlagerbehälter Pollux-9 und Pollux-3

<b>Pollux-9</b>	
Länge	5,517 m
Innendurchmesser	0,690 m
Durchmesser an der Innen- / Außenbehälter Grenze	1,012 m
Außendurchmesser	1,560 m
Material Außenbehälter	Sphäroguss
Material Innenbehälter	Feinkornbaustahl
Masse Außenbehälter	34 810 kg
Masse Innenbehälter	20 620 kg
<b>Pollux-3</b>	
Länge	5,46 m
Außendurchmesser	1,2 m
Material Außenbehälter	Sphäroguss
Material Innenbehälter	Feinkornbaustahl
Gesamtmasse Behälter	38 000 kg

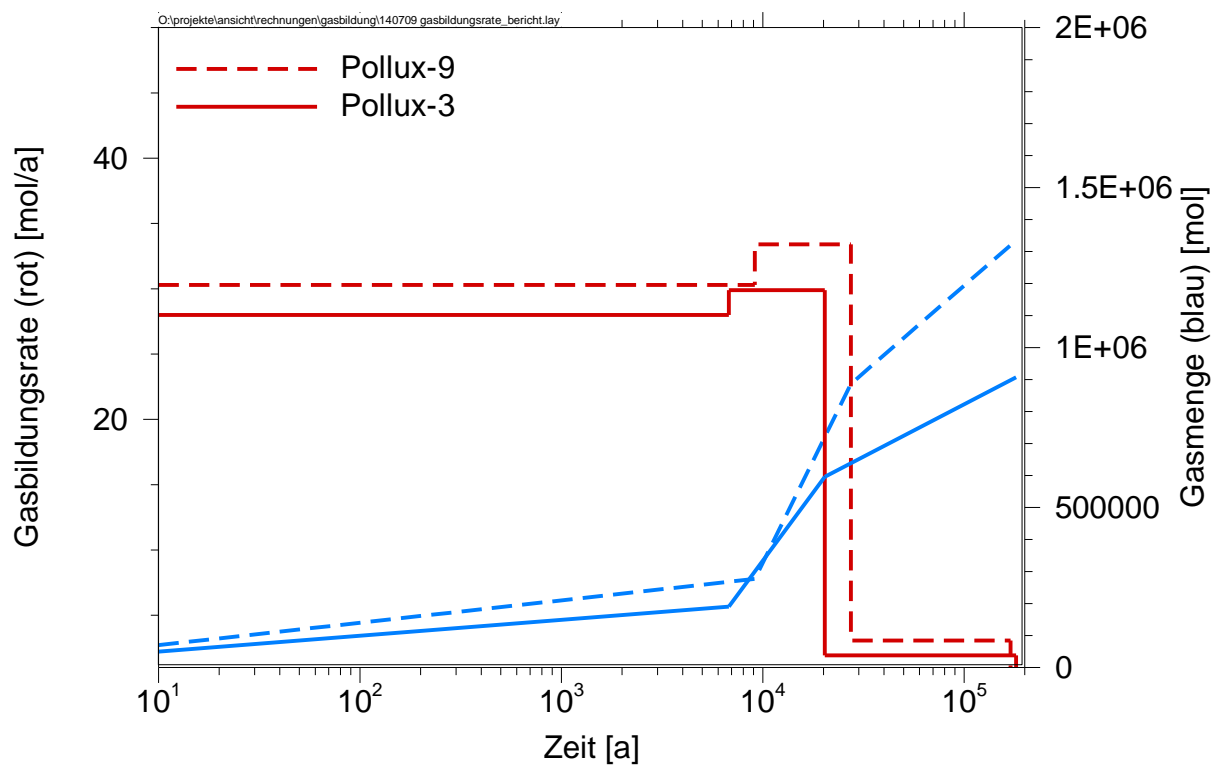


Abb. 2.2: Zeitliche Entwicklung der Gasbildungsrate und der gebildeten Gasmenge pro Endlagerbehälter im Endlagerstandortmodell SÜD

## 2.4 Vergleichende Betrachtung

Für die beiden Endlagerstandortmodelle werden zur Endlagerung von abgebrannten Brennelementen derzeit zwei unterschiedliche Einlagerungsvarianten betrachtet. Dies sind die Bohrlochlagerung und die Streckenlagerung in Pollux-3-Behältern.

Vergleicht man die beiden Einlagerungsvarianten im Hinblick auf die gebildeten spezifischen Gasmengen pro Brennelement, so zeigt sich, dass der Unterschied der Werte nur gering ist. Die Spannweite zwischen beiden Werten beträgt etwa einen Faktor zwei. Auch bei einer hypothetischen Endlagerung von Brennelementen in Pollux-9-Behältern liegt der entsprechende Wert in diesem Rahmen. Dieser Unterschied wird als nicht relevant gewertet, da die Unsicherheit der Eingangsdaten bezüglich der eingebrachten Metallmengen als hoch einzuschätzen ist, da für den derzeitigen Stand der Planungen keine abschließenden Auslegungsrechnungen für das Bohrlochkonzept und den Pollux-3-Behälter vorliegen. Als Ergebnis der Abschätzung lässt sich somit aus dem derzeitigen Stand der Kenntnisse schließen, dass durch eine Variation der eingesetzten Einlagerungsvariante bei der Auswahl aus den bisher betrachteten Einlagerungsvarianten sich die im Endlager gebildete Gasmenge nur geringfügig beeinflussen lässt.

Einen größeren Einfluss hat die Einlagerungsvariante auf die jährliche Gasbildungsrate und die Gasbildungsdauer. Die errechnete Gasbildungsdauer ist für die Streckenlagerung mit Polluxbehältern etwa einen Faktor 20 länger und die anfängliche Gasbildungsrate sogar um etwa einen Faktor 80 niedriger als für die Bohrlochlagerung. Einen Faktor fünf ist dabei jeweils auf die unterschiedlichen hydrochemischen Verhältnisse an den Endlagerstandortmodellen NORD und SÜD zurückzuführen, die zu höheren Korrosionsraten am Standortmodell Nord führen. Somit ergibt sich als realer Unterschied, der auf die Einlagerungsvariante zurückzuführen ist, eine um einen Faktor 4 längere Gasproduktionsdauer und eine um einen Faktor 16 geringere anfängliche Gasbildungsrate für die Einlagerungsvariante mit Pollux-Behältern gegenüber der Bohrlochlagerung. Dieser Unterschied ist auf die größeren der Korrosion zur Verfügung stehenden Oberflächen beim Bohrlochkonzept zurückzuführen, die vor allem durch den Außenliner zur Verfügung gestellt wird.



### 3 Modellierungen zum Gastransport im Grubengebäude (André Rübel)

In diesem Kapitel werden die Arbeiten dargestellt, die die GRS zur Modellierung des Gastransports im Grubengebäude am Endlagerstandortmodell NORD mit dem Programm TOUGH2 (Pruess et al. 2012) durchgeführt hat.

Wie in Kapitel 1 dargestellt, können im Nahfeld signifikante Mengen von Gas gebildet werden, die in der Folge zu einem Anstieg des Gasdrucks im verfüllten Grubengebäude führen, was beim Auftreten sehr hoher Drücke zu einer eventuellen Beeinträchtigung der Integrität der Barrierenfunktion des Wirtsgesteins führen kann. Entsprechend der Sicherheitsanforderungen (BMU 2010) sind hinsichtlich der Beanspruchung der Barriere und somit auch hinsichtlich des Gasdrucks folgende beide Punkte zu berücksichtigen:

- Die zu erwartenden Beanspruchungen dürfen die Dilatanzfestigkeiten der Gesteinsformationen des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs außerhalb der Auflockerungszonen nicht überschreiten.
- Die zu erwartenden Fluiddrücke dürfen die Fluiddruckbelastbarkeiten der Gesteinsformationen des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs nicht in einer Weise überschreiten, die zu einem erhöhten Zutritt von Grundwässern in diesen einschlusswirksamen Gebirgsbereich führt.

Für das Projekt ANSICHT werden diese Anforderungen folgendermaßen konkretisiert (Jobmann et al. 2015):

- Es ist nachzuweisen, dass die effektiven Spannungen nicht im Zugspannungsbereich liegen.

Für diesen Nachweis sind Modellierungen des Gasdrucks im Grubengebäude, und für den Fall des Auftretens einer freien Gasphase im Wirtsgestein auch dort notwendig. Der Gastransport im Wirtsgestein kann durch drei unterschiedliche Prozesse stattfinden:

1. Lösung der Gase im Porenwasser und Transport in der gelösten Form durch Diffusion oder Advektion des Porenwassers,
2. advektiver Fluss als Gas im Porenraum des Tongesteins durch Verdrängung von Porenwasser (Zweiphasenfluss) und
3. advektiver Fluss auf neu erzeugten Wegsamkeiten als Folge von hohen Gasdrücken. Abhängig von der Höhe der Gasdrücke können diese Wegsamkeiten entweder durch Porenraumweiteung oder durch Risse erzeugt werden.

Solange Gas im Wirtsgestein ausschließlich gelöst per Diffusion transportiert wird, erfolgt keine mechanische Belastung des Wirtsgesteins. Dieser Transportprozess hat allerdings nur einen mengenmäßig geringen Gasfluss zur Folge, der üblicherweise nur ausreicht, um einen geringen Bruchteil der im Endlager produzierten Gase abzutransportieren (Nagra 2004). Bei einem Zweiphasenfluss wird Porenwasser im Porenraum des Wirtsgesteins verdrängt sobald der Gaseindringdruck überschritten wird. Bei der von den meisten Modellen verwendeten Beschreibung des Zweiphasenflusses durch das klassische Modell nach van-Genuchten ist zusätzlich zu berücksichtigen, dass dieses schon einen Gasfluss unterhalb des Gaseindringdrucks zulässt und somit den Gasfluss in nicht-konservativer Weise überschätzt. Der Gaseindringdruck ungestörter Tongesteine ist im Allgemeinen so hoch, dass kein Auftreten eines Zweiphasenflusses zu erwarten ist, sondern eher zusätzliche Wegsamkeiten durch Porenaufweiteung erzeugt werden. Für die Porenaufweiteung existiert derzeit weder eine mechanistische Beschreibung, noch ein allgemein akzeptiertes phänomenologisches Modell. Verschiedene modelltechnische Ansätze haben befriedigende Ergebnisse geliefert, um experimentell ermittelte Daten zum Gastransport in ungestörtem Tongestein nachzubilden. Die

Ungewissheiten in diesen Modellen selbst und in der Parametrisierung der Modelle ist derzeit jedoch zu groß, als dass sie für Prognoseberechnungen geeignet wären, insbesondere nicht über die großen Zeiträume des Nachweiszeitraums (Shaw 2014).

Bei dem derzeitigen Stand von Wissenschaft und Technik bezüglich der physikalisch-geomechanischen Gesetzmäßigkeiten der Porenaufweitung und dem Fehlen allgemein anerkannter Modelle ist ein Nachweis der Integrität der Barriere schwierig zu erbringen, falls es zu einem Gastransport im Wirtsgestein durch Porenaufweitung kommt. Aus diesem Grund erscheint es derzeit vorteilhaft für die Nachweisführung, wenn der Gastransport und die Gasfreisetzung ausschließlich über das Grubengebäude erfolgen können. Deshalb ist die Zielsetzung der folgenden Modellierungen mit TOUGH2, die Gasdruckentwicklung und den Gastransport im Grubengebäude zu betrachten, und zu untersuchen, ob das Gasspeichervolumen und der Gastransport im Grubengebäude ausreichen, um alle produzierten Gase aufzunehmen und abzutransportieren, ohne dass der Gasdruck in unzulässiger Weise ansteigt.

Für die Simulationen werden drei unterschiedliche Modelle verwendet. Zwei quasi eindimensionale Modelle ohne und mit Berücksichtigung der Auflockerungszone und ein zweidimensionales Modell. Die durchgeführten Rechnungen werden im Folgenden für diese drei Modelle getrennt diskutiert.

### 3.1 Modell A: 1D-Modell

Zur Verkürzung der Rechenzeiten und der Verringerung der Komplexität des Modells wird lediglich ein Teil des Grubengebäudes im Modell abgebildet. Das Modell beschränkt sich auf den Gastransport in der äußeren Richtstrecke des Grubengebäudes unter Berücksichtigung von fünf der an die Richtstrecke anschließenden Einlagerungsfelder. Damit wird etwa ein Viertel des Grubengebäudes zur Einlagerung abgebrannter Brennelemente betrachtet.

Abb. 3.1 zeigt ein nicht maßstabsgetreues Schema der Struktur des TOUGH2-Modells. Die Struktur stellt die etwa 2 500 m lange Richtstrecke mit den fünf Querschlägen zu den Einlagerungsstrecken, sowie etwa 500 m des Schachts dar. Die Oberkante des Schachts ist im Modell in der geologischen Formation des Hilsandsteins angeordnet, der den nächstliegenden Aquifer über dem Endlager darstellt. Dementsprechend wird an der Oberkante des Schachts im Modell ein konstanter hydrostatischer Druck entsprechend der Teufe des Hilsandsteins von etwa 270 m unter Gelände angenommen. Alle anderen Ränder des Modells sind für den Flüssigkeits- und Gastransport geschlossen. Damit wird zum einen der diffusive Gastransport gelöster Gase im Wirtsgestein vernachlässigt, zum anderen wird die Aufsättigung der Strecken durch einen Lösungszutritt aus dem Wirtsgestein nicht im Modell abgebildet. Dies stellt eine wesentliche Einschränkung dar. Um den Einfluss der Aufsättigung auf das Verhalten des Gastransports zu studieren, werden daher Parametervariationen mit unterschiedlichen Anfangssättigungen der Versatzmaterialien in den Strecken durchgeführt.

Die Querschläge repräsentieren das Volumen des gesamten Einlagerungsfeldes inklusive aller Bohrlochüberfahrungsstrecken, allerdings ohne die Bohrlöcher. Die Querschläge werden als jeweils ein Element im Modell repräsentiert und sind somit nicht weiter diskretisiert (in Abb. 3.1 sind nur drei der fünf berücksichtigten Querschläge dargestellt). Dadurch erfolgt der Gastransport aus den Einlagerungsfeldern in die Richtstrecke nahezu instantan. Der Gastransport innerhalb des Einlagerungsfeldes wird vernachlässigt. Die Richtstrecke ist in 358 Elemente in x-Richtung und zwei Elemente in y-Richtung entsprechend insgesamt 716 Elementen diskretisiert, und der Schacht ist in 142 Elemente diskretisiert. Alle Elemente, außer den fünf Elementen, die die Querschläge repräsentieren, weisen eine Größe von  $7 \times 7 \times 3,5$  m auf.

In jedem Einlagerungsfeld wird die Gasproduktion aus 100 Bohrlöchern entsprechend der in Abb. 2.1 dargestellten Gasbildungsrate freigesetzt. Der Gastransport wird nach dem Ansatz nach van-Genuchten unter isothermen Bedingungen mit TOUGH2 modelliert. Die Berechnung des Zweiphasenflusses mit Wasserstoff als Gas kann mit dem TOUGH2-Modul eos5 durchgeführt werden. Die Druckberechnung im Modul eos5 ist allerdings auf Drücke bis maximal 20 MPa beschränkt, da die Eigenschaften von Wasserstoff nur für diesen Druckbereich in TOUGH2 vorgegeben sind. Bei einigen der durchgeführten Rechenfälle treten jedoch Drücke oberhalb von 20 MPa auf. Aus diesem Grund wurden die Rechnungen mit dem TOUGH2-Modul eos3 durchgeführt und Luft als Gas angenommen. Die Eingabedaten für die Gasproduktionsraten in TOUGH2 wurden entsprechend der Molgewichte von Wasserstoff und Luft angepasst. Zum Test des Einflusses der Gasart auf die Ergebnisse wurden für den Basisfall zwei Rechnungen durchgeführt, in denen einmal Wasserstoff und einmal Luft als Gas berücksichtigt wurde und ansonsten alle Transportparameter identisch gewählt wurden. Das Ergebnis ist in Abb. 3.3 dargestellt und wird weiter unten genauer diskutiert. Da die Unterschiede zwischen beiden Rechnungen signifikant sind, muss der Einfluss bei der Diskussion der Ergebnisse berücksichtigt werden.

Die Gasproduktion in den Einlagerungsbereichen ist bereits nach 8 000 Jahren beendet. Daher werden die Simulationen nicht für den gesamten Nachweiszeitraum von einer Million Jahren, sondern zum größten Teil lediglich für einen Zeitraum von 50 000 Jahren durchgeführt. Bis zu diesem Zeitpunkt zeigen die Ergebnisse der Druckentwicklung bereits alle wichtigen Charakteristika.

Tab. 3.2 zeigt die mit dem Modell A durchgeführten Rechenfälle und listet die variierten Parameter gegenüber dem als Basisrechenfall bezeichneten Fall A2 auf. Die verwendeten Parameter für den Basisrechenfall A2 sind in Tab. 3.1 zusammengestellt.

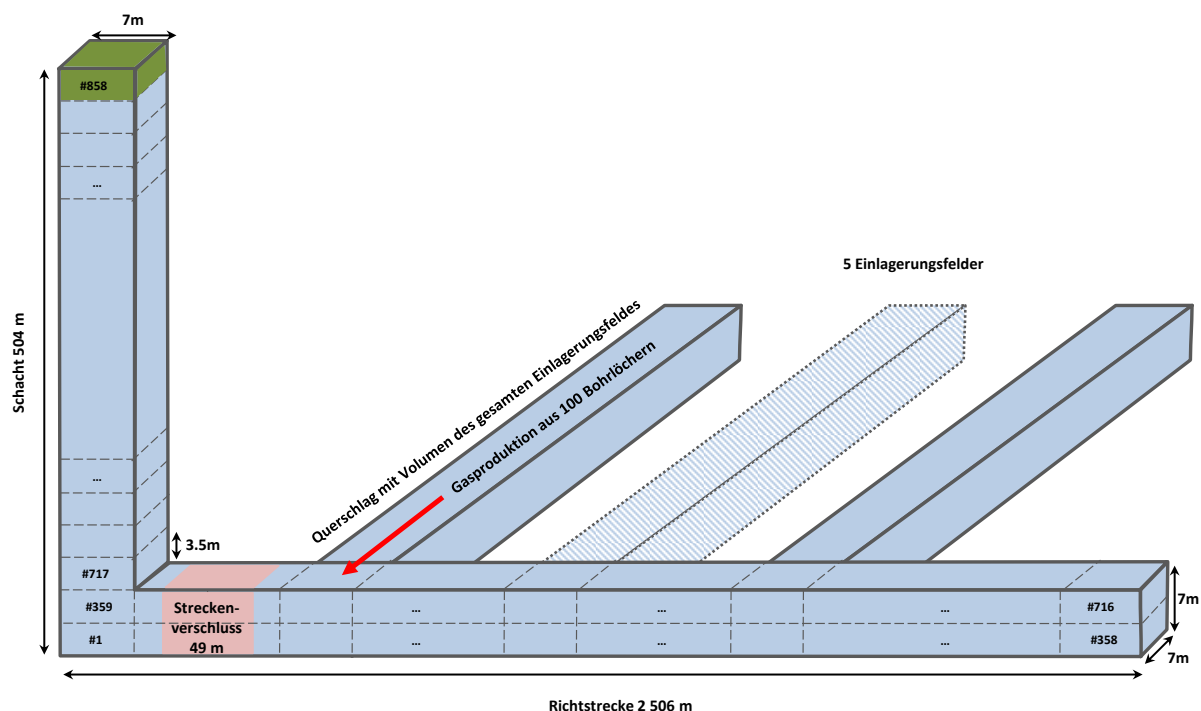


Abb. 3.1: Schematische Darstellung des TOUGH2-Modells A (nicht maßstabsgetreu)

Tab. 3.1: Modellparameter für den Basisrechenfall

Parameter	Wert	Quelle
<b>Hydraulische Parameter</b>		
Hydrostatischer Druck an der Modelloberkante [MPa]	2,7	mittlere Tiefe ca. 270 m Gok (Reinhold et al. 2013), Dichte des Grundwassers von 1 000 kg/m <sup>3</sup>
Porosität	0,3	Weetjens et al. 2009
Permeabilität Versatz [m <sup>2</sup> ]	10 <sup>-17</sup>	Modellannahme nach Nagra 2002 und Weetjens et al. 2009
Permeabilität Verschluss [m <sup>2</sup> ]	10 <sup>-19</sup>	Modellannahme nach Nagra 2002 und Weetjens et al. 2009
Feststoffdichte [kg/m <sup>3</sup> ]	2 650	Weetjens et al. 2009
<b>Zweiphasenparameter</b>		
Anfängliche Sättigung Versatz	0,6	Modellannahme
Anfängliche Sättigung Verschluss	0,9	Modellannahme
Formparameter $\lambda$	0,43	Weetjens et al. 2009
Residuale Wassersättigung der relativen Permeabilität	0,25	
Residuale Wassersättigung in der Kapillardruckkurve	0,2	
Maximale Wassersättigung	1	
Residuale Gassättigung	0,2	
Gaseindringdruck $P_0$ [MPa]	0,5	
Porenkompressibilität [MPa]	26 110	
Klinkenberg Parameter [MPa]	7,0	

Tab. 3.2: Überblick über die im Folgenden dargestellten Rechenfälle für Modell A

Rechenfall	Beschreibung, Variierte Parameter
<b>Basisrechenfall</b>	
A1	Rechnung mit dem TOUGH2-Modul EOS3 mit Wasserstoff als transportiertem Gas. Vergleichsrechnung zu Rechenlauf A2 zur Überprüfung des Einflusses der berücksichtigten Gasart und zur Bestimmung von Gasströmen. Für den Grund zur Verwendung von Luft in den weiteren Rechnungen siehe Text.
A2	Rechnung mit dem TOUGH2-Modul EOS5 mit Luft als transportiertem Gas. Die verwendeten Parameter sind in Tab. 3.1 angegeben. Für die weiteren Rechnungen sind jeweils die Abweichungen zum Rechenfall B2 angegeben.
<b>Variationen der Sättigung gegenüber Rechenfall A2</b>	
A3	Annahme einer Anfangssättigung im Versatz und Verschluss von 90%
A4	Annahme einer Anfangssättigung im Versatz und Verschluss von 95%
<b>Variationen der Versatzpermeabilität gegenüber Rechenfall A4</b>	
A5	Annahme einer Permeabilität im Versatz von $10^{-16} \text{ m}^2$ und im Streckenverschluss von $10^{-17} \text{ m}^2$ .
A6	Annahme einer Permeabilität im Versatz von $10^{-18} \text{ m}^2$ und im Streckenverschluss von $10^{-19} \text{ m}^2$ .
<b>Variationen der Gasproduktionsrate gegenüber Rechenfall A4</b>	
A7	Für den Außen- und Innenliner wird Feinkornbaustahl als Material und eine dementsprechend geringere Abtragungsrate von $5 \mu\text{m/a}$ angenommen.
A8	Eine Gasproduktion entsprechend einer Streckenlagerung von Pollux-3-Behältern wird angenommen. Es werden Abtragungsraten von $50 \mu\text{m/a}$ für den Außenbehälter aus Guss und $5 \mu\text{m/a}$ für den Innenbehälter aus Feinkornbaustahl verwendet.
<b>Variationen der Gasmenge gegenüber Rechenfall A4</b>	
A9	Für den Außenliner wird ein nicht gasproduzierendes Material angenommen.
A10	Für den Außen- und Innenliner wird ein nicht gasproduzierendes Material angenommen. Der Beginn der Korrosion der Rückholbaren Kokille wird für 500 Jahre angenommen.

## Ergebnisse

Die Ergebnisse der Simulationsrechnungen werden als zeitliche Entwicklung des Fluiddrucks an bis zu sechs Aufpunkten präsentiert. Für drei der Aufpunkte wurde eine Position direkt an den Querschlägen und somit an der Quelle der Gase gewählt, zwei sind am Beginn der Strecke, jeweils innerhalb und außerhalb des Streckenverschlusses und einer am Ende der Strecke. Abb. 3.2 zeigt die Position der Aufpunkte im Modell und Tab. 3.3 deren Bezeichnungen. In den meisten Ergebnissen zeigt sich, dass die berechneten Zeitverläufe für den Druck an den Aufpunkten Q1, Q3 und Q5 nahezu identisch sind. Weiterhin zeigen die Aufpunkte am Streckenverschluss innen und am Ende der Richtstrecke sehr ähnliche Werte. Aus diesem Grund werden nicht immer die Daten aller Aufpunkte in den Abbildungen dargestellt. Im Rechenfall A1 wird der zeitliche Verlauf des Gasflusses aus dem Endlager in einem Abstand von ca. 50 m bestimmt (Pfeil in Abb. 3.2).

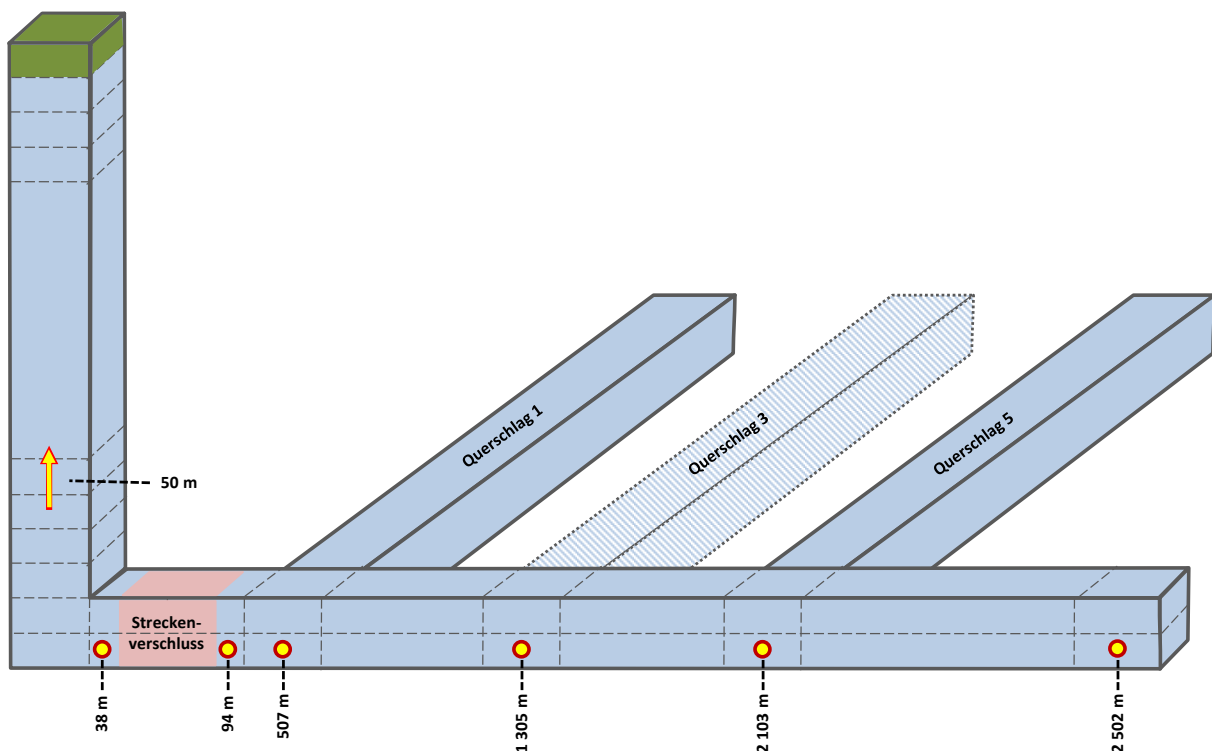


Abb. 3.2: Aufpunkte im Modell zur Darstellung von Rechenergebnissen

Tab. 3.3: Aufpunkte im Modell zur Darstellung von Rechenergebnissen

Position in x-Richtung [m]	Position in y-Richtung [m]	Segmentart	Bezeichnung
0	50	Schacht	Schacht
38	0	Strecke	Streckenverschluss außen
94	0	Strecke	Streckenverschluss innen
507	0	Strecke	Querschlag 1 (QS1)
1 305	0	Strecke	Querschlag 3 (QS3)
2 103	0	Strecke	Querschlag 5 (QS5)
2 502	0	Strecke	Richtstrecke Ende

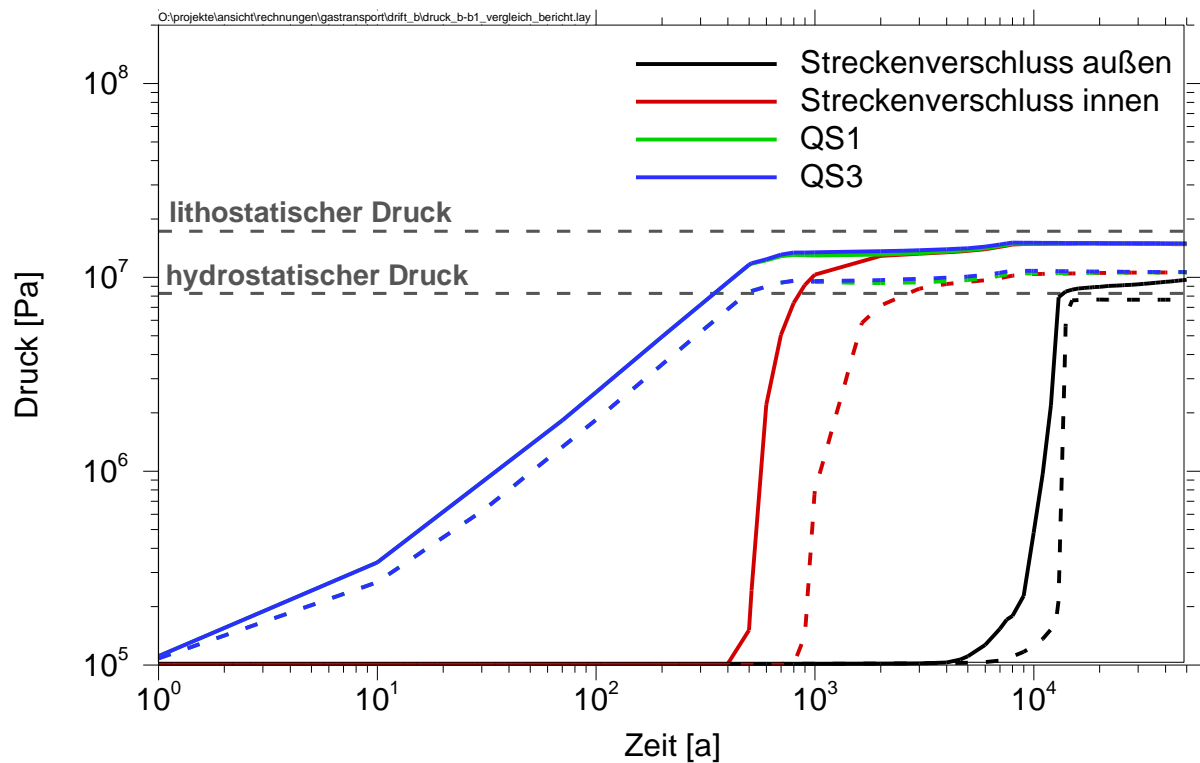


Abb. 3.3: Vergleich der zeitlichen Druckentwicklungen in den Rechenfällen A1 (durchgezogene Linie) und A2 (gestrichelte Linie) mit der Annahme von Wasserstoff bzw. Luft als transportiertem Gas

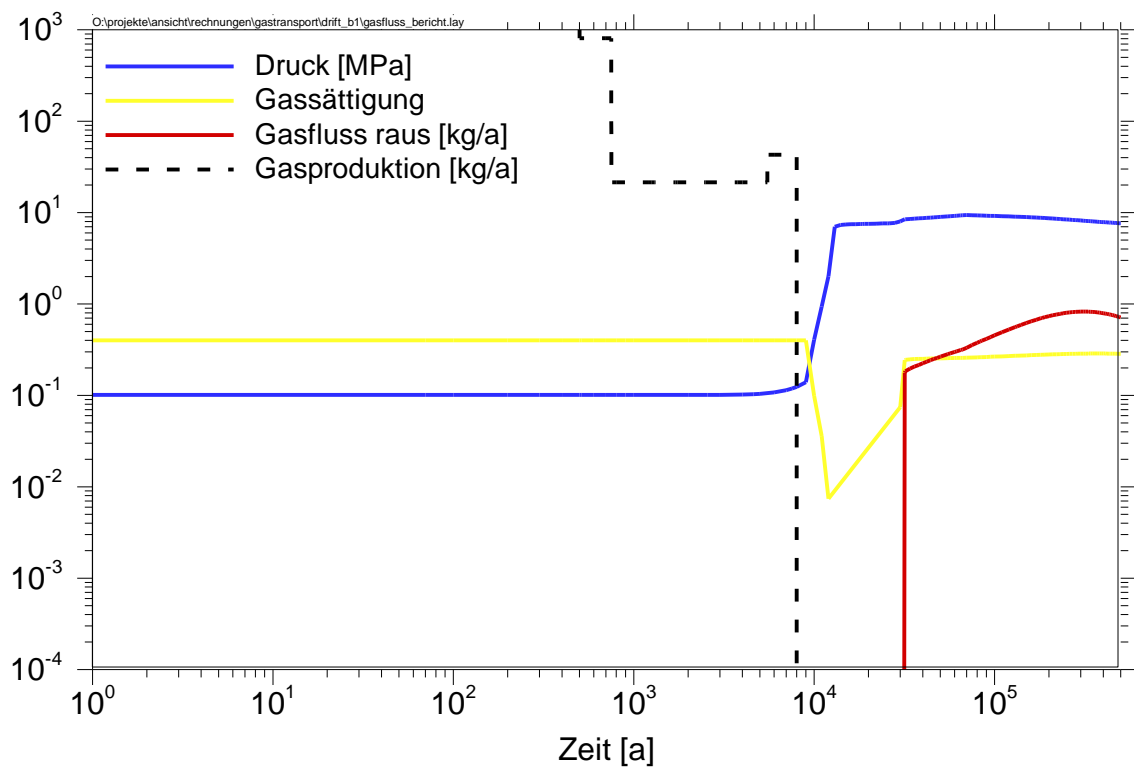


Abb. 3.4: Zeitliche Entwicklung des Drucks, der Gassättigung und des Gasflusses im Schacht in 50 m Abstand zur Endlagertiefe für den Rechenfall A1



Abb. 3.3 zeigt den zeitlichen Verlauf der Druckentwicklung für den Basisrechenfall A2 mit Luft als transportiertem Gas und den Vergleichsrechenfall A1 mit Wasserstoff als transportiertem Gas. Zum Vergleich sind der hydrostatische und der lithostatische Druck von 8,3 MPa bzw. 17,3 MPa in der Endlagerteufe von 770 m mit eingezeichnet. Diese ergeben sich bei einer mittleren Dichte von 1 095 kg/m<sup>3</sup> für die Lösung, bzw. 2 300 kg/m<sup>3</sup> für das Gestein. In beiden Rechenfällen wird der lokale hydrostatische Druck in allen Aufpunkten der Richtstrecke überschritten, der lithostatische Druck wird jedoch nicht erreicht. Für den gewählten Parametersatz der Rechenfälle A1 und A2 kann somit das Ziel erreicht werden, dass die gesamten produzierten Gase ausschließlich über den Gastransport in den Strecken und Schächten abtransportiert werden können, ohne dass signifikante Mengen von Gasen in gasförmigem Zustand in das Wirtsgestein eindringen. Dabei ist allerdings zu beachten, dass der lithostatische Druck nur als erste Näherung für den ungestörten vertikalen Spannungszustand verwendet werden kann, da es eher unwahrscheinlich ist, dass ein isotroper Spannungszustand vorliegt. Vielmehr ist davon auszugehen, dass im Horizontalen geringere Spannungen vorliegen.

Zwei deutliche Unterschiede sind zwischen den beiden Rechenfällen auf Grund der betrachteten Gasart zu beobachten. Diese sind zum einen ein früherer Anstieg der Kurven und zum anderen höhere erreichte Drücke im Fall der Betrachtung von Wasserstoff als Gas. Dies ist vermutlich überwiegend auf die höhere Beweglichkeit (geringere Viskosität, höhere Diffusivität) und die geringere Löslichkeit von Wasserstoff gegenüber Luft zurückzuführen.

In Abb. 3.4 ist für den Rechenfall A1 die zeitliche Entwicklung des Gasflusses von Wasserstoff im Schacht in einem Abstand von 50 m vom Grubengebäude aufgetragen. Bis etwa 8 000 Jahre ist ein geringer Gasfluss aufgrund des Zustroms von Lösungen durch den Schacht in das Endlager hinein gerichtet (in der Abbildung nicht dargestellt). Ab etwa 30 000 Jahren beginnt dann der Ausstrom von Gasen aus dem Endlager und damit erst deutlich nach dem Ende der Gasproduktion nach 8 000 Jahren. Die maximale Ausstromrate im modellierten Zeitraum beträgt etwa 0,83 kg/a nach 320 000 Jahren und liegt damit anderthalb Größenordnungen unter der geringsten Gasbildungsrate aus allen fünf betrachteten Einlageungsfeldern.

Wie bereits bemerkt, kann mit dem verwendeten Modell nicht der Zufluss von Lösungen aus dem Wirtsgestein betrachtet werden. In dem Rechenfall A2 wird der lokale hydrostatische Druck in der Richtstrecke nach etwa 400 bis 500 Jahren überschritten. Ab diesem Zeitpunkt fließt keine weitere Lösung mehr in die Richtstrecke zu. Die Abschätzungen zur Wiederaufsättigung in Kapitel 1 legen nahe, dass bis zu diesem Zeitpunkt unter Umständen eine höhere Sättigung im Versatz als die angenommenen 60% erreicht werden können. Aus diesem Grund wird in den Rechenfällen A3 und A4 als Variante eine höhere Sättigung im Versatz von 90%, bzw. 95% angenommen.

Den zeitlichen Verlauf der Druckentwicklung in den Rechenfällen A3 und A4 zeigt die Abb. 3.5. Diese beiden Rechenfälle zeigen, dass mit einer höheren Sättigung im Versatz zum einen der Druck in der Richtstrecke früher ansteigt und zum anderen auch der maximal erreichte Druck steigt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass die gleiche produzierte Gasmenge jeweils in einem kleineren Porenvolumen komprimiert werden muss. Dieser Effekt wird nicht durch einen höheren Gasfluss aus der Strecke hinaus kompensiert. Dadurch wird in beiden Simulationen der lokale lithostatische Druck in der Endlagerteufe überschritten.

In den beiden Rechenfällen A5 und A6 wird der Einfluss der Versatz- und Streckenverschlusspermeabilität auf die Druckentwicklung untersucht. Dabei wird auch überprüft, ob durch eine Erhöhung der Permeabilität im Versatz und dem Verschluss die hohen Werte für den Druck bei einer hohen Lösungssättigung im Versatz durch einen höheren Gasfluss kompensiert werden können.



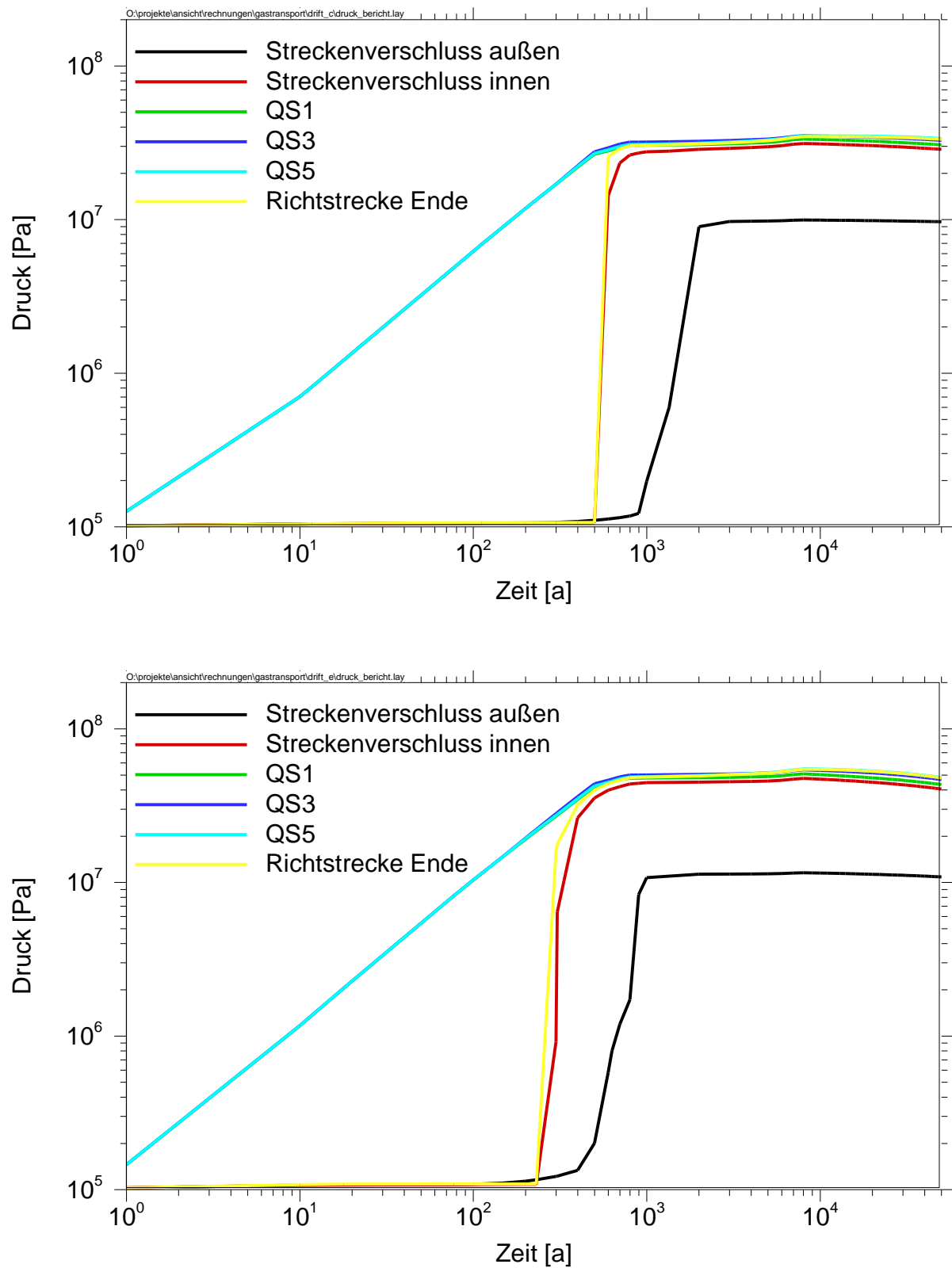


Abb. 3.5: Zeitliche Druckentwicklung in den Rechenfällen A3 (oben) und A4 (unten) mit einer Sättigung im Versatz von 90%, bzw. 95%

Für eine initiale Sättigung im Versatz von 95% wird in den Rechenfällen A5 und A6 die Permeabilität im Versatz und im Streckenverschluss variiert. Im Rechenfall A5 wird im Versatz eine Permeabilität von  $10^{-16} \text{ m}^2$  und im Streckenverschluss von  $10^{-17} \text{ m}^2$  angenommen. Der Wert im Streckenversatz ist damit eine Größenordnung und jener im Streckenverschluss sogar zwei Größenordnungen größer als im Basisrechenfall oder im Rechenfall A4. Im Rechenfall A6 wird im Versatz eine Permeabilität von  $10^{-18} \text{ m}^2$  und im Streckenverschluss von  $10^{-19} \text{ m}^2$  angenommen. Der Wert im Streckenversatz ist damit eine Größenordnung niedriger und jener im Streckenverschluss gleich dem Wert im Basisrechenfall oder im Rechenfall A4. Die zeitliche Entwicklung des Drucks als Ergebnis der Rechenfälle A5 und A6 zeigt Abb. 3.6.

Durch die Vergrößerung der Permeabilität im Rechenfall A5 kommt es zu einem schnelleren Transport der Gase entlang der Strecke. Aus diesem Grund steigt der Druck am Beginn und Ende der Richtstrecke und auch außerhalb des Streckenverschlusses schneller an. Der maximal erreichte Druck in der direkten Umgebung der Quellen der Gasproduktion wird jedoch durch den schnelleren Gastransport nur unwesentlich beeinflusst. Allerdings wird der Druck schneller wieder mit der Zeit abgebaut. Eine Erhöhung der Permeabilität in der Strecke (z. B. durch die Zumischung von Sand in den Versatz) scheint daher nach diesem Ergebnis keine wirkungsvolle Option, den Gasdruck im Endlager wesentlich zu reduzieren. Ein prinzipiell ähnliches Verhalten zeigt sich im Rechenfall A6, in welchem die Permeabilität im Versatz verringert wurde. In diesem Fall wird der Gastransport entlang der Strecke verzögert und der erreichte Druck langsamer wieder abgebaut. Der maximal erreichte Druck in der Umgebung der Quellen der Gasproduktion unterscheidet sich aber wiederum nicht wesentlich von der entsprechenden Vergleichsrechnung A4.

In vier weiteren Rechenfällen wird der Einfluss einer Variation der Gasproduktion auf die Druckentwicklung untersucht. Dabei wird zum einen in den Rechenfällen A7 und A8 die Gasproduktionsrate variiert. Dazu wird im Rechenfall A7 die Verwendung von langsamer korrodierendem Feinkornbaustahl für den Außen- und Innenliner angenommen. Im Rechenfall A8 wird die Verwendung von Pollux-3-Behältern in der Streckenlagerung angenommen, die auf Grund ihrer kleineren Oberfläche gegenüber den Linern im Bohrlochkonzept eine langsamere Korrosion bewirken (siehe auch Kapitel 2). In beiden Fällen führt die langsamere Gasproduktionsrate zwar zu einem langsameren Druckaufbau in der Richtstrecke, der maximal erreichte Druck wird aber nicht wesentlich beeinflusst. In den Rechenfällen A9 und A10 wird zum anderen die maximal produzierte Gasmenge variiert. Dazu wird im Rechenfall A9 für den Außenliner ein nicht gasproduzierendes Material angenommen. Gleiches gilt im Rechenfall A10 für den Außen- und den Innenliner. Der Beginn der Korrosion der rückholbaren Kokille wird im Rechenfall A10 gleichwohl bei 500 Jahren angenommen. Eine Reduzierung der produzierten Gasmenge zeigt eine deutliche Reduzierung des maximal erreichten Gasdrucks. Im Rechenfall A10 mit der Annahme von nicht korrodierendem Material für den Außen- und Innenliner wird gerade nur noch der lokale hydrostatische Druck in der Richtstrecke erreicht.

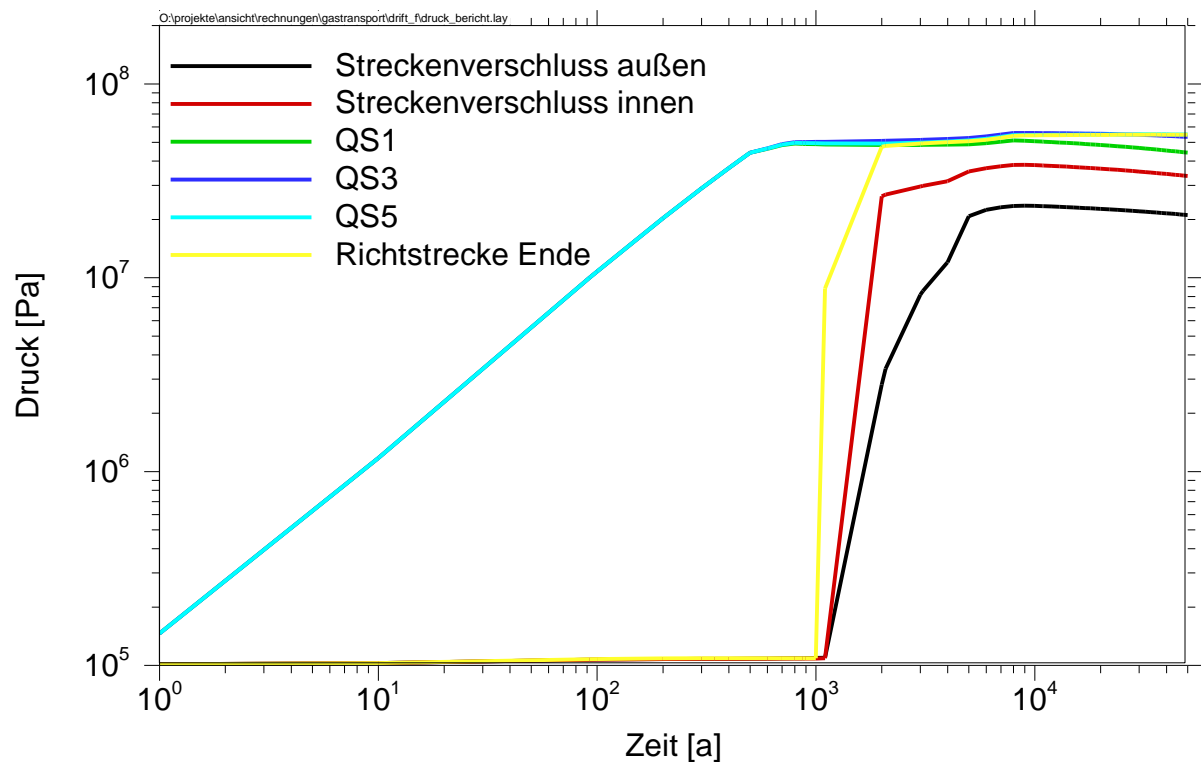
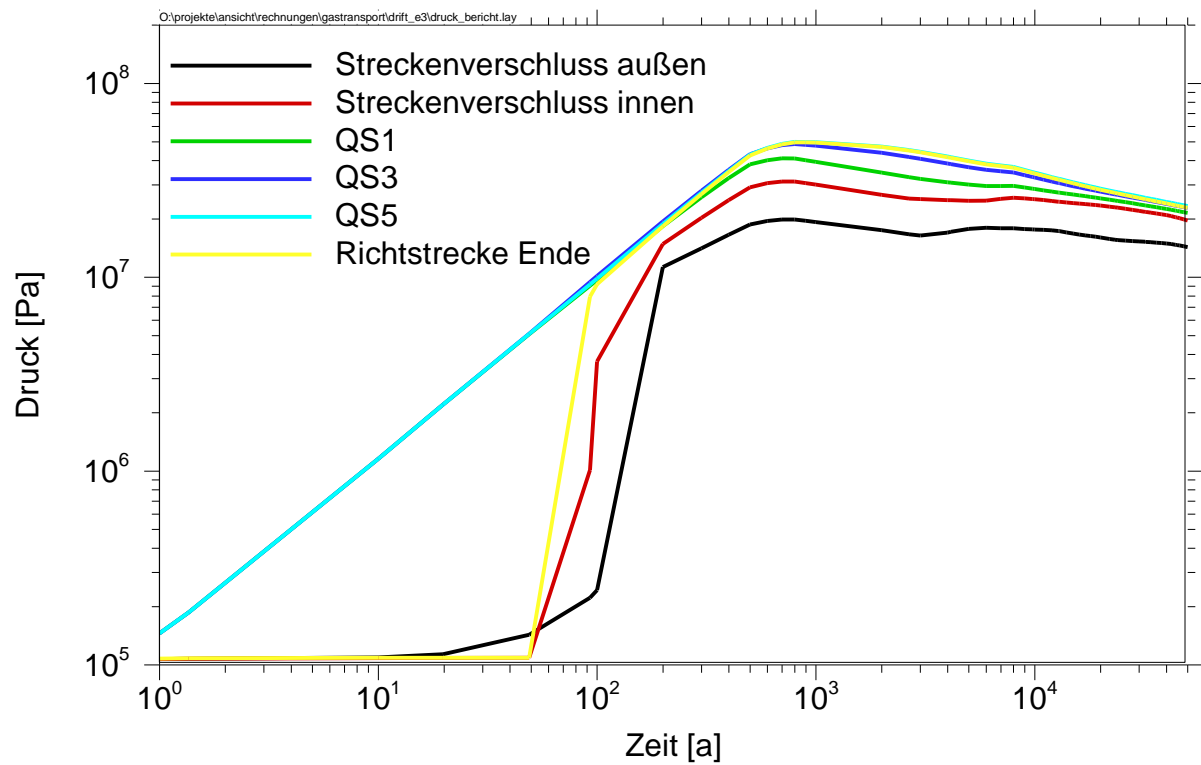


Abb. 3.6: Zeitliche Druckentwicklung in den Rechenfällen A5 (oben) und A6 (unten) mit jeweils einer Sättigung im Versatz von 95% bei einer Variation der Permeabilität im Versatz und Verschluss

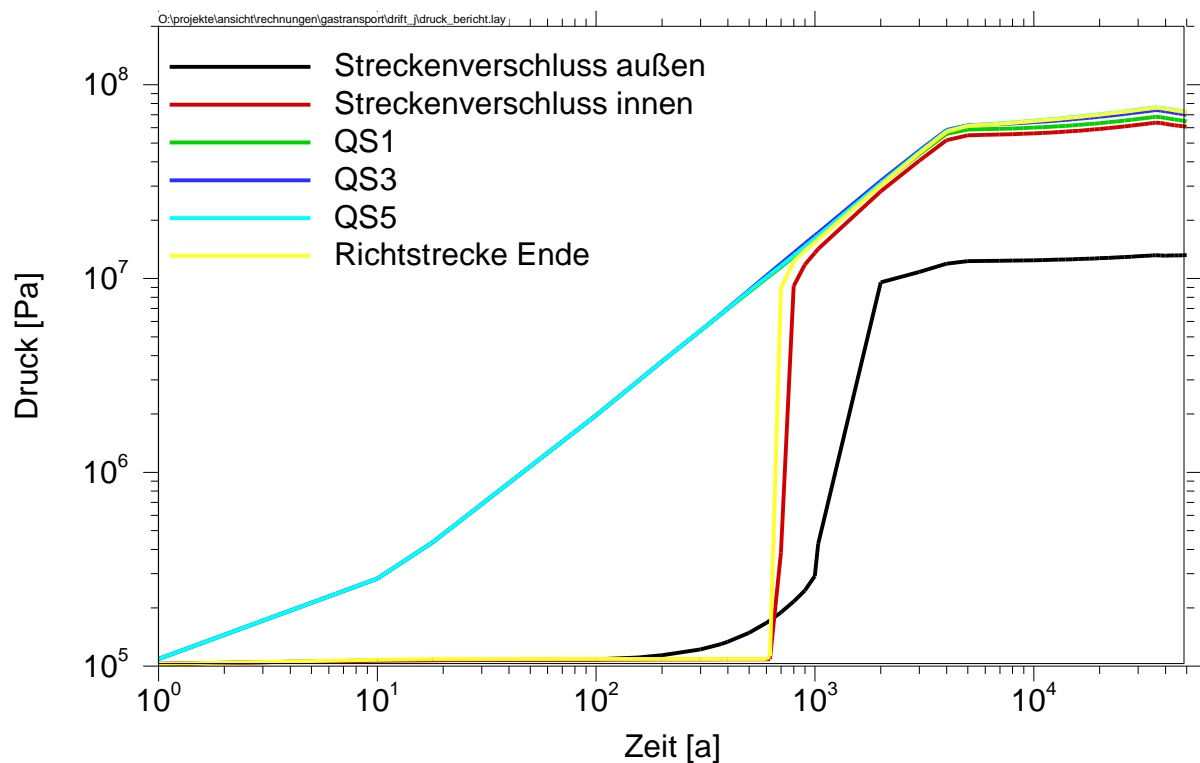
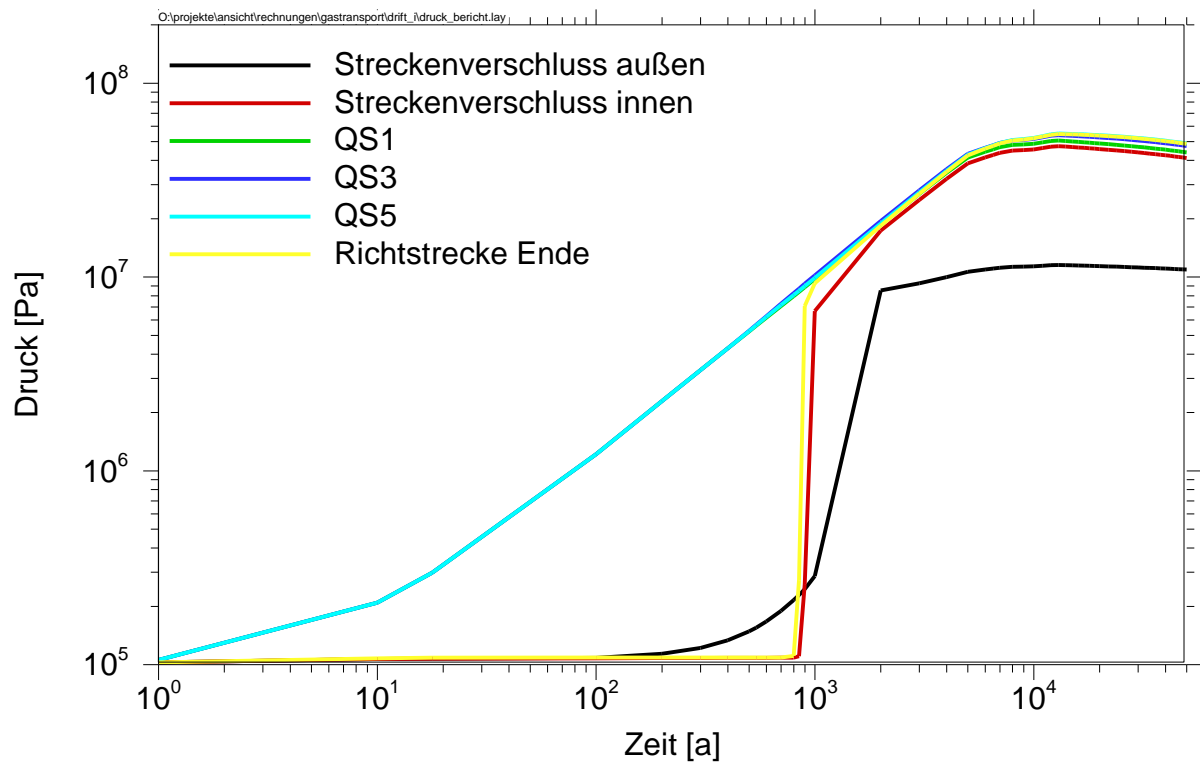


Abb. 3.7: Zeitliche Druckentwicklung in den Rechenfällen A7 (oben) und A8 (unten) mit jeweils einer Sättigung im Versatz von 95% und einer Variation der Gasproduktionsrate durch die Annahme der Verwendung von Feinkornbaustahl für den Außen- und Innenliner (oben), bzw. von Pollux-3-Behältern (unten)

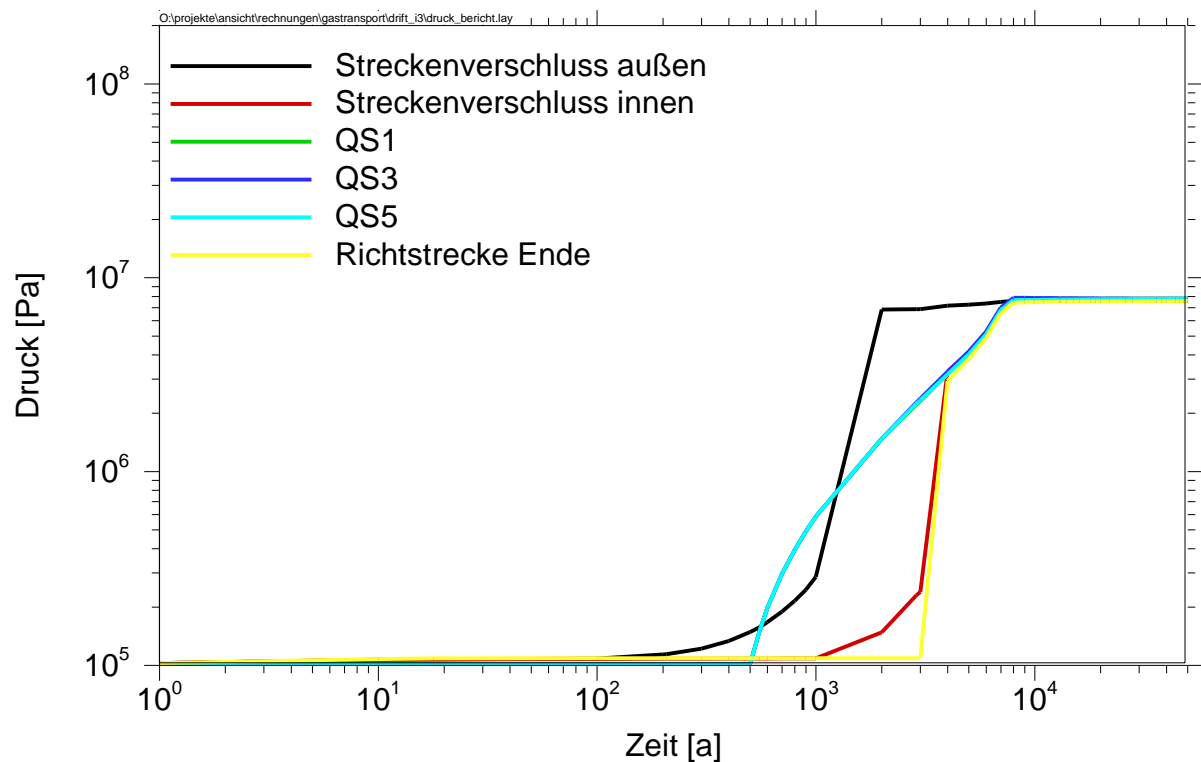
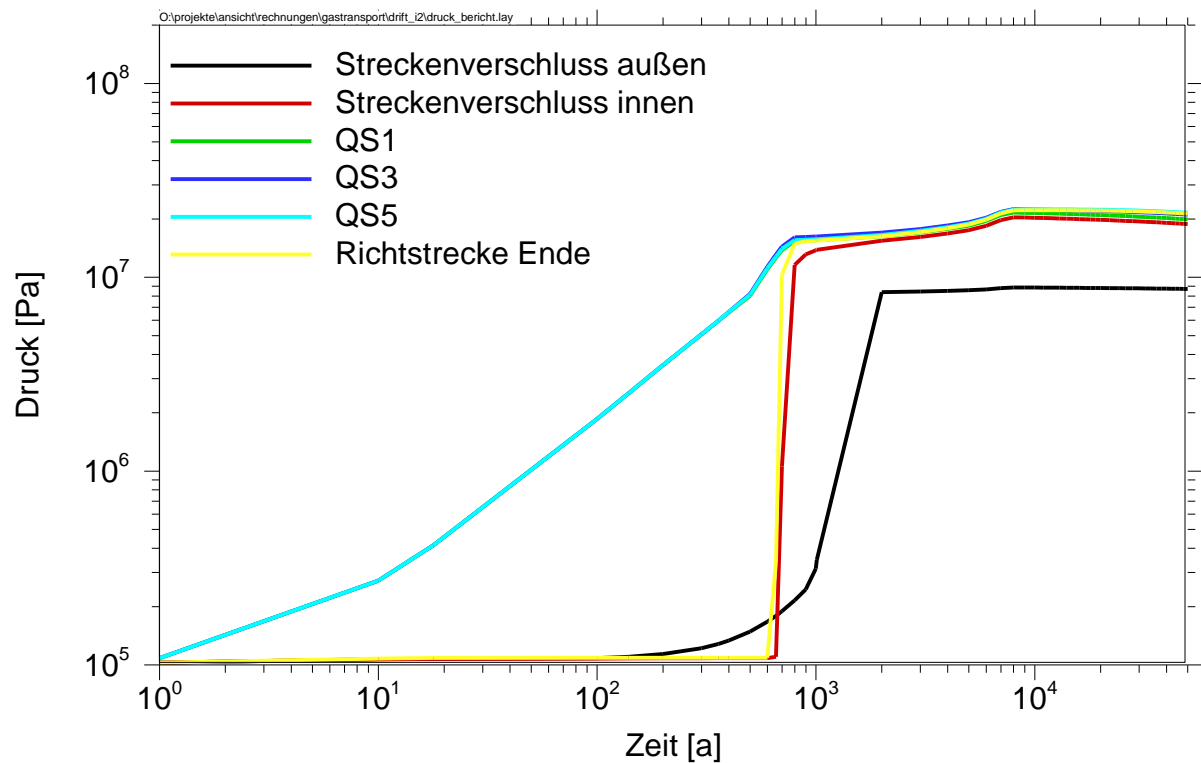


Abb. 3.8: Zeitliche Druckentwicklung in den Rechenfällen A9 (oben) und A10 (unten) mit jeweils einer Sättigung im Versatz von 95% und einer Variation der produzierten Gasmenge durch die Annahme von nicht gasproduzierenden Materialien für den Außenliner (oben), bzw. den Außen- und Innenliner (unten)

### 3.2 Modell B: 1D-Modell mit Berücksichtigung des Streckenausbaus und der Auflockerungszone

Durch die Auffahrung der Grubenräume wird um die Strecken ein gestörter Gebirgsbereich, die sogenannte Auflockerungszone (ALZ) erzeugt, der eine höhere Permeabilität als das Wirtsgestein aufweist. Weiterhin ist die Strecke, außer im Bereich des Streckenverschlusses, mit einem Streckenausbau versehen. Beide Bereiche können einen bevorzugten Transportweg für die Gase darstellen. Um den Einfluss dieser bevorzugten Wegsamkeit zu untersuchen wird das Modell so modifiziert, dass der Streckenausbau und die Auflockerungszone berücksichtigt werden können. Dazu werden die Segmente in der unteren Hälfte der Richtstrecke im Volumen so angepasst, dass sie den gesamten Streckenquerschnitt repräsentieren, während die Segmente in der oberen Hälfte der Richtstrecke im Volumen so angepasst werden, dass sie den Streckenausbau und die ALZ repräsentieren. Dementsprechend werden auch die Transportparameter in der Strecke und in dem Streckenausbau/ALZ unterschiedlich gewählt. Ein Schema des modifizierten Modells B ist in Abb. 3.9 dargestellt.

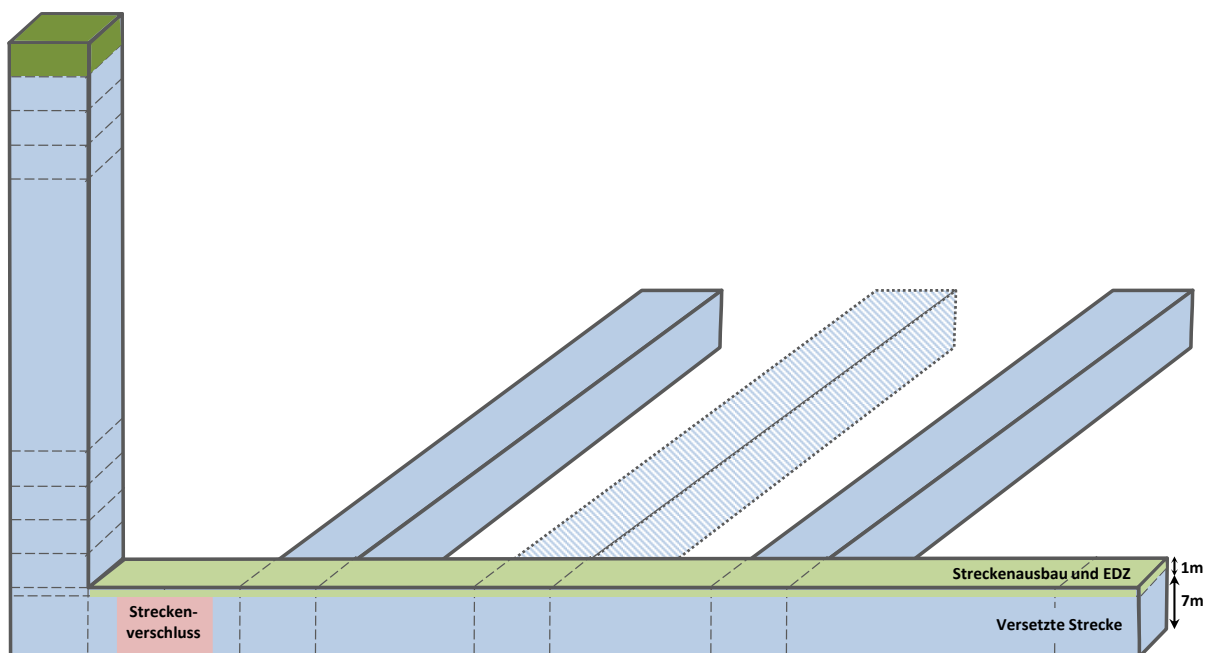


Abb. 3.9: Schematische Darstellung des TOUGH2-Modells B mit Berücksichtigung der Auflockerungszone (nicht maßstabsgetreu)

Tab. 3.4: Überblick über die im Folgenden dargestellten Rechenfälle für Modell B

Rechenfall	Beschreibung, Variierte Parameter
B1	Permeabilität Versatz $10^{-17} \text{ m}^2$ , Abdichtung $10^{-19} \text{ m}^2$ , Streckenausbau und ALZ $10^{-15} \text{ m}^2$ Porenvolumen im Streckenausbau und der ALZ 1/7 des Porenvolumens in der Strecke
B2	Permeabilität Versatz $10^{-17} \text{ m}^2$ , Abdichtung $10^{-19} \text{ m}^2$ , Streckenausbau und ALZ $10^{-15} \text{ m}^2$ Im Bereich der Abdichtung: Porenvolumen im Streckenausbau und der ALZ 1/7 des Porenvolumens in der Strecke In der sonstigen Strecke: Porenvolumen im Streckenausbau und der ALZ 1/2 des Porenvolumens in der Strecke

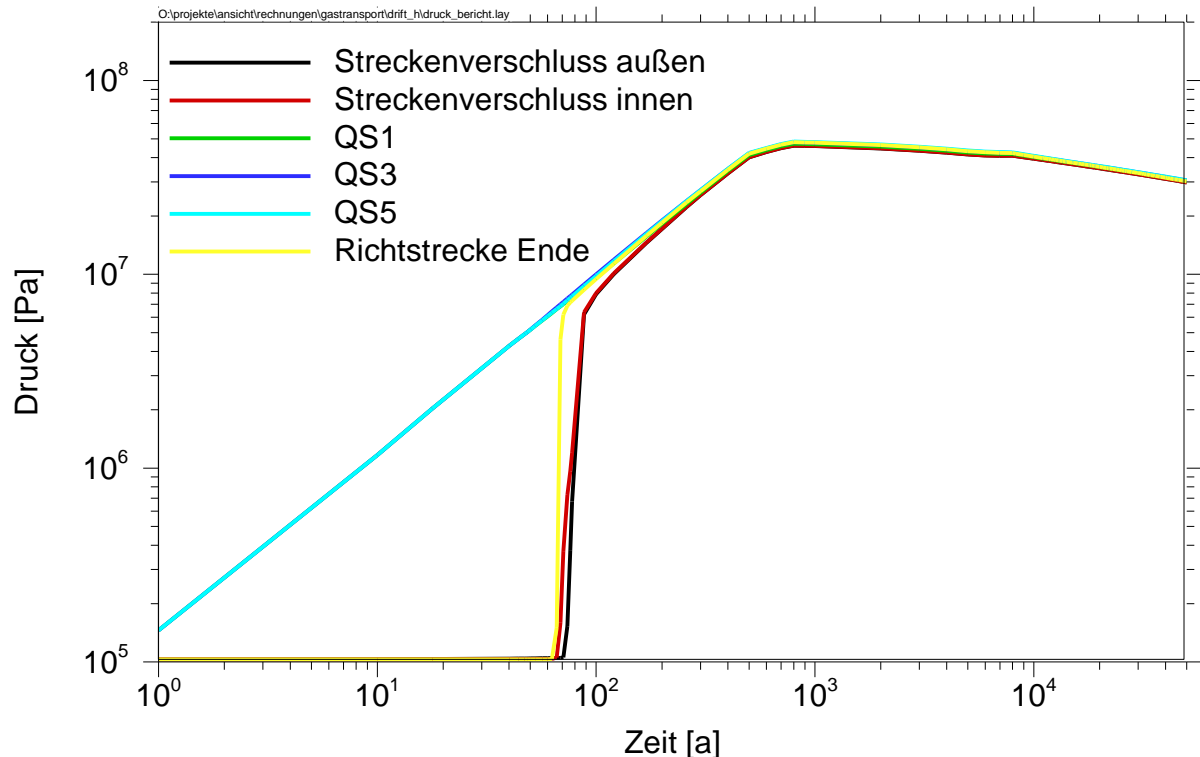


Abb. 3.10: Zeitliche Druckentwicklung im Rechenfall B1 mit Berücksichtigung des Streckenausbaus und der ALZ

Im Rechenfall B1 werden im Versatz eine Permeabilität von  $10^{-17} \text{ m}^2$ , in der Abdichtung  $10^{-19} \text{ m}^2$  und für den Streckenausbau und die ALZ  $10^{-15} \text{ m}^2$  angenommen. Die Ausdehnung der ALZ wird so gewählt, dass das Porenvolumen im Streckenausbau und der ALZ einem Siebtel des Porenvolumens in der Strecke entspricht. Die Anfangssättigung entspricht überall 95%. Damit ist der Rechenfall bis auf die Berücksichtigung des Streckenausbaus und der ALZ direkt vergleichbar mit dem Rechenfall A4.

Das Ergebnis des Rechenfalls B1 zeigt Abb. 3.10 als zeitliche Druckentwicklung. Die ALZ bewirkt einen schnelleren Gastransport entlang der Strecke und insbesondere auch am Streckenverschluss vorbei. Es ist praktisch keine Verzögerung im Anstieg der Kurven für den Aufpunkt innerhalb und außerhalb des Streckenverschlusses zu erkennen. Der schnellere Gastransport führt allerdings nicht zu einer deutlichen Verringerung des maximalen erreichten Gasdrucks in der Richtstrecke. Insofern sind die Ergebnisse für die Berücksichtigung der ALZ vergleichbar mit jenen der Berücksichtigung einer erhöhten integralen Permeabilität in der Strecke und im Streckenverschluss, wie sie im Rechenfall A5 betrachtet wurde.

In einem weiteren Rechenfall B2 wird ein größeres Porenvolumen im Streckenausbau und der ALZ betrachtet. Das Ergebnis dieses Rechenfalls unterscheidet sich nur geringfügig von dem von Rechenfall B1. Dies ist vor allem darauf zurückzuführen, dass für den Bereich des Streckenverschlusses das Porenvolumen gegenüber dem Rechenfall B1 unverändert gelassen wurde, da in diesem Bereich der Streckenausbau entfernt und die ALZ so weit wie möglich beraubt wird. Das zusätzliche Porenvolumen bzw. der höhere Gastransport im Bereich der sonstigen Strecke haben aber keine Auswirkung.

### 3.3 Modell C: 2D-Modell

Obwohl in der Einleitung zu diesem Kapitel festgestellt wurde, dass eine Modellierung des Gastransports im Wirtsgestein nach dem Modell von van-Genuchten nur bedingt realistisch ist, werden in diesem Unterkapitel Rechenfälle mit einem um das Wirtsgestein erweiterte Modell zum Vergleich vorgestellt. Dazu wurde das Modell A so erweitert, dass auch das Wirtsgestein über der Strecke mit dem gleichen regelmäßigen Gitter diskretisiert wurde. Das Modell ist in Abb. 3.11 dargestellt. Es besteht insgesamt aus 51 551 Elementen, von denen wie im Modell A 571 Elemente die Richtstrecke und den Schacht darstellen.

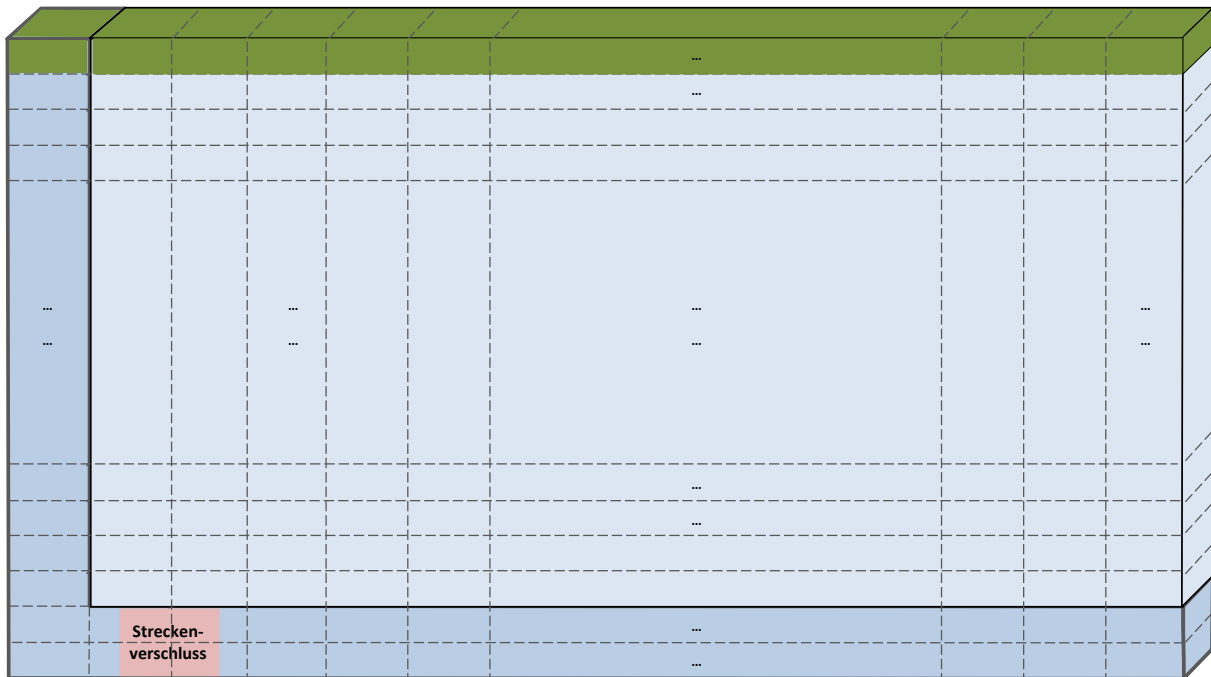


Abb. 3.11: Schematische Darstellung des TOUGH2-Modells C (nicht maßstabsgetreu)

Die Parameter für die Strecken- und Schachtelemente, den Zweiphasenfluss sowie für die Gasproduktion wurden weitgehend wie im Rechenfall A2 gewählt. Die Sättigung im Schacht und der Richtstrecke beträgt zu Beginn 60 %. Das Wirtsgestein ist vollständig gesättigt. Die Permeabilität beträgt im Versatz  $10^{-18} \text{ m}^2$  und im Streckenverschluss und dem Wirtsgestein jeweils  $10^{-19} \text{ m}^2$ . Der Gaseindringdruck im Wirtsgestein wurde zu 5 MPa festgelegt. Zur Bestimmung der initialen Druckverteilung im Wirtsgestein wurde zuerst eine Rechnung für das Gesamtmodell ohne Gasproduktion bis zum Erreichen des steady-state durchgeführt und die Druckverteilung im steady-state dann im Bereich des Wirtsgesteins als Anfangsbedingung der Druckverteilung festgelegt. Für den Druck in der Richtstrecke und im Schacht wurde für die Rechnung mit Gasproduktion als Anfangsbedingung hingegen Atmosphärendruck angenommen.

Abb. 3.12 zeigt die Verteilung des Fluiddrucks im Modellgebiet zu Beginn der Rechnung und nach 10 000 Jahren. Abb. 3.13 zeigt zusätzlich für die unteren 30 m des Modellgebiets die Lösungssättigung und den Fluiddruck zum Zeitpunkt des Beginns der Rechnung und jeweils nach 10 000 und 50 000 Jahren.

Es zeigt sich, dass die Gasbewegung in der Rechnung mit Berücksichtigung des Wirtsgesteins in das Wirtsgestein erfolgt und nicht entlang der Strecke. Zwischen den einzelnen Gasquellen bilden sich (siehe Darstellung für 10 000 Jahre) Bereiche aus, in denen die Lösungssättigung in der Strecke gegenüber dem Anfangszustand zunimmt und Werte nahe der vollständigen Sättigung erreicht. Demgegenüber wird das Wirtsgestein in der Nähe der Gas-



quellen im konturnahen Bereich entsättigt. Die Ursache für diesen Effekt ist zum einen die Tendenz der Gase eher nach oben aufzusteigen, als in horizontaler Richtung transportiert zu werden und zum anderen die Tatsache, dass im Modell von van-Genuchten trotz des hohen Gaseindringdrucks ein Anteil von Gasen bereits unterhalb des Gaseindringdrucks in das Wirtsgestein eindringen kann.

Diese beiden in der Simulation beobachteten Effekte werden von den Autoren auf das eingesetzte Modell zurückgeführt und in dieser Form als nicht realistisch erachtet. Aus diesem Grund werden die Rechnungen mit dem 2D-Modell nicht in der zusammenfassenden Bewertung des folgenden Abschnitts berücksichtigt.

Weiterentwickelte Versionen des Codes TOUGH2 verwenden z. B. eine druckabhängige Permeabilität oder berücksichtigen den Transport auf einzelnen Transportkanälen, um den Effekt der Porenweite beim Eindringen der Gase und dem Gastransport in Tongestein abzubilden (z. B. Navarro 2013). Mit beiden Ansätzen ist es gelungen in-situ Experimente zur Gasinjektion adäquat zu modellieren. Es erscheint derzeit jedoch zumindest fraglich, ob mit diesen Modellen derzeit belastbare langfristige Prognosen zum Gastransport erstellt werden können.

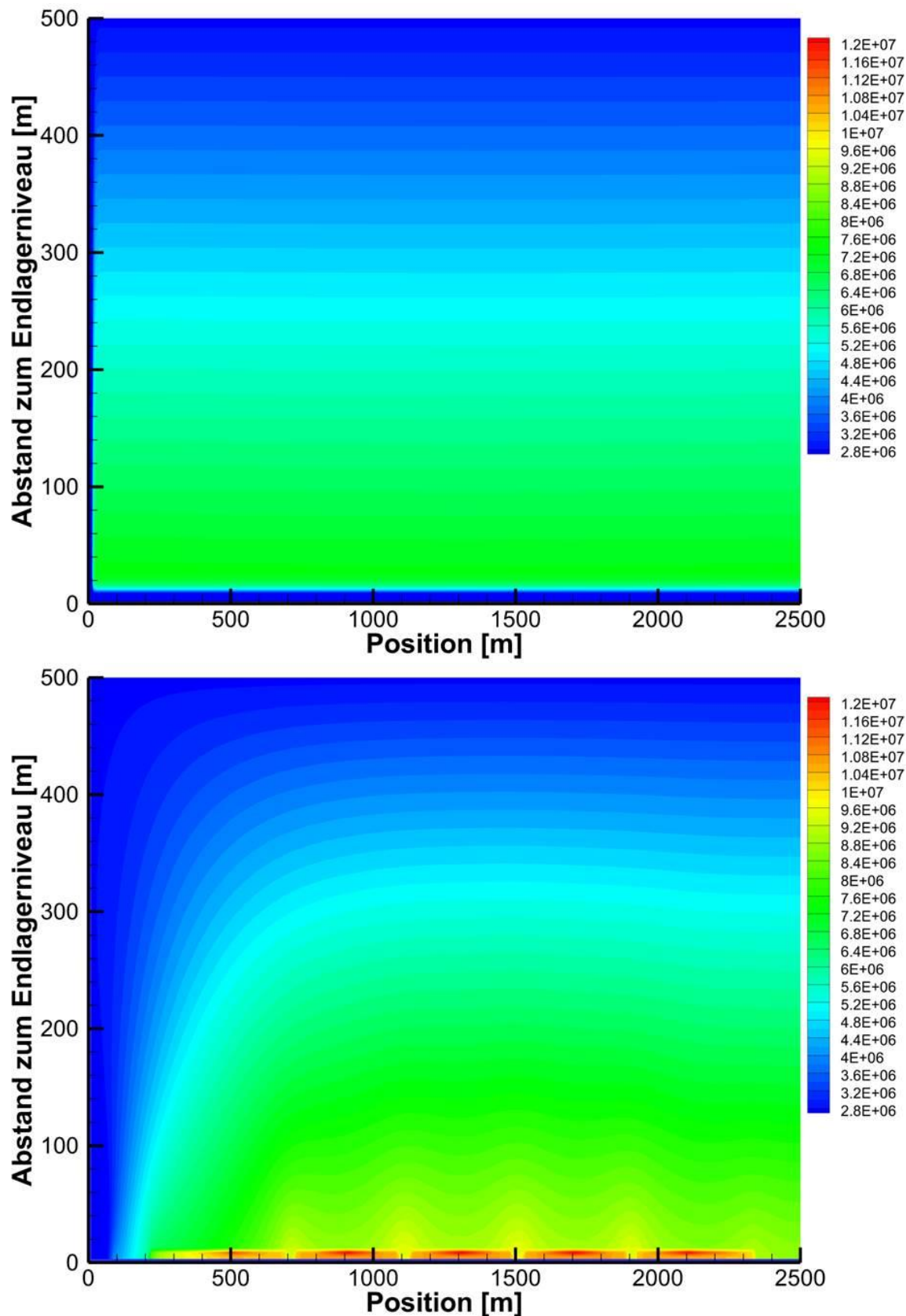


Abb. 3.12: Verteilung des Fluiddrucks in Pascal für 0 (oben) und 10 000 Jahre (unten) für das gesamte Modellgebiet des 2D-Modells

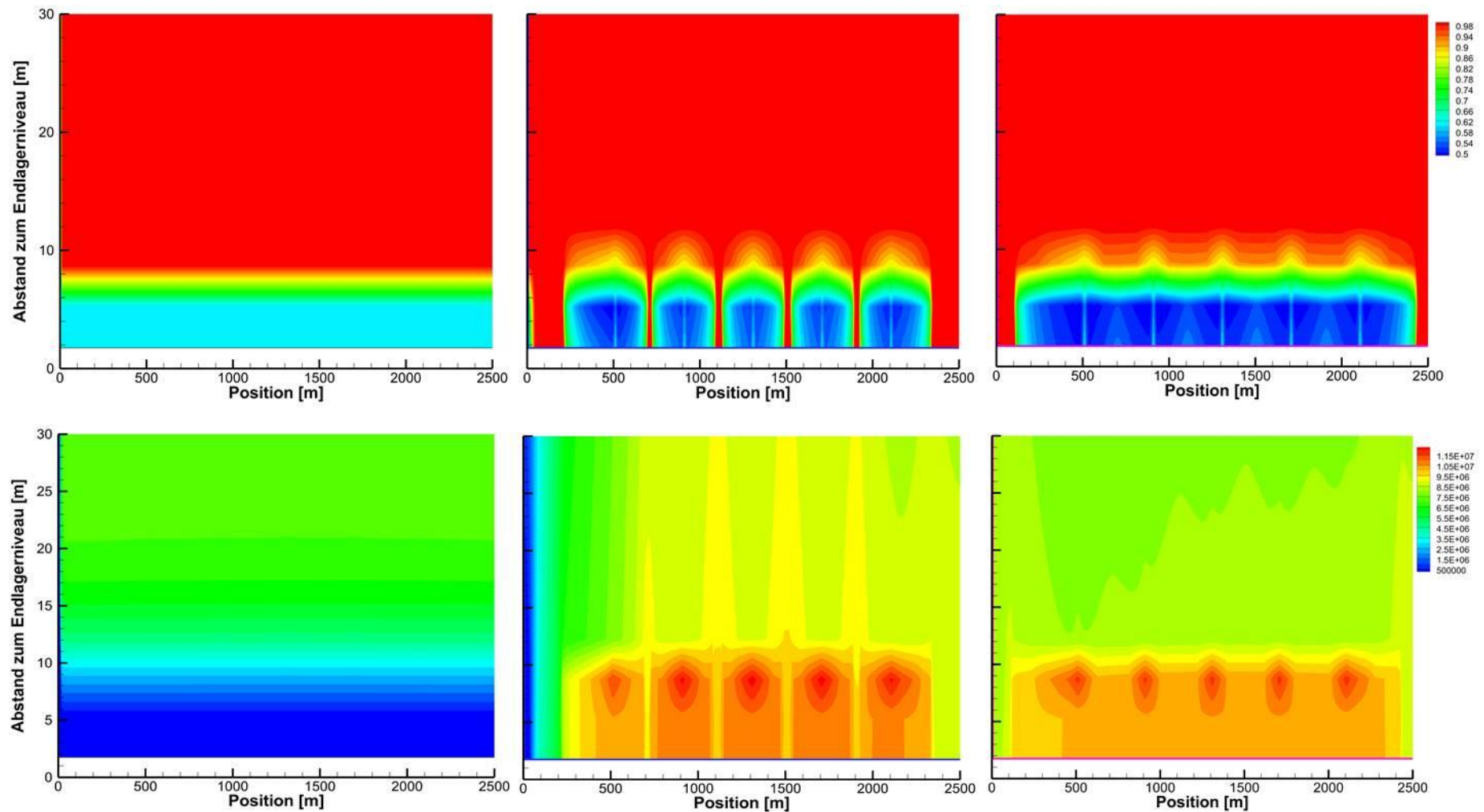


Abb. 3.13: Verteilung der Lösungssättigung (obere Reihe) und des Fluiddrucks in Pa (untere Reihe) in den unteren 30 m des 2D-Modells für die Zeitpunkte 0, 10 000 und 50 000 Jahre (von links nach rechts)

### 3.4 Zusammenfassende Bewertung

In einer Reihe von Simulationsrechnungen wurde die zeitliche Druckentwicklung im Endlager für das Endlagerstandortmodell NORD untersucht. In praktisch allen Rechnungen wurde für den maximalen Gasdruck der Wert für den lokalen hydrostatischen Druck überschritten. Somit ist in diesen Fällen mit einer wesentlichen Beeinflussung der Wiederaufsättigung des Grubengebäudes zu rechnen. In einigen der untersuchten Rechenfälle wurde zusätzlich der lokale lithostatische Druck in der Endlagerteufe überschritten. Spätestens beim Erreichen dieses Drucks ist mit einer negativen Beeinflussung des Wirtsgesteins zu rechnen.

Die in den vorangegangenen Kapiteln präsentierten Rechnungen zur Druckentwicklung und zum Gastransport im Grubengebäude am Endlagerstandortmodell NORD weisen auf Grund ihres generischen Charakters, des hohen Abstraktionsgrades, verschiedener modelltechnischer Vereinfachungen (wie z. B. der Betrachtung von Luft als transportiertem Gas) und der Ungewissheit der verwendeten Parameter (z. B. Zweiphasenparameter und Gasbildungsrate) hohe Ungewissheiten bezüglich der zeitlichen Entwicklung des absoluten Drucks auf und sollten daher nicht ohne weiteres zu Aussagen bezüglich einer Beeinflussung der Integrität des Wirtsgesteins herangezogen werden. Auf Grund der Anzahl der durchgeführten Parametervariationen lassen sich aber sehr wohl qualitative, orientierende Aussagen über den Einfluss verschiedener Parameter auf die zeitliche Druckentwicklung geben. Demnach wird der Einfluss auf die zeitliche Druckentwicklung von folgenden Parametern wie folgt eingeschätzt:

- **Ungesättigtes Porenvolumen im Versatz:** Das zur Verfügung stehende, nicht gesättigte Volumen in der Strecke hat einen großen Einfluss sowohl auf die zeitliche Entwicklung, als auch auf den maximal erreichten Druck. Je geringer das ungesättigte Volumen, desto schneller steigt der Druck und desto höhere maximale Werte werden erreicht.  
Bei den hier präsentierten Rechenfällen ist es nicht ausreichend, dass ein ausreichendes gesättigtes Porenvolumen zur Verfügung steht, da die Lösung nicht effektiv genug durch das gebildete Gas aus dem Porenraum verdrängt werden kann. Dieser Effekt ist jedoch in Modellierungen mit Berücksichtigung des Wirtsgesteins zu bestätigen, da unter Umständen eine Verdrängung der Lösung in das Wirtsgestein auf Grund der größeren Querschnittsfläche der Strömung effektiver sein könnte als jene entlang der Strecken.  
Sollte sich dieser Effekt bestätigen, dann ist dieser Aspekt bei der prinzipiell möglichen Planung von Gasspeicherräumen in der Nähe der Gasquellen zu bedenken. Potenzielle Gasspeicherräume müssten genügend groß sein, dass sie während der Gasproduktionsphase nicht vollständig durch aus dem Wirtsgestein zutretende Lösungen aufgesättigt werden können.
- **Permeabilität der Versatzmaterialien:** Die Permeabilität der Versatzmaterialien hat vor allem einen Einfluss auf den zeitlichen Verlauf der Druckentwicklung in den Bereichen, die weiter entfernt vom Ort der Gasproduktion liegen. Je geringer die Permeabilität, desto später steigt dort der Druck. Der Einfluss der Permeabilität der Versatzmaterialien auf den maximal auftretenden Druck ist in den durchgeführten Rechenfällen nicht sehr markant. Insbesondere in der Umgebung der Gasquellen lässt sich der maximal auftretende Druck nicht wesentlich durch eine Erhöhung der Versatzpermeabilität mindern.
- **Streckenausbau und Auflockerungszone:** Der Einfluss des Streckenausbaus und der Auflockerungszone entspricht weitestgehend dem einer erhöhten Versatzpermeabilität. Der Transport der Gase entlang der Strecke wird deutlich beschleunigt, während der maximal auftretende Druck nicht wesentlich beeinflusst wird.

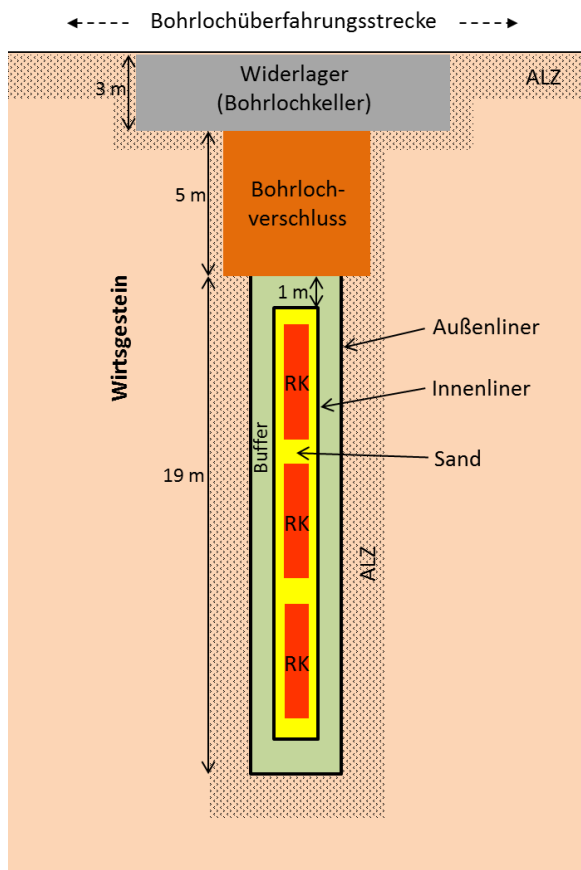
- **Gasproduktionsrate:** Eine Verringerung der Gasproduktionsrate verzögert signifikant den zeitlichen Anstieg des Drucks. Wie bei der Variation der Permeabilität ist dabei jedoch der Einfluss auf den maximal auftretenden Druck weniger ausgeprägt.
- **Produzierte Gasmenge:** Die Verringerung der produzierten Gasmenge wirkt sich im Prinzip ähnlich wie eine Vergrößerung des verfügbaren ungesättigten Porenvolumens im Versatz aus. Durch eine Verringerung der produzierten Gasmenge wird sowohl der Druckanstieg verzögert, als auch der maximal auftretende Druck signifikant verringert.

Aus den durchgeführten Rechenfällen lässt sich folgern, dass für den Fall, dass eine Optimierung des Endlagerkonzepts zur Verringerung der maximal erreichten Gasdrücke durchgeführt werden soll, entweder eine Vergrößerung des ungesättigten Porenvolumens (Gasspeicherräume), oder eine Verringerung der produzierten Gasmenge durch den Einsatz nicht gasbildender Stoffe die effektivsten Optimierungsmöglichkeiten darstellen. Bei der Vergrößerung des ungesättigten Porenvolumens ist jedoch zu bedenken, dass dieser Parameter wesentlich vom Wiederaufsättigungsprozess abhängt und somit nicht zeit- und prozessunabhängig beeinflusst werden kann.

#### 4 3D-Modellierungen zum gekoppelten Lösungs- und Gastransport im Endlager (Victoria Burlaka)

Wie auch in den vorherigen Kapiteln werden für die Berechnungen die TOUGH2-Module (Pruess et al. 1999) EOS5 und EOS3 (EOS = Equation of state) verwendet, die die Strömung von Wasser und Wasserstoff (EOS5) und Luft (EOS3) simulieren. Im EOS5 ist Wasserstoff die einzige gasförmige Komponente, die auch die Luft ersetzt. Das EOS5-Modul wurde entwickelt, um Grundwassersysteme zu untersuchen, in denen Wasserstoff freigesetzt wird, wie es bei der Korrosion von Metallbehältern in einem Tonstein-Endlager der Fall ist. Wasserstoff ist der Hauptbestandteil des Gases, der bei der Korrosion von Metallbehältern entsteht. Im EOS3-Modul wurde Wasserstoff Gasbildungsrate umgerechnet in die moläquivalenten Luftmasseninjektionsraten.

Die meisten Modellierungen wurden für das Endlagerstandortmodell NORD im Bereich der Einlagerungsfelder für ausgediente Brennelemente durchgeführt. In dem Bereich besteht das Grubengebäude aus 32 Einlagerungsfeldern mit 9 Einlagerungsstrecken in jedem Feld, wobei sich in einer Strecke 12-13 Bohrlöchern befinden (Lommerzheim & Jobmann 2015). Die



Einlagerungsstrecken sind miteinander über Querschläge verbunden. In jedem Bohrloch befinden sich drei Komponenten, die zur Gasbildung beitragen. Es sind dies drei Abfallbehälter sowie ein Außenliner und ein Innenliner aus Guss-Stahl (Abb. 4.1). Die Einlagerungsfelder sind über die Richtstrecken verbunden. Außerdem besitzt das Grubengebäudemodell zwei Schächte und einen Infrastrukturbereich in der Nähe der Schächte.

Zum Vergleich wurde auch eine Modellierung für das Standortmodell SÜD mit dem Konzept der horizontalen Streckenlagerung (Jobmann & Lommerzheim 2015) durchgeführt um zunächst prinzipielle Unterschiede herauszustellen. Gemäß dem Einlagerungskonzept sind 17 Behälter in jeder Strecke eingelagert. Ansonsten ist das Grubengebäude analog aufgebaut.

Abb. 4.1: Konzept für die vertikale Bohrlochlagerung im Standortmodell NORD (Lommerzheim & Jobmann 2015)

Es wurden 3D-Modellrechnungen durchgeführt, um abzuschätzen, mit welchem Druckaufbau in der Strecke und am Schachtverschluss zu rechnen ist. Die Gasbildungsrate wurde gemäß den Abschätzungen in Kapitel 2 angenommen. Mit den Modellierungen sollten u. a. folgende Fragen beantwortet werden:

1. Wann werden die Strecken vollständig wassergesättigt sein mit und ohne Gasbildung?



2. Hat die teil-entsättigte Kontur der Strecke (vornehmlich die ALZ) eine signifikante Auswirkung auf die Dauer der Aufsättigung der Strecke?
3. Wie sind der Druckaufbau und die Dauer der Aufsättigung am unteren Ende des Schachtverschlusses mit und ohne Nutzung des Infrastrukturbereiches als Gasspeicher?

Die Berechnungen wurden unter isothermen Bedingungen (25°C) durchgeführt. Der hydrostatische Druck wurde mit 8,2 MPa und der lithostatische Druck mit 20 MPa angenommen.

#### 4.1 Modellierung einer Einlagerungsstrecke

##### 4.1.1 Standortmodell NORD

Um zunächst das Systemverständnis zu verbessern, wurde als erstes ein einfaches Modell mit nur einer Einlagerungsstrecke und mit 12 Bohrlöchern und einem sich anschließenden Querschlag modelliert. Am Ende des Querschlags wurde ein Dichtelement im Modell platziert, das einen einfachen Streckenverschluss repräsentiert (Lommerzheim & Jobmann 2015).

Die Einlagerungsbohrlöcher haben einen Durchmesser von 1,5 m und eine Länge von 28 m. Die Einlagerungsstrecke hat eine Länge von 390 m und einen Querschnitt von 20 m<sup>2</sup>. Hierbei handelt es sich um eine vereinfachte Annahme, um auch das im folgenden Unterkapitel beschriebene Modell SÜD mit der gleichen Geometrie berechnen zu können. Damit ergibt sich ein Streckenvolumen von 7800 m<sup>3</sup>. Der Querschlag hat ebenfalls eine Länge von 390 m aber einen Querschnitt von 40 m<sup>2</sup>. Dieser Querschnitt wurde als quadratisch angenommen mit einer Kantenlänge von 6,32 m. Aus den genannten Maßen ergeben sich aufgerundet folgende Abmessungen des Modells (vgl. Abb. 4.2a,b): x = 1 260 m, y = 584 m, z = 500 m

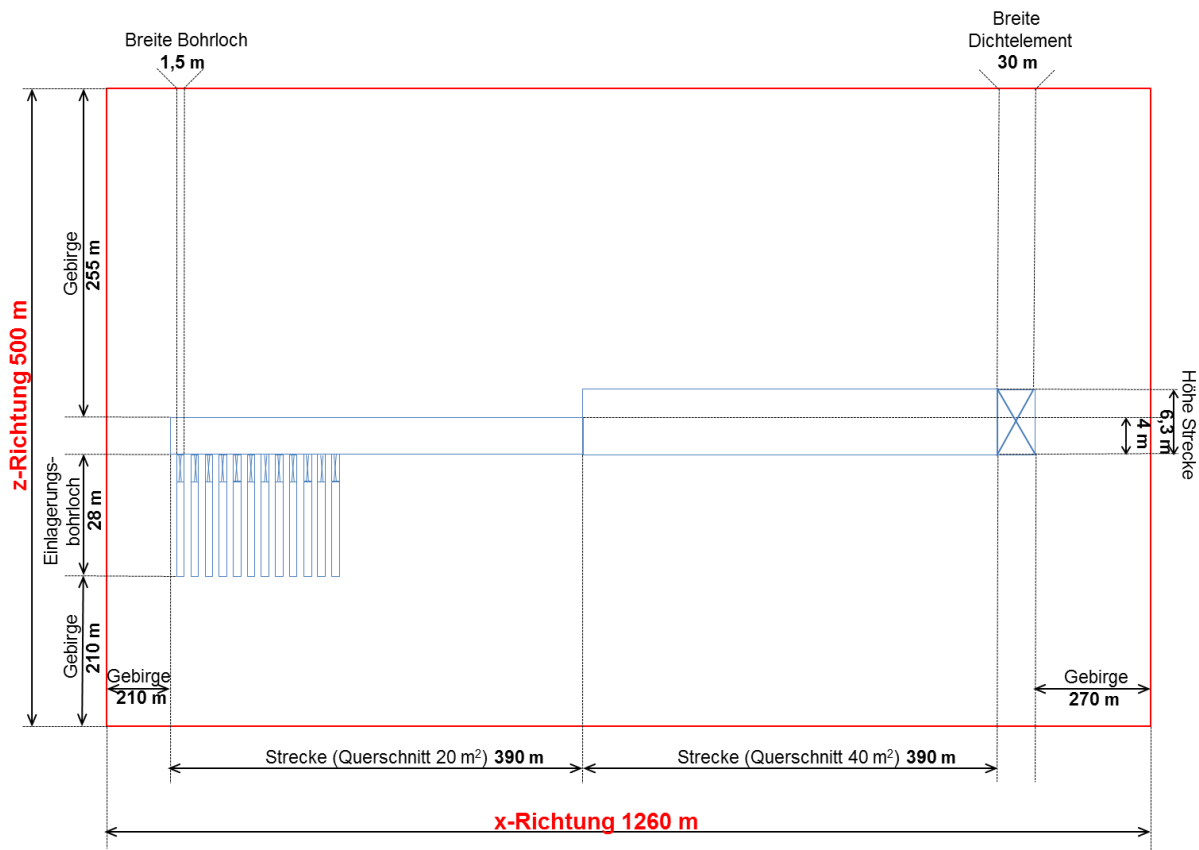


Abb. 4.2(a): Modellgebiet (Standortmodell NORD), Schnitt in der x-z-Ebene, nicht maßstabsgerecht

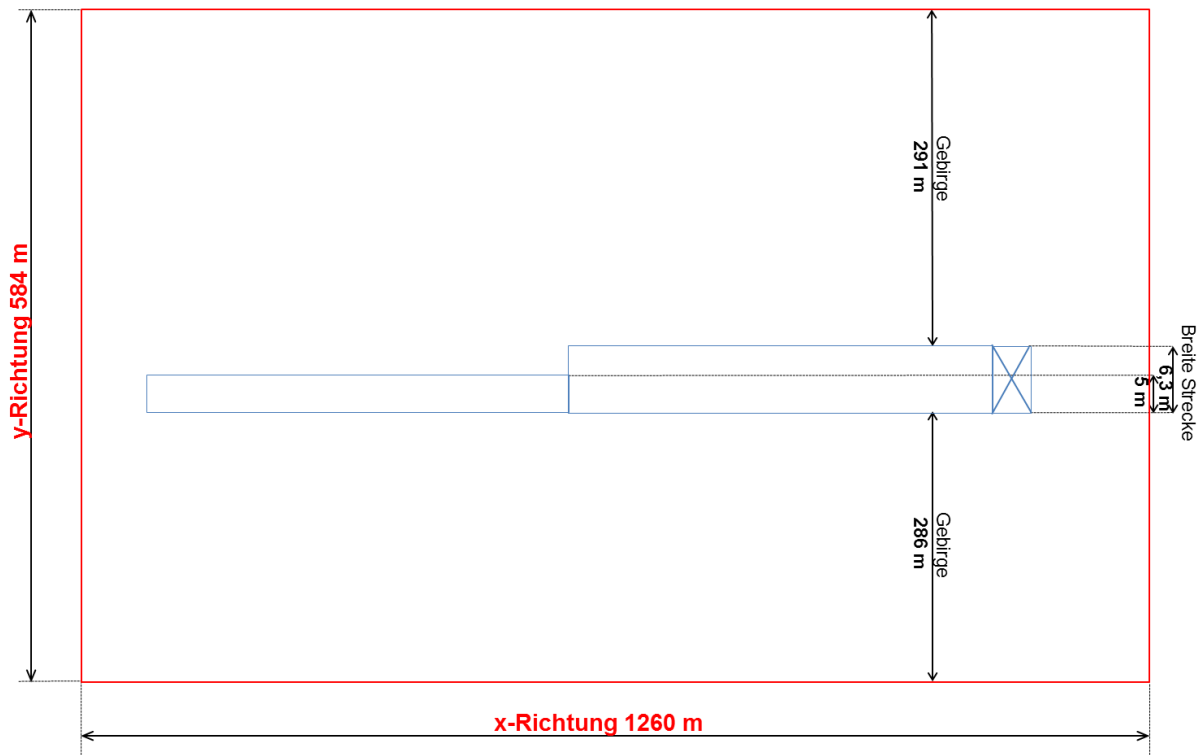


Abb. 4.2 (b): Modellgebiet (Standortmodell NORD), Schnitt in x-y-Ebene, nicht maßstabsgerecht

Das Modellgebiet wurde durch insgesamt 71 280 Modellzonen (Elementen) diskretisiert (Abb. 4.3). In der Nähe der Strecken und der Bohrlöchern wurde das Modellgebiet verfeinert diskretisiert, um vor allem den hydraulische Kontakt mit dem Wirtsgestein genauer zu erfassen.

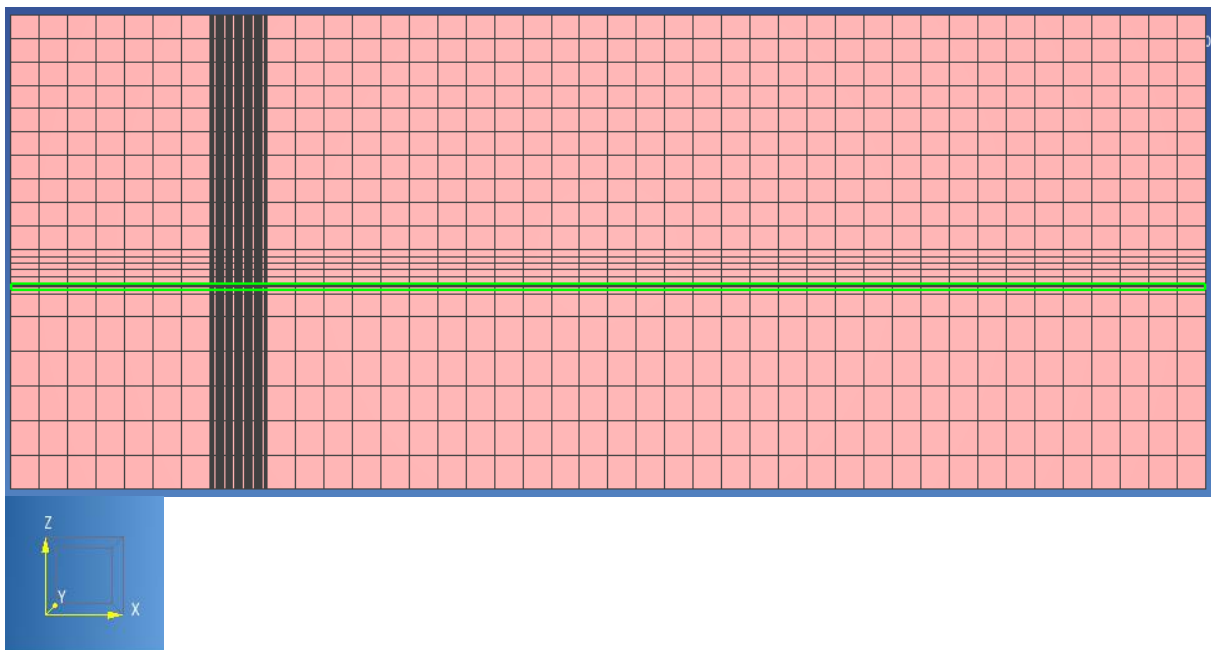


Abb. 4.3: TOUGH2-Modellnetz mit feiner Diskretisierung im Strecken- (grün) und Bohrlochbereich



### 4.1.2 Standortmodell SÜD

Im Standortmodell SÜD ist für ausgediente Brennelemente die horizontale Streckenlagerung von Pollux-3 Behältern vorgesehen. Im Modell fungieren der Einfachheit halber nur sechs Zonen innerhalb der Einlagerungsstrecke als Quellen für die Gasbildung. Ein Schnitt des Modellgebietes in der x-z-Ebene ist in Abb. 4.4 gezeigt. Die Geometrien der Einlagerungsstrecke und des Querschlags entsprechen denen im Modell NORD. Die Gasbildungsrate, die in Summe der von 17 Behältern entspricht, die für die Einlagerung in einer Strecke vorgesehen sind, wird auf die sechs Zonen gleichmäßig verteilt.

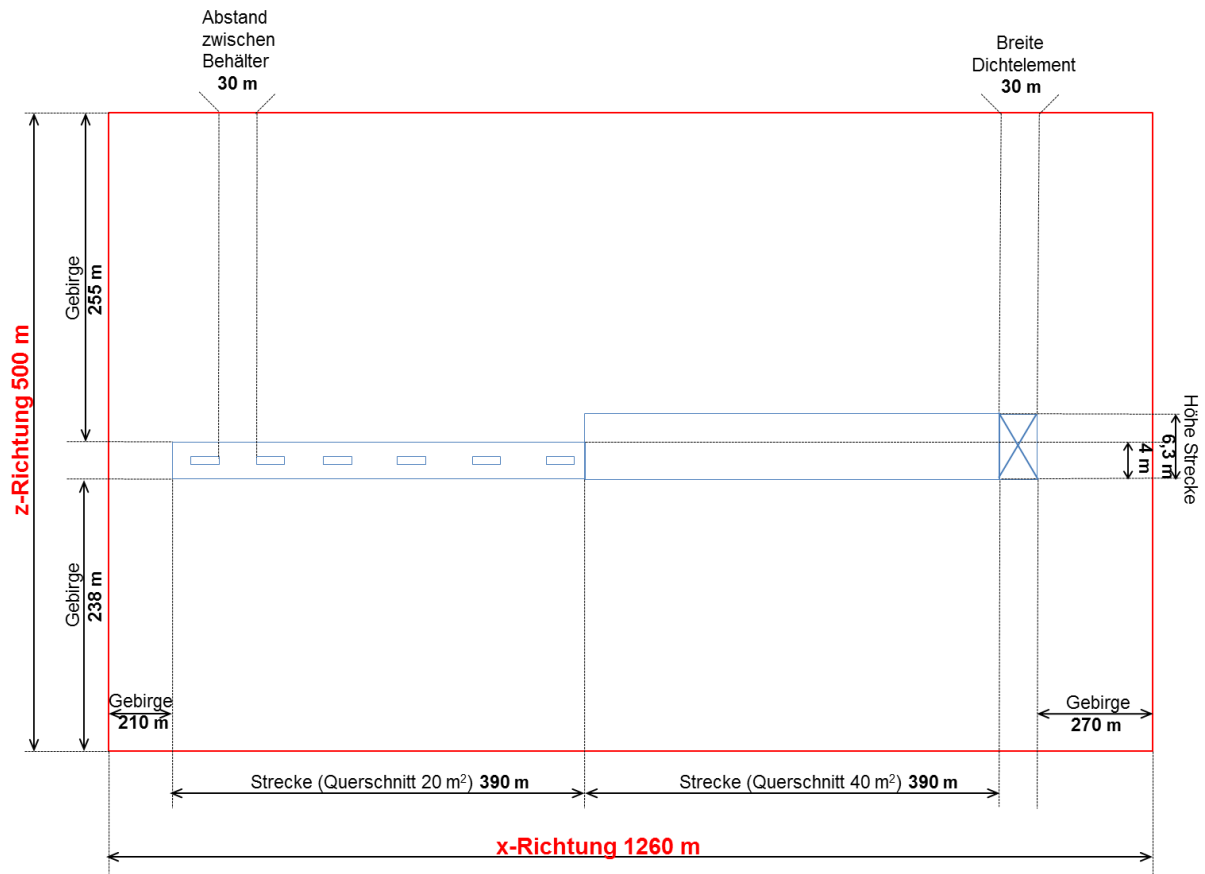


Abb. 4.4: Modellgebiet (Standortmodell SÜD): Schnitt in der x-z-Ebene

### 4.1.3 Anfangsbedingungen

Das Wirtsgestein bzw. die Tongesteinselemente sind am Anfang voll wassergesättigt. Aus numerischen Gründen wurde ein Gasanteil von 0,0001 im wassergefüllten Porenraum angenommen. Der hydrostatische Druck wird gemäß der überlagernden Wassersäule berechnet. Demzufolge herrscht an der Modellunterkante ein hydraulischer Druck von 10,47 MPa und an der Modelloberkante ein Druck von 5,33 MPa. Die Modellzonen der Einlagerungsstrecke, der Bohrlöcher (Modell NORD) und des Querschlags werden zu Beginn mit Atmosphärendruck (0,1 MPa) belegt (Abb. 4.5). Als Ausnahme wurde für einen Rechenfall in der ALZ bzw. der konturnahen entsättigten Zone eine Anfangswassersättigung von 50% angenommen. Mit diesem Fall sollte der Einfluss der Entsättigung abgeschätzt werden (Abb. 4.6). Die Elemente der Strecken und der Bohrlöchern sind überwiegend gasgesättigt (20% Anfangswassersättigung).

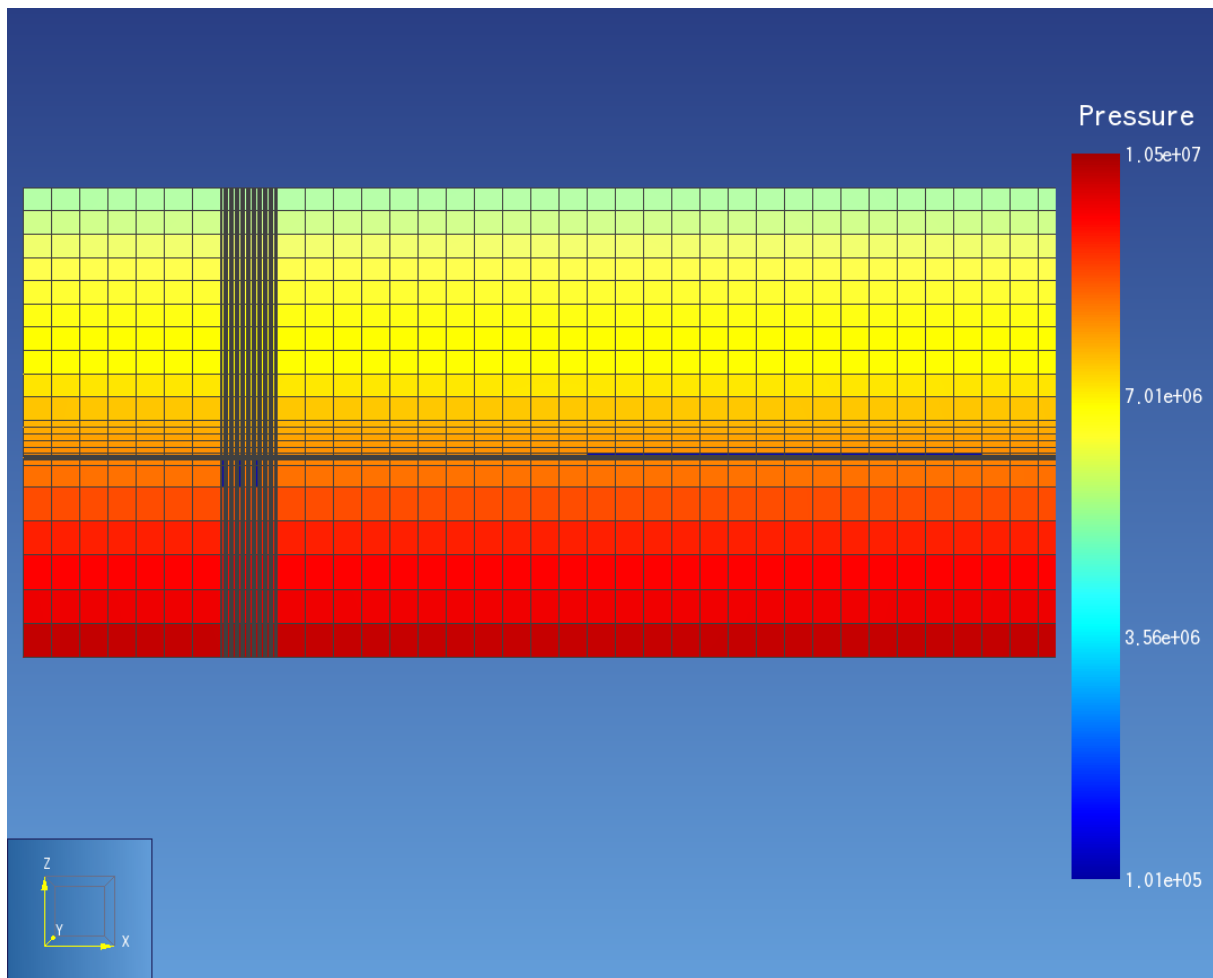


Abb. 4.5: Anfangsbedingung für das Standortmodell NORD: hydraulischer Druck im Vertikalschnitt. In den Strecken und in den Bohrlöchern herrscht Atmosphärendruck

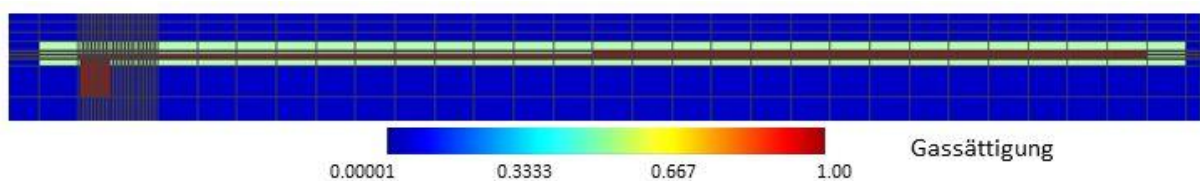


Abb. 4.6: Anfangsbedingung zur Gassättigung für den Rechenfall mit einer 50%igen Wassersättigung des konturnahen Bereiches

#### 4.1.4 Randbedingungen

Alle Randelemente oben und unten sind auf den Anfangsdruck fixiert (vgl. rote Elemente in Abb. 4.7). In diese Elemente können entsprechend dem hydraulischen Gradienten Fluide zu- oder abfließen (Dirichlet-Randbedingungen).

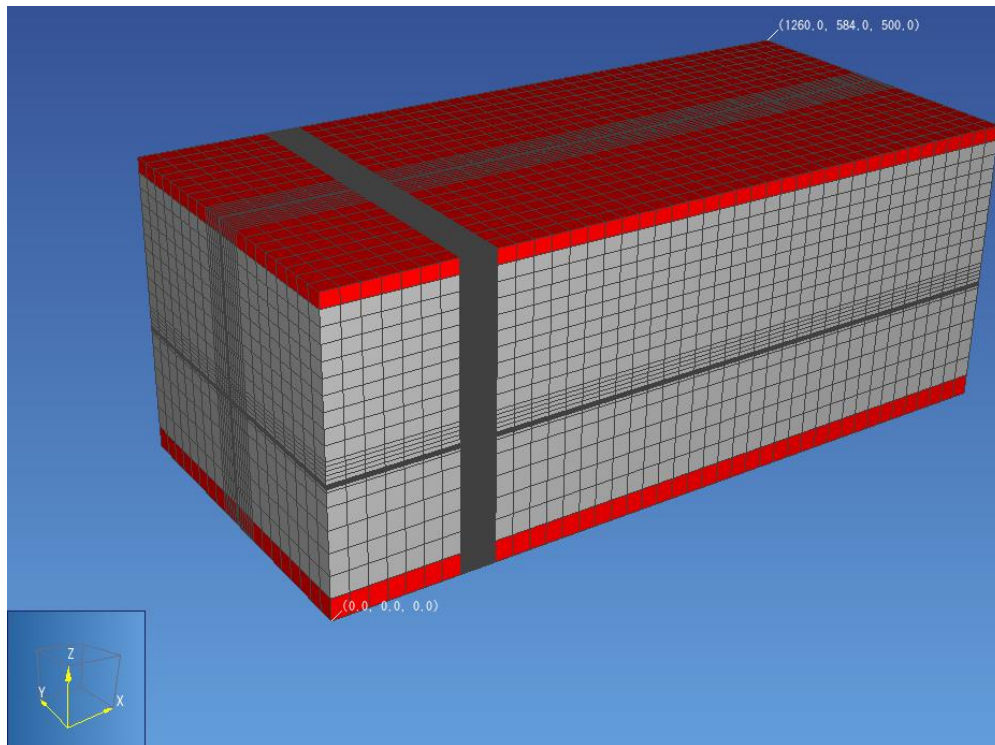


Abb. 4.7: Modellrandbedingung: rote Zonen: hydraulischer Druck unveränderlich, graue Zonen: Neumann-Randbedingung mit Fluss = 0 (kein Fluidaustausch mit der Umgebung)

In die Quellzonen der Einlagerungsbohrlöcher im Standortmodell NORD bzw. der Einlagerungsstrecke im Standortmodell SÜD wurden die in Kapitel 2 abgeschätzten Gasbildungsrate vorgegeben. Zur Veranschaulichung sind sie in Abbildung 8 dargestellt (die Rate wird für ein Bohrloch im Modell Nord und für einen Behälter im Modell Süd präsentiert).

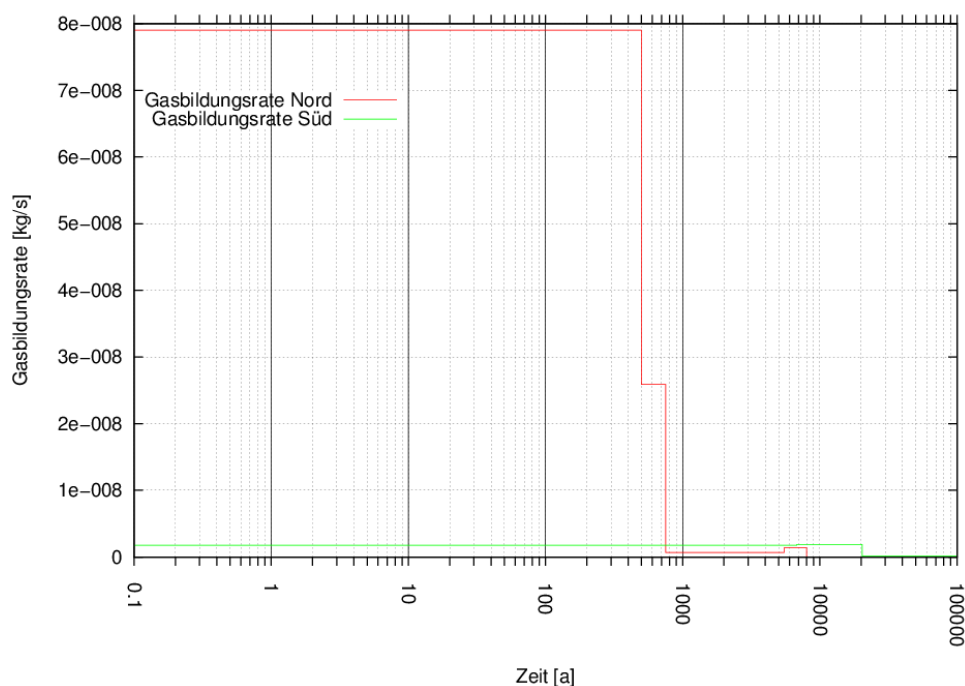


Abb. 4.8: Gasbildungsrate pro Einlagerungsbohrloch mit drei Behältern (Standortmodell NORD) und pro einen Behälter (Standortmodell SÜD). Siehe auch Abb. 2.1.

## 4.2 Modellierung der Einlagerungsfelder

### 4.2.1 Modellgeometrie Standortmodell NORD

Um das ganze Grubengebäude mit 3500 Einlagerungsbohrlöchern im Modell zu erfassen, wurde ein vereinfachtes Modell mit einer Strecke, die mit dem Infrastrukturbereich und mit dem Schacht direkt verbunden ist, erstellt. Die 16 Elemente unterhalb der Strecke fassen die Einlagerungslagerfelder zusammen. Das Volumen aller Strecken in den 32 Einlagerungsfeldern wurde unter Verwendung eines Volumenfaktors von 115,34 auf 16 Modellzonen gleichmäßig verteilt. Unterhalb dieser Einlagerungsfelder sind weitere 16 Modellzonen platziert, die als Gasquellen mit der Gasbildungsrate von 3500 Einlagerungsbohrlöchern fungieren. Das Volumen der 3500 Einlagerungsbohrlöcher wurde auf die 16 Modellzonen gleichmäßig verteilt unter Verwendung eines Volumenfaktors von 5,94. Die Summe der Gasbildungsrate der 3500 Einlagerungsbohrungen wurde ebenfalls gleichmäßig auf die 16 Modellzonen verteilt. Für den Infrastrukturbereich wurde gemäß Lommerzheim & Jobmann (2015) ein Volumen von 230 000 m<sup>3</sup> angenommen. Das Modellgebiet inklusive der Abmessungen ist in Abb. 4.9a und 4.9b gezeigt.

Das Modellgebiet wurde durch 127 530 Elemente diskretisiert. In Schacht- und Streckennähe wurde das Modellgebiet verfeinert diskretisiert (Abb. 4.10).

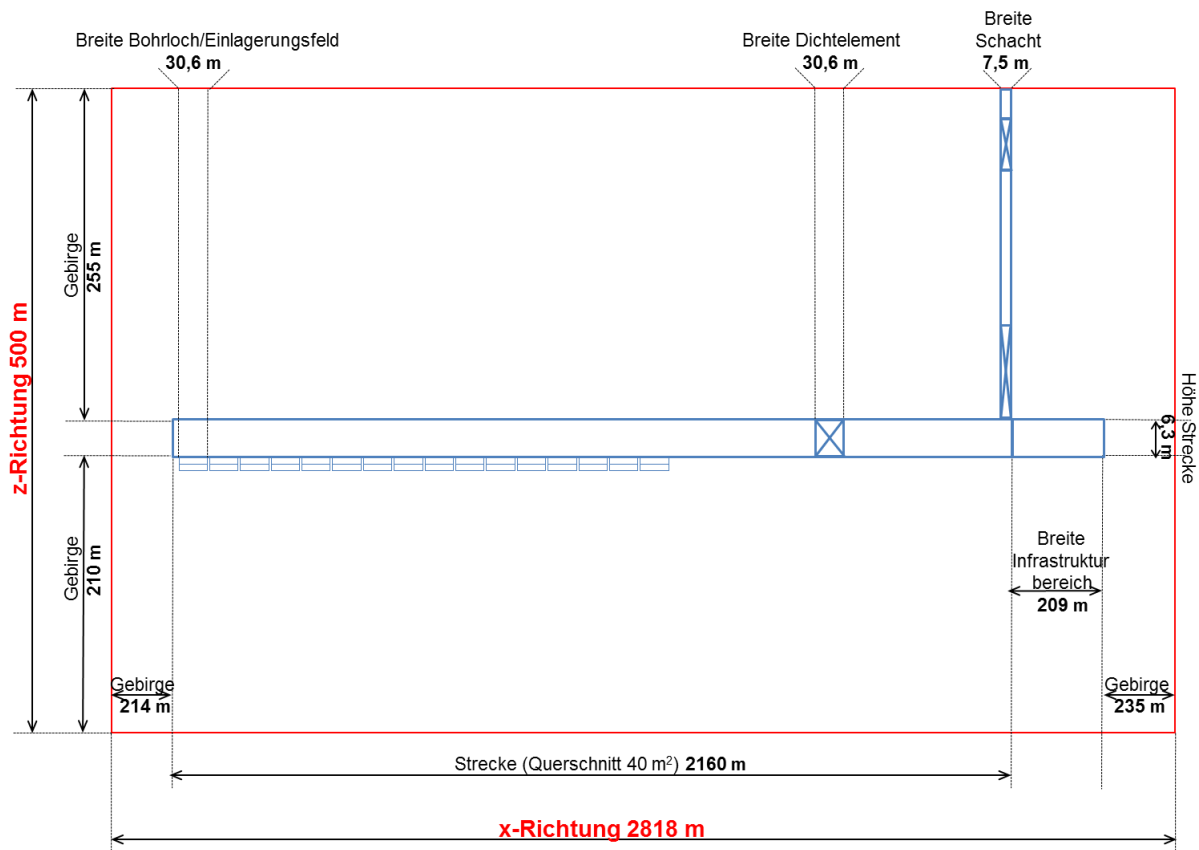


Abb. 4.9 (a): Modellgebiet (x-z-Ebene) mit Illustration der Elemente, die die Einlagerungsfelder repräsentieren, nicht maßstabsgerecht

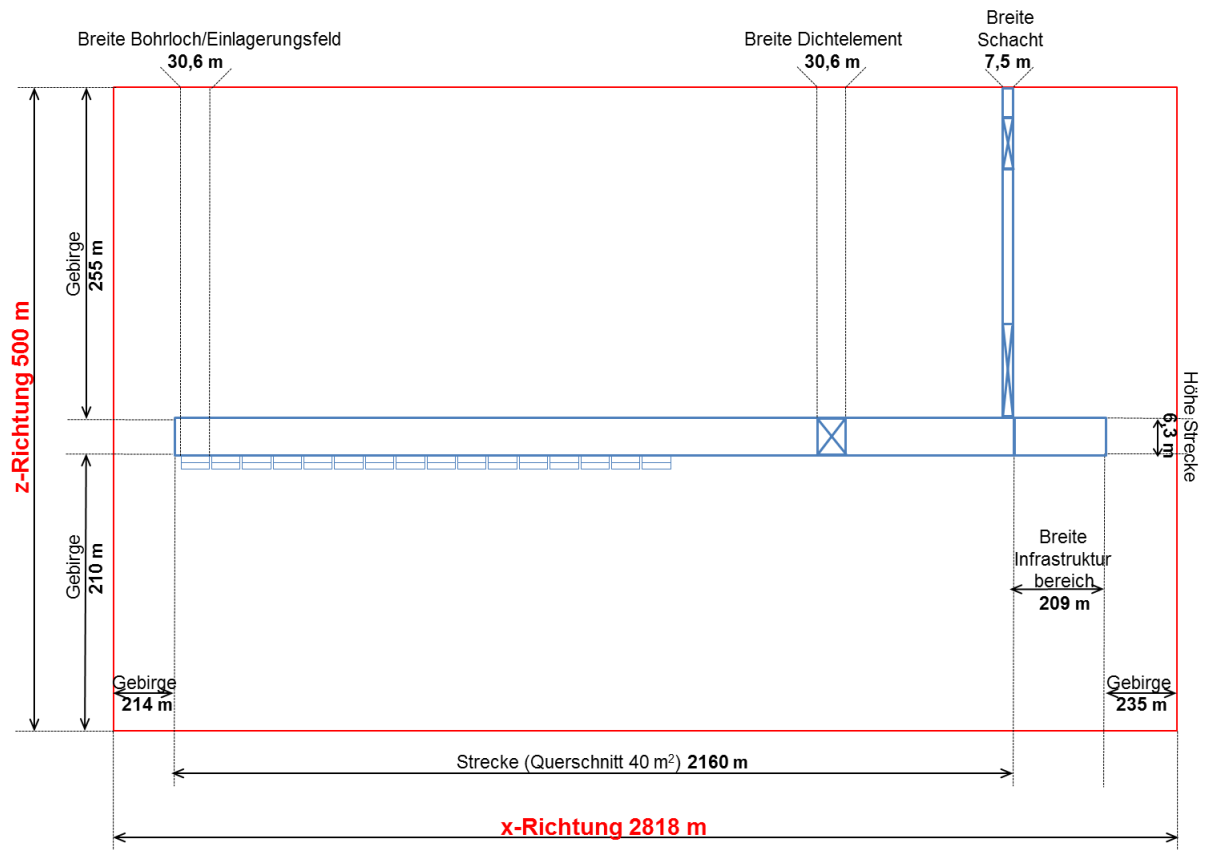


Abb. 4.9 (b): Modellgebiet (x-y-Ebene), nicht maßstabsgerecht

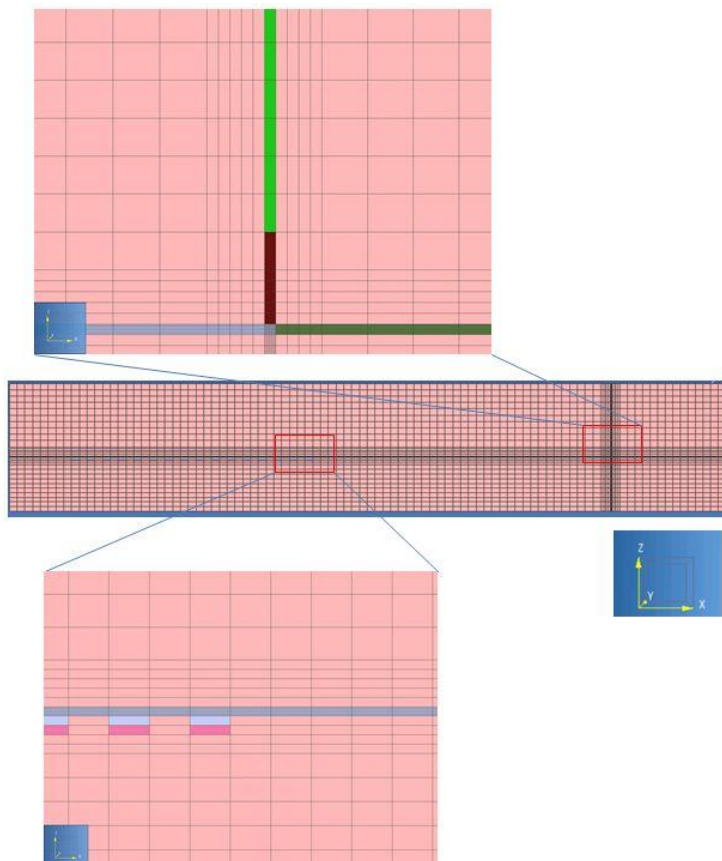


Abb. 4.10: TOUGH2-Modellnetz mit verfeinerter Diskretisierung in Strecken- und Schachtnähe.

#### 4.2.2 Anfangsbedingungen

Die Anfangsbedingungen werden analog zu Kapitel 4.1.3 festgesetzt. Die Elemente der Einlagerungsstrecke, der Bohrlöchern und des Querschlag werden zu Beginn mit Atmosphärendruck (0,1 MPa) belegt (Abb. 4.11).

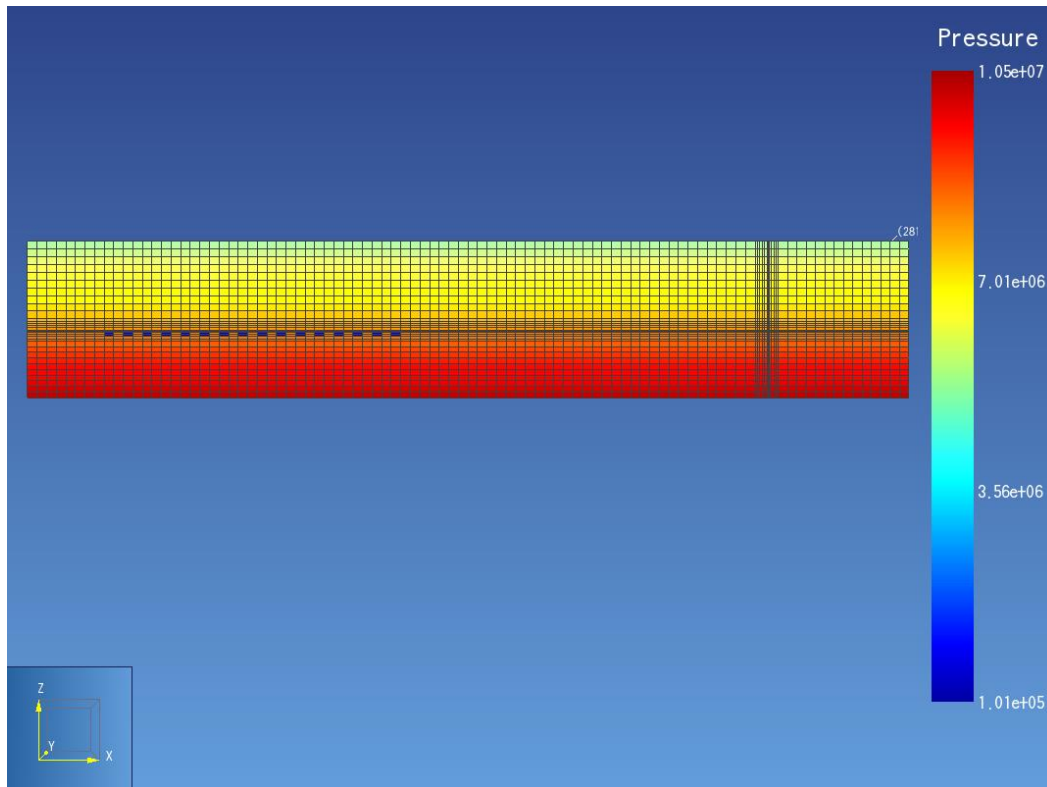


Abb. 4.11: Anfangsbedingung: hydraulischer Druck im Vertikalschnitt, in allen Hohlräumen herrscht Atmosphärendruck

#### 4.2.3 Randbedingungen

Alle Randelemente sind unten und oben auf den Anfangsdruck fixiert (vgl. rote Elemente in Abb. 4.12). In diese Elemente können entsprechend dem hydraulischen Gradienten Fluide zu- oder abfließen (Dirichlet-Randbedingungen). Die Ausnahme sind die Elemente am oberen Modellrand, die sich in Schachtnähe befinden, im Umkreis von ca. 100 m (vgl. grauer Bereich an der Modelloberkante in Abb. 4.12). Diese Elemente sind mit keiner Randbedingung belegt, was einer Neumann-Randbedingung mit einem Fluss von Null gleichkommt. Dies geschieht aus modelltechnischen Gründen, um den Wiederaufsättigungsprozess in der Schachtumgebung besser berechnen zu können.



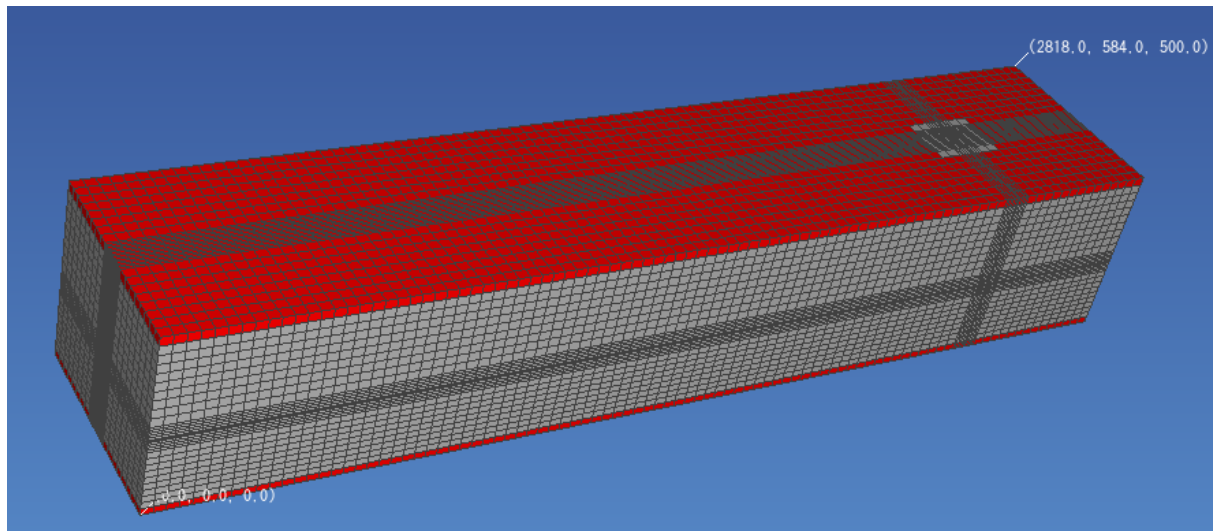


Abb. 4.12: Modellrandbedingung: rote Zonen: hydraulischer Druck unveränderlich, graue Zonen: Neumann-Randbedingung mit Fluss = 0 (kein Fluidaustausch mit der Umgebung)

### 4.3 Materialeigenschaften

Die Fluid- und Materialeigenschaften wurden aus Nowak & Maßmann (2013) entnommen.

Bei einem Salzgehalt von 150 kg/m<sup>3</sup> und einer Temperatur von 25°C wird die Dichte der Salzlösung mit 1 095 kg/m<sup>3</sup> und die Viskosität mit 1,28 mPa·s angenommen. Jedoch kann in den EOS-Modulen 3 und 5 nur das Fluid Wasser simuliert werden, das eine etwas geringere Viskosität bei gleicher Temperatur aufweist. Im Rahmen der sonstigen Modellunsicherheiten wird dies als vernachlässigbar angenommen.

Für das Wirtsgestein wird der Durchlässigkeitsbeiwert  $k_f$  innerhalb des in ANSICHT projizierten Tiefenbereiches von 600 – 800m mit horizontal  $10^{-12}$  m/s und vertikal  $10^{-13}$  m/s angesetzt. Daraus ergibt sich eine Permeabilität von:

$$k = k_f \cdot (\mu / (\rho \cdot g)) = 10^{-12} \text{ m/s} \cdot (0,00128 \text{ Pa} \cdot \text{s} / (1\,095 \text{ kg/m}^3 \cdot 9,81 \text{ m/s})) = 1,2 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$$

bzw.  $k_f = 1,2 \cdot 10^{-20}$  m<sup>2</sup> für die vertikale Durchlässigkeit.

Die Strecke ist mit dem Versatz (aufbereitetes Ausbruchmaterial) verfüllt. Für die Dichtelemente wurde das Material Bentonit angenommen. Der Infrastrukturbereich und die Füllsäulen des Schachtes sind mit Schotter verfüllt. Die Porosität des Schotters wird mit 35% angesetzt. Daraus ergibt sich ein Speichervolumen im Infrastrukturbereich von ca. 105 000 m<sup>3</sup>. In Tab. 4.1 sind die Materialeigenschaften, die in der Modellierung verwendet wurden, aufgelistet.

Tab. 4.1: Verwendete Materialparameter in den Modellierungen

Material	Permeabilität $k$ horizontal und vertikal [m <sup>2</sup> ]	Effektive Porosität $n$ [-]
Gebirge	horizontal: $1,2 \cdot 10^{-19}$ / vertikal: $1,2 \cdot 10^{-20}$	0,05
Versatz Strecke	$10^{-15}$	0,20
Dichtelement	$10^{-17}$	0,05
Buffer Einlagerungsbohrloch	$10^{-19}$	0,36
Versatz Infrastrukturbereich	$10^{-13}$	0,35
Versatz Schacht	$10^{-13}$	0,35

*Zweiphasenflussparameter*

In TOUGH2 wird die Zweiphasenströmung in porösen Medien durch das Einführen eines Kapillardruckes und einer relativen Permeabilität für die Gasphase und für die Flüssigkeitsphase berücksichtigt. Zur Berechnung der Fließgeschwindigkeiten der Phasen wird das Darcy-Gesetz verwendet. Bei der Analyse des Zweiphasenflusses in TOUGH2 sind mehrere Modelle für die relative Permeabilität und den Kapillardruck vorhanden. In Tabelle 2 und in Tabelle 3 sind die verwendeten Relative Permeabilitäts-Sättigungs-Funktionen und Kapillardruck-Sättigungs-Funktionen mit eingegebenen Parametern dargestellt. In Abweichung von Nowak & Maßmann (2013) wurden die Gebirgsparameter nach Bennion & Bachu (2006) gewählt, da insbesondere die Verwendung kleiner numerischer Werte für die residualen Sättigungen (statt genau Null) sich numerisch stabilere Rechenläufe erzielen ließen.

Tab. 4.2: Relative Permeabilitäts-Sättigungs-Funktion

Material	Funktion	Parameter der Permeabilitäts-Sättigungs-Funktion			
		$\lambda$ [-]	$S_{Wr}$ [-]	$S_{Ws}$ [-]	$S_{Gr}$ [-]
Gebirge	Van Genuchten nach Bennion & Bachu (2006)	0,55	0,001	0,9999	$1 \cdot 10^{-4}$
Versatz Strecke					
Dichtelement	Van Genuchten nach Yildizdag et al. (2008)	0,72	0,095	1	0
Buffer					
		$S_{Wmin}$ [-]	$S_{Wmax}$ [-]	$S_{Gmin}$ [-]	$S_{Gmax}$ [-]
Versatz Infrastrukturbereich	Lineare Funktion	0,02	0,99	0,02	1,0
Versatz Schacht					

( $S_{Wr}$  = residuale Wassersättigung,  $S_{Gr}$  = residuale Gassättigung,  $S_{Ws}$  = max. Wassersättigung,  $\lambda$  = van Genuchten Parameter  $1-1/n$ )

Tab. 4.3: Kapillardruck-Sättigungs-Funktion

Material	Funktion	Parameter der Kapillardruck-Sättigungs-Funktion				
		$\lambda$ [-]	$S_{Wr}$ [-]	$S_{Ws}$ [-]	$P_{max}$ [Pa]	$1/P_0$ [1/Pa]
Gebirge	Van Genuchten nach Bennion & Bachu (2006)	0,55	0,001	0,9999	$1 \cdot 10^7$	$6,67 \cdot 10^{-6}$
Versatz Strecke		0,55	0,04	0,9999	$7,41 \cdot 10^6$	$1,0 \cdot 10^{-5}$
Dichtelement	Van Genuchten nach Yildizdag et al. (2008)	0,363	0,0011	1	$9 \cdot 10^6$	$1,0 \cdot 10^{-7}$
Buffer						
Versatz Infrastrukturbereich	Kein Kapillardruck angenommen					
Versatz Schacht						

( $S_{Wr}$  = residuale Wassersättigung,  $S_{Ws}$  = max. Wassersättigung,  $\lambda$  = van Genuchten Parameter  $1-1/n$ ,  $P_{max}$  = max. Kapillardruck,  $1/P_0$  = scheinbarer Gaseindringdruck)



## 4.4 Ergebnisse

### 4.4.1 Modell mit einer Einlagerungsstrecke (NORD)

#### 4.4.1.1 Einfluss von Gasbildung auf Druckaufbau und Wassersättigung in der Strecke

Als erstes sollte abgeschätzt werden, wie lange es dauert, bis eine Einlagerungsstrecke und auch ein Querschlag voll aufgesättigt sind und wie sich der Druckaufbau in den Strecken entwickelt. Zu diesem Zweck werden Rechenfälle mit und ohne korrosionsbedingter Gasbildung durchgeführt. Jede der Strecken ist in vertikaler Richtung, also in ihrer Höhe, mit fünf Modellzonen diskretisiert. Betrachtet werden jeweils die oberen Modellzonen sowohl in der Einlagerungsstrecke als auch im Querschlag (Abb. 4.13). Bei den Berechnungen wurde beobachtet, dass sich die Elemente in Sohlennähe geringfügig eher aufsättigen als im Firstbereich. Es wird davon ausgegangen, dass neben den eigentlich treibenden Kräften „Druckgradient“ und Kapillardruck“ auch die Schwerkraft einen geringfügigen Einfluss hat.

Das heißt, eine Restgassättigung wird im Modell eher im Firstbereich erwartet. In der Realität muss dies nicht zwingend der Fall sein, da sich im Versatz quellfähige Tone befinden, die durch eindringende Feuchtigkeit zum Quellen angeregt werden und durch Verringerung der Durchlässigkeit sukzessive eine weitere Flüssigkeitsnachfuhr vermindern. Dieser Quellprozess wird aber im Modell nicht abgebildet, so dass die berechneten Zeitdauern für die Aufsättigung unterschätzt werden können. In der Realität wird es ggf. länger dauern. In Abb. 4.13 sind zwei Modellzonen mit Dunkelblau und Rot markiert. Dabei handelt es sich um die Modellzonen, für die die Ergebnisse zur Druck- und Sättigungsentwicklung geplottet wurden (Abb. 4.14).

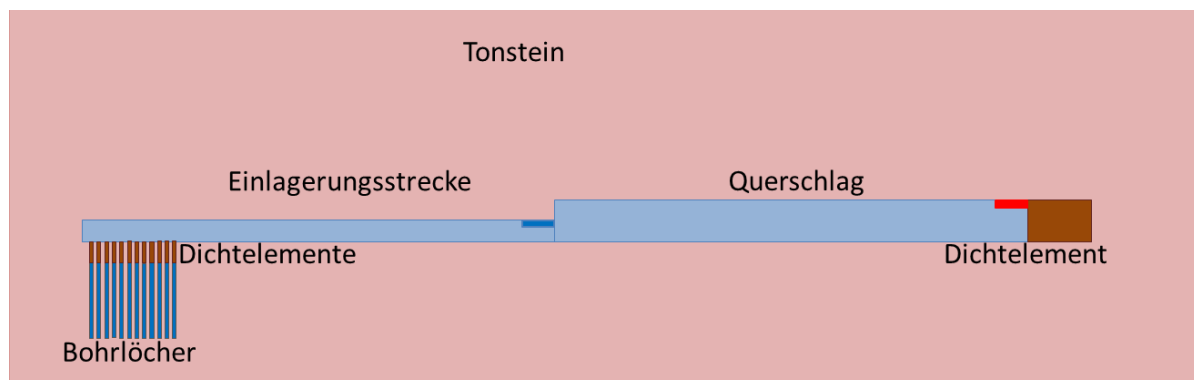


Abb. 4.13: Schematische Darstellung für das Modell mit einer Einlagerungsstrecke und einem Querschlag. Das dunkelblaue und das rote Element werden jeweils ausgewertet (nicht maßstabsgerecht)

Im Rechenfall ohne Berücksichtigung einer Gasbildung beginnt ein signifikanter Fluidruckaufbau sowohl in der Einlagerungsstrecke als auch im Querschlag nach etwa 300 Jahren (Abb. 4.14 oben). Vollständig ausgebildet ist der Druckaufbau nach etwa 700 Jahren. Berücksichtigt man eine korrosionsbedingte Gasbildung in den Einlagerungsbohrungen, so beginnt ein signifikanter Druckaufbau schon nach weniger als 100 Jahren. Der Verlauf der Druckaufbaukurve ist deutlich flacher, d. h. längst nicht so scharf wie ohne Berücksichtigung einer Gasbildung. Der Druckaufbau ist hier nach etwas mehr als 1 000 Jahren im Wesentlichen abgeschlossen. Der hydrostatische Druck wird kaum überschritten.

Signifikante Unterschiede im Druckaufbau zwischen den beiden Strecken mit unterschiedlichen Querschnitten sind nicht erkennbar. Das bedeutet, dass trotz des größeren Volumens des Querschlages sich dieser etwa gleich schnell aufsättigt, wie die Einlagerungsstrecke. Das wird auch bei Betrachtung des Sättigungsverlaufes in Abb. 4.14 unten deutlich. Das ist möglicherweise dadurch zu erklären, dass bei dem größeren Querschnitt des Querschlages auch die Mantelfläche der zylindrischen Strecke deutlich größer ist. Und da der Zulauf in die

Strecken über die gesamte Mantelfläche erfolgt, herrscht im Querschlag auch ein mengenmäßig größerer Zulauf.

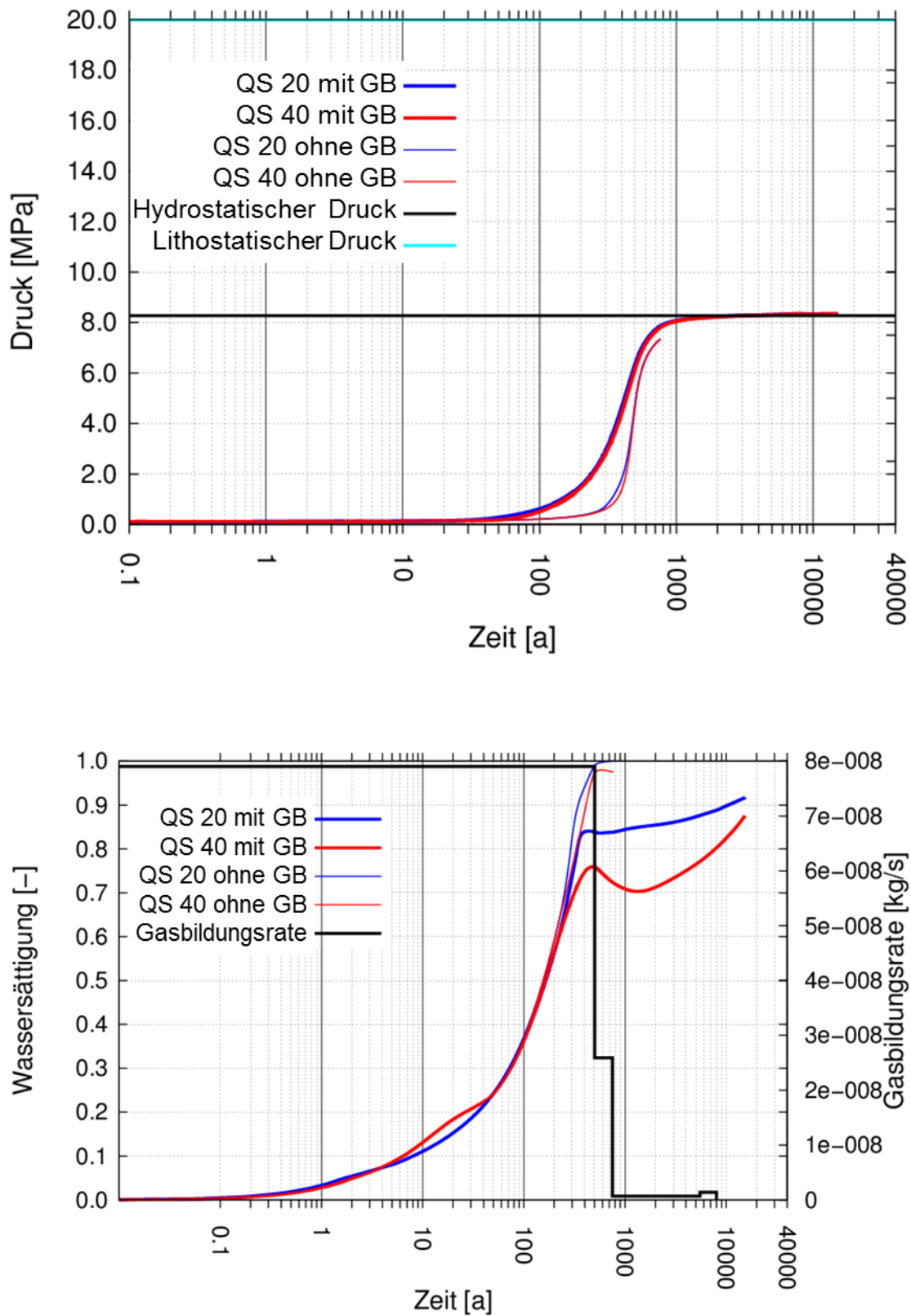


Abb. 4.14: Porenwasserdruck und Wassersättigung im Firstbereich in den Strecken mit einem Querschnitt von 20 m<sup>2</sup> (Einlagerungsstrecke) und mit einem Querschnitt von 40 m<sup>2</sup> (Querschlag) mit und ohne Berücksichtigung einer Gasbildung

Analog zum Druckaufbau ist auch beim Sättigungsverlauf für den Rechenfall ohne Berücksichtigung einer Gasbildung das Maximum nach etwa 700 Jahren erreicht. Bei der Strecke mit dem größeren Querschnitt verbleibt ein geringfügiges Gaspolster, das sich gemäß dem Kurvenverlauf am Ende anscheinend noch leicht vergrößert. Das liegt vermutlich an der Gasbewegung innerhalb der Strecke und eine Akkumulation in dem Beobachtungselement.

Betrachtet man allerdings die Kurven, die sich ergeben, wenn eine Gasbildung berücksichtigt wird, so wird deutlich, dass eine vollständige Wassersättigung in dieser Berechnung innerhalb von 20 000 Jahren nicht erreicht wird. In der Einlagerungsstrecke wird ein erstes Maximum der Wassersättigung bereits nach etwa 300 Jahren erreicht mit einem Wert von etwa 82%. Danach erfolgt zwar, wie aus Abb. 4.14 oben ersichtlich, ein weiterer Druckaufbau, aber die Wassersättigung steigt nur unmerklich weiter an und erreicht nach etwa 10 000 Jahren einen Werte von etwas mehr als 90%. Das heißt, dass sich hier ein Gaspolster bildet, das zum einen entweder langsam weiter komprimiert wird oder zum anderen in dem Wasser langsam entsprechend dem Druckaufbau in Lösung geht.

Einen ähnlichen Verlauf zeigt auch die Kurve für die Entwicklung der Wassersättigung in dem Querschlag. Unterschiede bestehen in der Höhe des ersten Maximums, das in diesem Fall bereits bei einem Wert von etwa 75% erreicht wird. Das Maximum wird nach etwa 500 Jahren erreicht. Anschließend sinkt die Wassersättigung wieder ab bevor sie sich nach etwas mehr als 10 000 Jahren wieder der Kurve für die Einlagerungsstrecke nähert. Die genannten Unterschiede sind der Tatsache geschuldet, dass das gebildete Gas einen deutlich weiteren Weg bis zum Beobachtungselement zurücklegen muss und dass die zu komprimierende bzw. zu lösende Gasmenge an dieser Stelle deutlich größer ist.

Insgesamt bedeutet das, dass nach etwa 500 Jahren eine freie Gasphase in der Größenordnung von ca. 25% in den Strecken vorhanden sein kann, die auch nach mehr als 10 000 Jahren immer noch in der Größenordnung von etwa 10% (Volumen) existiert. Eine solche freie Gasphase kann, neben der Lösung, als Transportmedium für Radionuklide zur Verfügung stehen.

#### 4.4.1.2 Vergleich verschiedener Gase

Um den Einfluss von unterschiedlichen Gasen auf den Druckaufbau und den Sättigungsverlauf zu untersuchen, wurde das bisher verwendete Gas „Wasserstoff“ (EOS-Modul 5) durch das Gasgemisch „Luft“ (EOS-Modul 3) ersetzt. Als Beobachtungselement und damit als Aufpunkt wird ein Element im Querschlag vor dem Dichteelement verwendet (rotes Element in Abb. 4.13). Die Ergebnisse der vergleichenden Berechnungen sind in Abbildung 4.15 dargestellt. Die Verhältnisse beim Druckaufbau (obere Grafik) und der Wassersättigung (untere Grafik) sind für die EOS5- und EOS3-Module prinzipiell vergleichbar. Lediglich in der Anfangsphase verzögert sich der Druckaufbau ein wenig. Dies ist durch die unterschiedlichen Löslichkeiten der beiden Gase zu erklären. Die Löslichkeit von Wasserstoff im Wasser beträgt 0,00155 g Gas pro kg Wasser bei einer Temperatur von  $T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$  und die Löslichkeit von Luft im Wasser beträgt 0,04 g Gas pro kg Wasser bei  $T=25\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Durch die höhere Löslichkeit von Luft im Wasser geht zunächst bei steigendem Druck mehr Gas in Lösung, bevor es durch Kompression zu einer Druckerhöhung kommt.

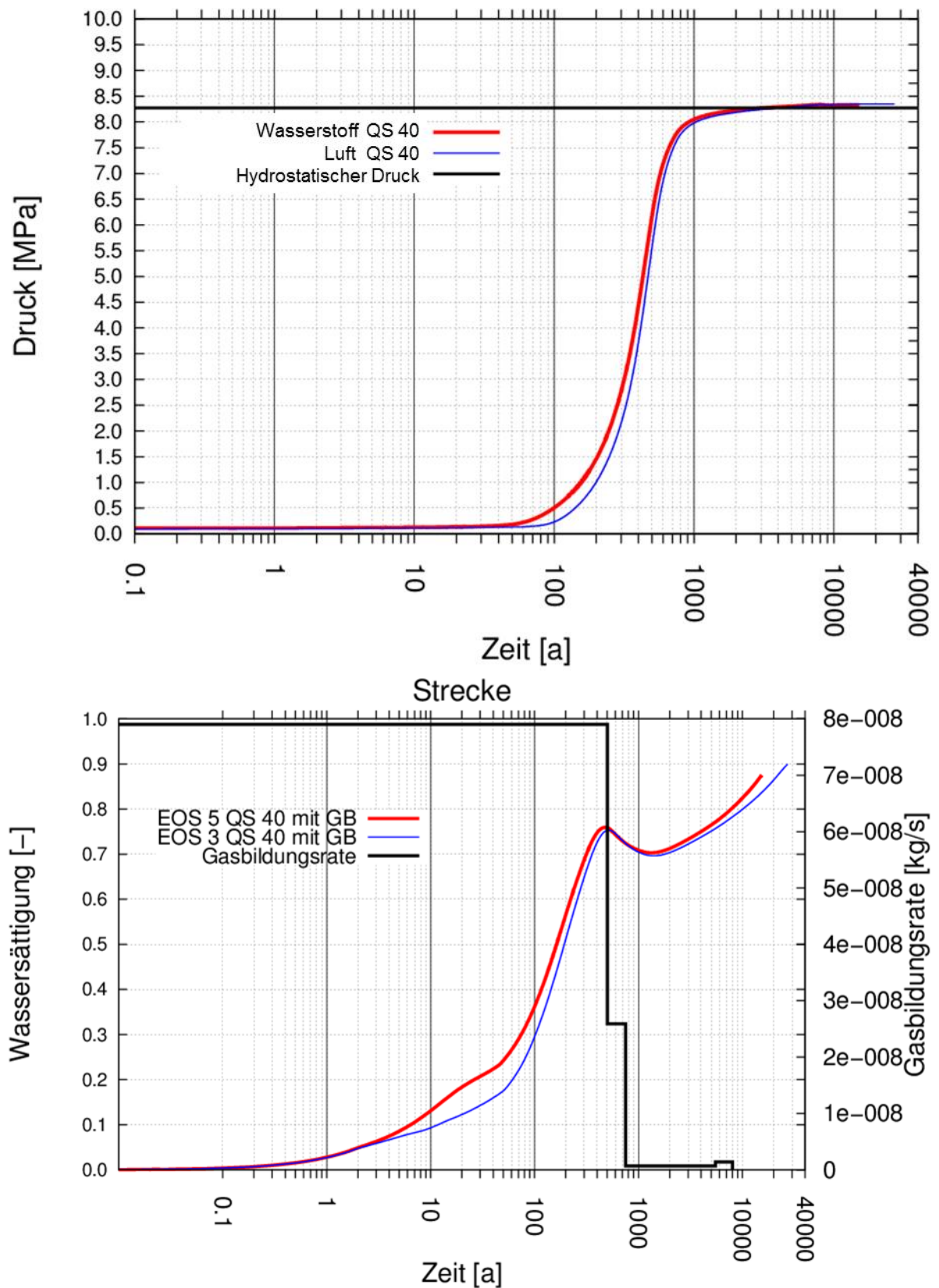


Abb. 4.15: Porenwasserdruck und Wassersättigung in der Strecke mit dem Querschnitt 40 m<sup>2</sup> unter Berücksichtigung einer Gasbildung mit EOS5 (Wasserstoff) und EOS3 (Luft)



#### 4.4.1.3 Einfluss einer teil-entsättigten Streckenkontur auf Druckaufbau und Wassersättigung (EOS3-Modul)

Im Rahmen einer weiteren Untersuchung wurde ein Rechenfall betrachtet, bei dem die Kontur der Strecke, also insbesondere die Auflockerungszone (ALZ) um die Strecken, mit lediglich 50% Wassersättigung angenommen wurde. Die Mächtigkeit der entsättigten Zone beträgt 7 m. Ziel war es, die Auswirkungen einer teil-entsättigten Saumzone auf Druckaufbau und Wassersättigung in der Strecke zu untersuchen (Abb. 6). Als Beobachtungselement und damit als Aufpunkt wird wieder das Element im Querschlag vor dem Dichtelement verwendet (rotes Element in Abb. 4.13).

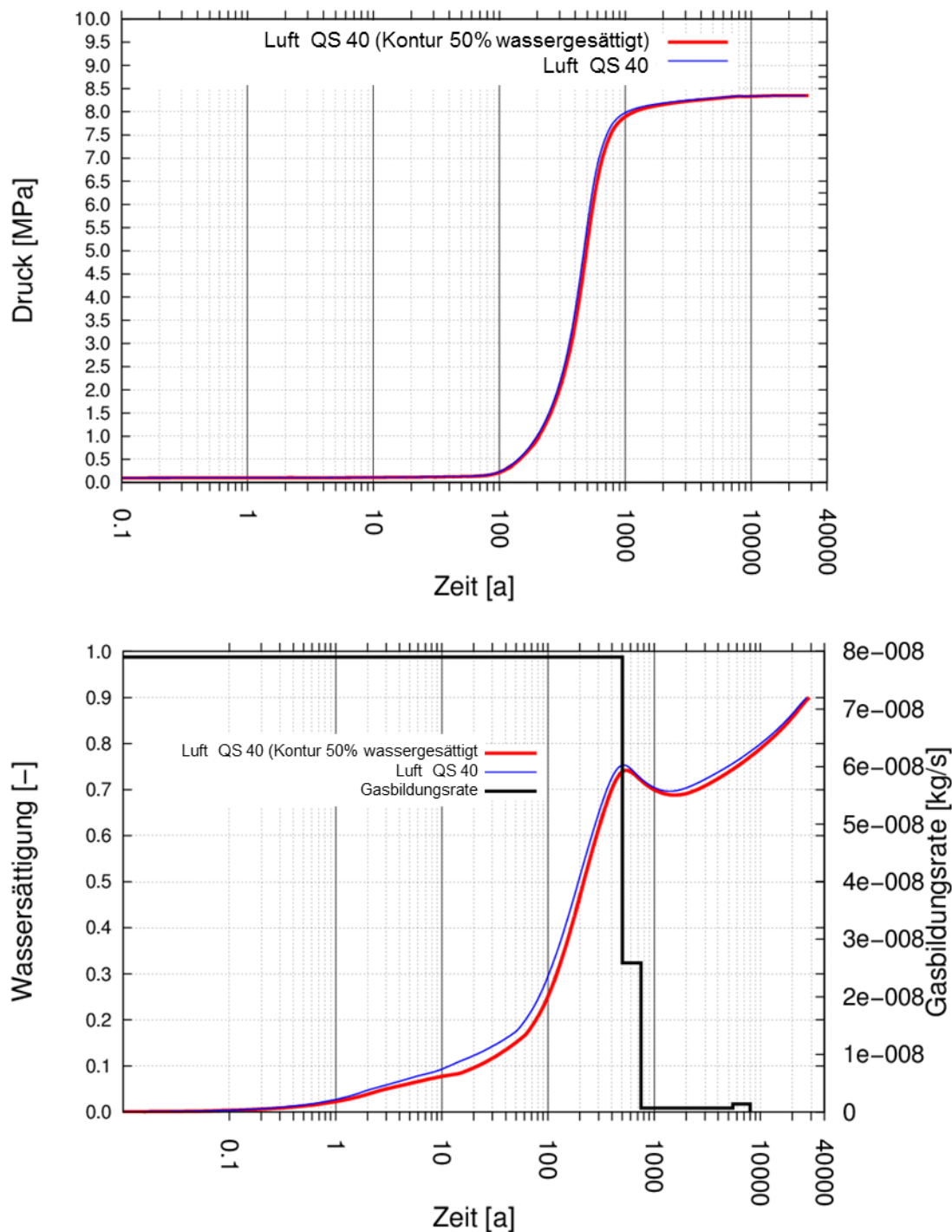


Abb. 4.16: Porenwasserdruck und Wassersättigung in der Strecke mit Querschnitt 40 m<sup>2</sup> mit und ohne teil-entsättigter Kontur unter Verwendung des EOS3 Moduls.

Auch bei diesem Rechenfall sind die Verhältnisse beim Druckaufbau (obere Grafik) und der Wassersättigung (untere Grafik) prinzipiell vergleichbar. Es lässt sich feststellen, dass sich die Aufsättigung der Strecke nur geringfügig verzögert, wenn eine teil-entsättigte Kontur angenommen wird.

#### 4.4.1.4 Einfluss spezifischer Parameter auf den Druckaufbau

Abschließend wurde an diesem Streckenmodell untersucht, welche Materialparameter prinzipiell den größten Einfluss auf die Ergebnisse zum Druckaufbau haben.

Dazu wurden mit Hilfe der Software optiSlang (optiSlang 2014) Sensitivitätsanalysen durchgeführt (Abb. 13). Unter Annahme einer für alle Berechnungen gleichen Gasbildungsrate und zeitlich nicht veränderlicher Strömungsparameter wurden 200 Berechnungsvarianten mit unterschiedlichen hydraulisch relevanten Parametern für Tongestein, Versatzmaterial, Buffer, und Dichtelemente durchgeführt. Es zeigte sich, dass die Permeabilität des Tonsteins in horizontaler und vertikaler Richtung und die Porosität der Strecke den markantesten Einfluss auf den Druckaufbau in der Strecke haben (Abb. 4.17). Innerhalb der 2-Phasen-Fluss-Parameter spielen darüber hinaus noch die Gaseindringdrücke eine wichtige Rolle.

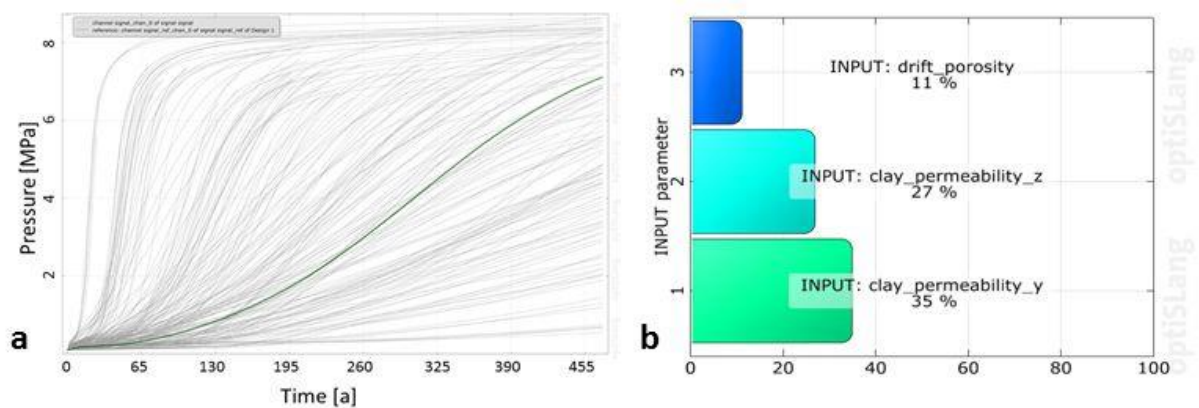


Abb. 4.17: a) Druckentwicklungen in 200 Berechnungsvarianten (grau) und vom Referenzmodell (grün), b) Parameter, die gemäß optiSlang für den Druckaufbau in der Strecke den größten Einfluss haben.

#### 4.4.2 Modell mit einer Einlagerungsstrecke (SÜD)

##### 4.4.2.1 Einfluss der Gasbildung auf Druckaufbau und Wassersättigung in der Strecke

Für das Endlagerstandortmodell SÜD wurde als Einlagerungskonzept die Variante der Streckenlagerung angenommen (Jobmann & Lommerzheim 2015). Auf Basis dieser Einlagerungsvariante wurde ein entsprechendes numerisches Modell zur Abschätzung der Druck- und Sättigungsentwicklung unter Berücksichtigung von Gasbildung entwickelt. Als Quellterm für die Gasbildung wurde die zeitliche Entwicklung der Gasbildungsrate gewählt, wie sie in Kapitel 2 für die POLLUX-Behälter abgeschätzt wurde (vgl. Abb. 2.2). Als Beobachtungselement und damit als Aufpunkt wird auch hier das Element im Querschlag vor dem Dichtelement verwendet (rotes Element in Abb. 4.18).

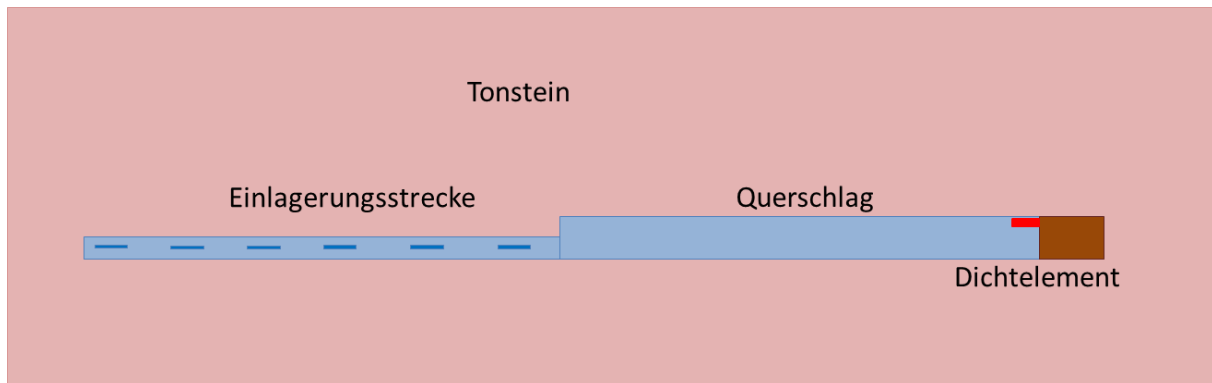


Abb. 4.18: Schematische Darstellung für das Modell mit einer Einlagerungsstrecke und einem Querschlag (Standortmodell SÜD). Das rote Element wird ausgewertet (nicht maßstabsgerecht)

Die Gasbildungsrate durch Korrosion ist im Standortmodell SÜD wesentlich niedriger als im Standortmodell NORD (vgl. Abb. 2.1 und Abb. 2.2). Der Grund liegt darin, dass die zur Korrosion zur Verfügung stehenden Metallmengen im Endlagerkonzept NORD aufgrund der Verwendung von Bohrlochlinern deutlich größer sind. Diese geringere Gasbildungsrate wirkt sich nur unmerklich auf den Druckaufbau und die Wassersättigung in der Strecke aus. Der Druckaufbau mit und ohne Gasbildung ist nahezu identisch (Abb. 4.19 oben). Bei dem Verlauf der Wassersättigung (Abb. 4.19 unten) fällt auf, dass das verbleibende Gaspolster am Ende der Aufsättigung signifikant geringer ausgeprägt ist, als bei den Ergebnissen für das Endlagerkonzept NORD (Abb. 4.14).

Allerdings kann auch für das Endlagerkonzept SÜD nicht ausgeschlossen werden, dass eine freie Gasphase von etwa 5% (Volumen) nach ca. 500 Jahren existiert, die neben der Lösung als Transportmedium für Radionuklide zur Verfügung steht.

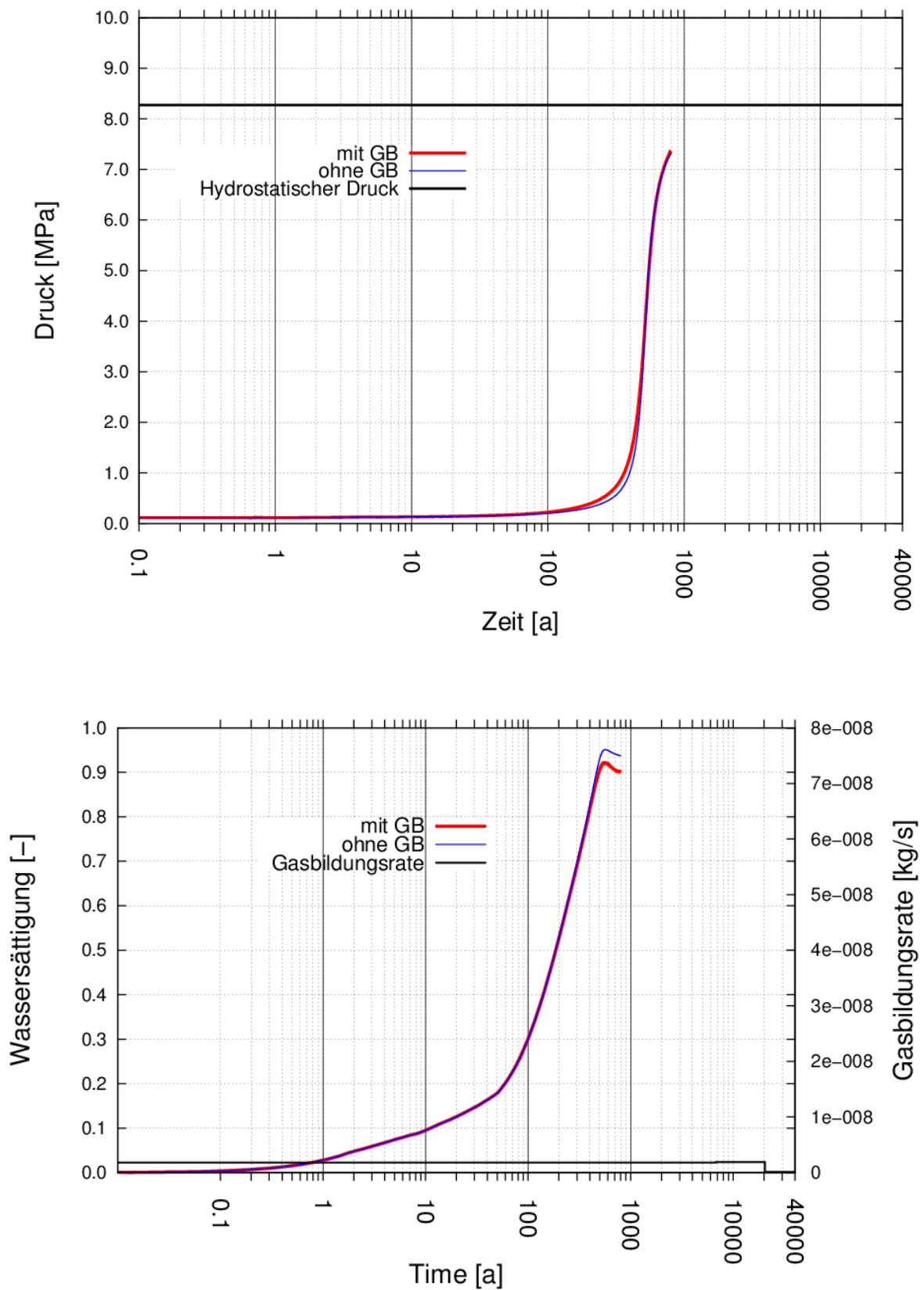


Abb. 4.19: Porenwasserdruck und Wassersättigung in einer Strecke mit einem Querschnitt von  $49 \text{ m}^2$  unter Berücksichtigung einer Gasbildungsrate aufgrund der Korrosion von Behältern im Modell SÜD.



#### 4.4.3 Modell mit allen Einlagerungsfeldern (NORD)

Nach den bisherigen Modellierungen zu den Verhältnissen innerhalb einer Strecke, wurde im Folgenden abgeschätzt, welche Druck- und Sättigungsverhältnisse sich einstellen, wenn die Gasbildung in allen Einlagerungsfeldern berücksichtigt wird. Zu diesem Zweck wurde ein großvolumiges Modell erstellt, das summarisch die Gasbildung in kompletten Einlagerungsfeldern berücksichtigt. Diese sind schematisch in Abb. 4.20 als dunkelblaue Kästchen (links unten) dargestellt. Das Porenvolumen des gesamten Versatzes im Grubengebäude wurde ebenfalls summarisch erfasst. An das Streckensystem (blau) ist zum einen der Infrastrukturbereich mit seinem Porenvolumen angeschlossen, um zu untersuchen, inwieweit sein Porenvolumen gegebenenfalls als Gasspeicher zur Verfügung stehen könnte. Zum anderen ist ein Schacht mit zwei Dichtelementen und einer dazwischen liegenden Füllsäule mit im Modell abgebildet, um auch dort die Druck- und Sättigungsentwicklung abschätzen zu können, insbesondere auch die Lastentwicklung am unteren Dichtelement.

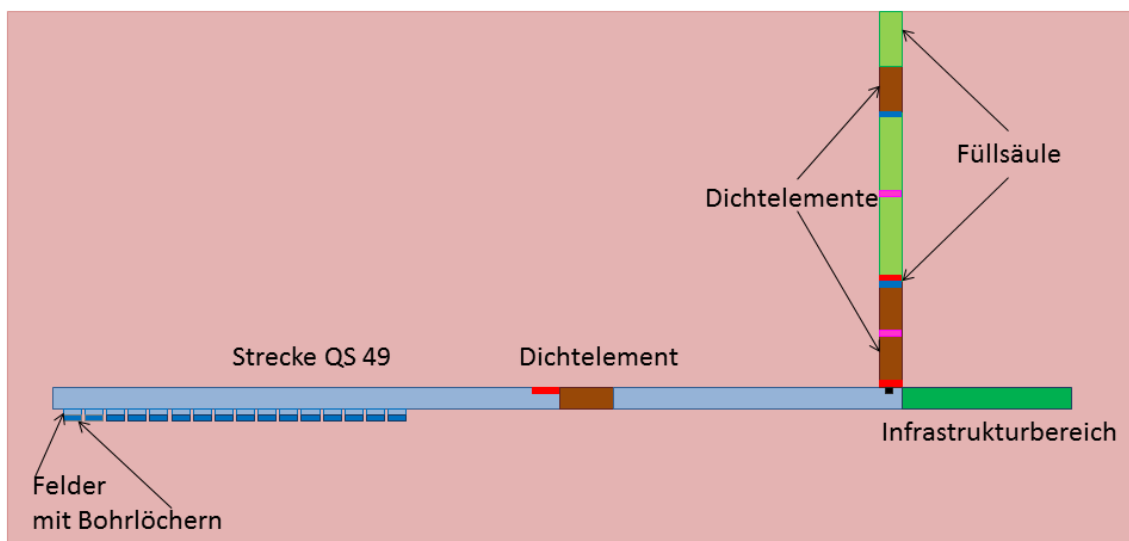


Abb. 4.20: Schematische Darstellung des Gesamtmodells (Standortmodell NORD).

##### 4.4.3.1 Druckaufbau und Wassersättigung im Dichtelement im Schacht und in der Füllsäule

Als erstes wurden, als Vergleichsgrundlage, Berechnungen ohne Berücksichtigung einer Gasbildung durchgeführt. Als Beobachtungspunkte wurden jeweils drei Aufpunkte innerhalb des unteren Dichtelementes und innerhalb der Füllsäule gewählt und zwar jeweils am oberen Rand, in der Mitte und am unteren Rand, in Abb. 4.20 gekennzeichnet durch blaue, lila und rote Kästchen. Die Ergebnisse für die Entwicklung im Dichtelement und innerhalb der Füllsäule sind in Abb. 4.21 und Abb. 4.22 dargestellt. Die Druckentwicklung im Dichtelement (Abb. 4.21 oben) zeigt deutlich, dass im Dichtelement ein signifikanter Druckgradient von oben nach unten vorhanden ist, also entgegen dem hydrostatischen Druckgradienten, der in Abb. 4.21 (oben) als konstante Linien dargestellt ist. Eine Möglichkeit, diesen Druckverlauf zu erklären, ist folgende: Die Füllsäule besteht aus Schotter und hat eine vergleichsweise hohe Permeabilität. Über die Mantelfläche des zylindrischen Schachtes tritt Lösung aus dem umgebenden Gebirge in den Porenraum der Füllsäule zu. Die Lösung sammelt sich aufgrund der Schwerkraft an der oberen Seite des Dichtelementes und beginnt dieses von oben her aufzusättigen, wodurch sich die in Abb. 4.21 (oben) dargestellte Druckverteilung erklären ließe. Der langsame Druckanstieg ergibt sich durch die entsprechende Aufsättigung des Dichtelementes durch Zulauf aus dem Gebirge über seine Mantelfläche. Nach einiger Zeit stellt sich ein gleichmäßiger Druckgradient ein, der darauf hindeutet, dass eine langsame

aber gleichmäßige Durchströmung des Dichteelementes stattfindet und somit Flüssigkeit in das Grubengebäude eintritt.

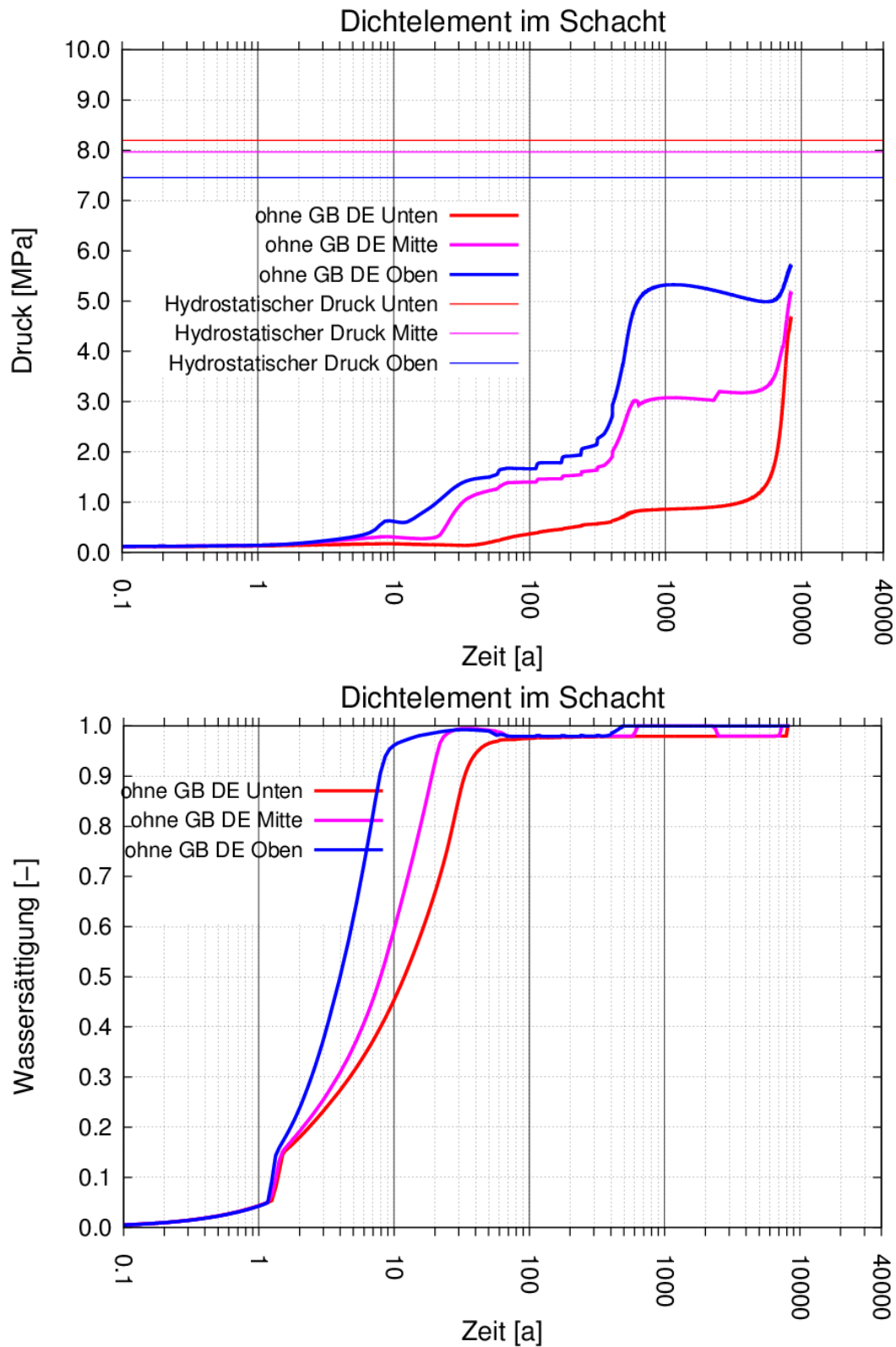


Abb. 4.21: Druckaufbau (oberes Bild) und Entwicklung der Wassersättigung (unteres Bild) innerhalb des Dichteelementes im Schacht an drei Beobachtungspunkten (unten, mitte, oben) ohne Berücksichtigung einer Gasbildung. (Bem.: der zeitweise etwas gezackte Kurvenverlauf ist auf Instabilitäten im Berechnungsverlauf zurückzuführen).

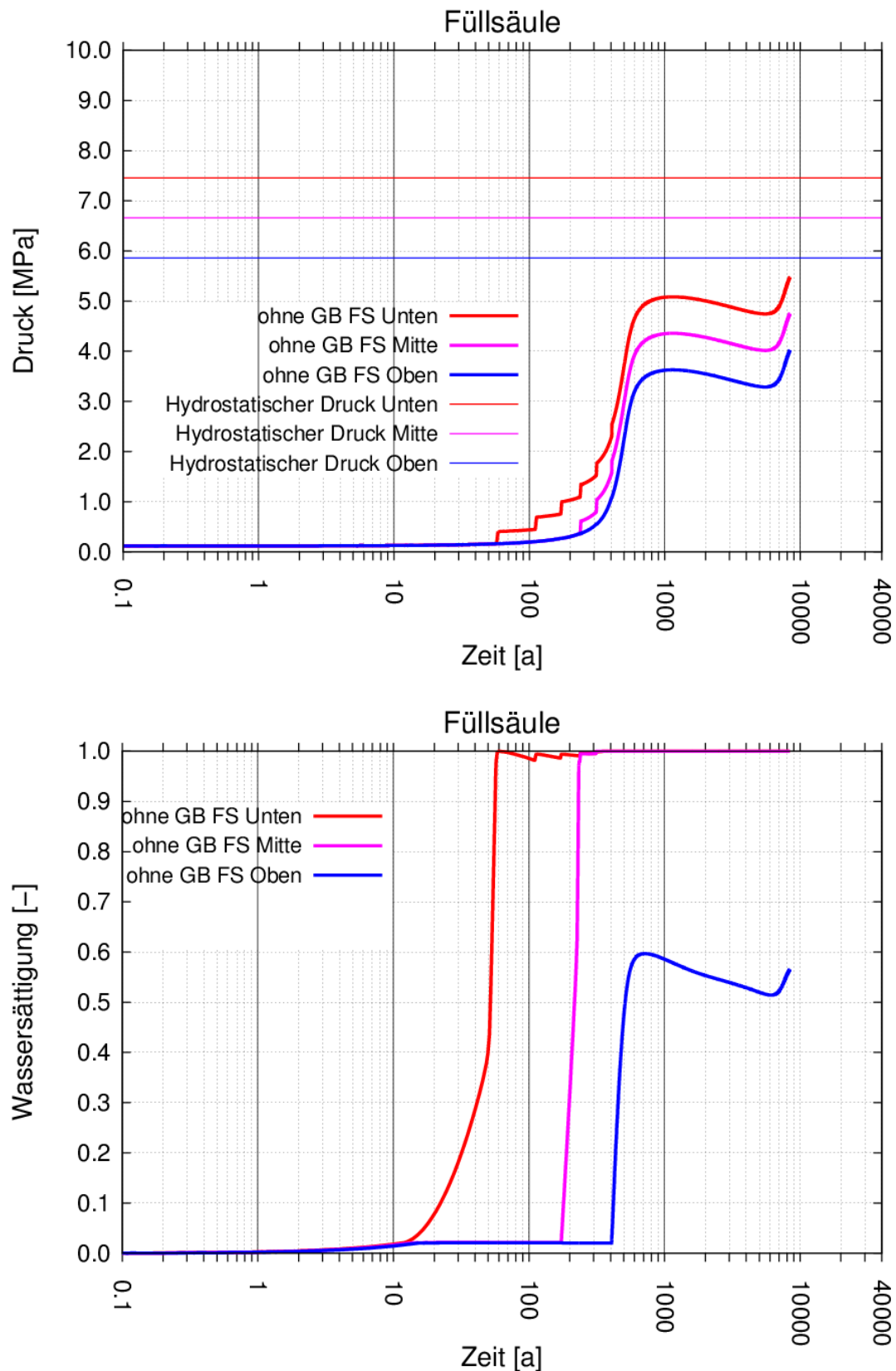


Abb. 4.22: Porenwasserdruck (oberes Bild) und Wassersättigung (unteres Bild) innerhalb der Füllsäule im Schacht an drei Beobachtungspunkten (unten, mitte, oben) ohne Berücksichtigung einer Gasbildung. (Bem.: der zeitweise etwas gezackte Kurvenverlauf ist auf Instabilitäten im Berechnungsverlauf zurückzuführen).

Dieser konstante Druckgradient und damit der Zulauf in das Streckensystem bleibt über mehrere tausend Jahre erhalten, bis das Streckensystem vollständig gesättigt ist. Erst danach, in diesem Rechenfall nach etwa 7 000 Jahren, erhöht sich der Druck am unteren Rand des Dichtelementes, da nun keine Lösung mehr von dem Streckensystem aufgenommen werden kann. An dieser Stelle sei angemerkt, dass eine Permeabilitätsänderung aufgrund des sich einstellenden Quelldruckes nicht modelliert wurde. Dies würde wahrscheinlich zu einer weiteren Verzögerung der Druckentwicklung durch die Aufsättigung führen. Ebenso vernachlässigt wurde die Verzögerungswirkung der Streckenverschlüsse. Die angegebene Zeitdauer kann somit als Mindestzeitdauer angesehen werden.

In der Füllsäule beobachtet man keine Druckumkehr wie beim Dichtelement. Durch die hohe Porosität und Permeabilität sammelt sich die Lösung am unteren Rand der Füllsäule und steigt dann stetig an, so dass die Druckunterschiede denen der hydrostatischen Drücke entsprechen (Abb. 4.22 oben). Auch hier ergibt sich eine lange Phase konstanter Druckgradienten, die erst dann beendet wird, wenn das Streckensystem vollständig gesättigt ist, wodurch sich die Druckhöhen dann in Richtung der hydrostatischen Drücke bewegen. Der insgesamt leicht abfallende Druck deutet darauf hin, dass die Durchströmung des Dichtelementes unterhalb der Füllsäule schneller abläuft, als die Fluidnachfuhr aus dem Gebirge. Betrachtet man die zugehörigen Verläufe der Wassersättigungen (Abb. 4.22 unten), so fällt auf, dass der obere Bereich der Füllsäule (blaue Kurve in Abb. 4.22) nur etwa eine Wassersättigung von 60% erreicht. Das heißt, hier verbleibt ein Luft- bzw. Gaspolster, das nicht entweichen kann, da sich über der Füllsäule ein weiteres Dichtelement anschließt. Dieses hat im aufgesättigten Zustand einen Gaseindringdruck, der erst dann überwunden werden kann, wenn das Streckensystem des Grubengebäudes voll gesättigt ist und somit eine signifikante Druckerhöhung von unten das Gaspolster erreicht. Je nach Höhe des Gaseindringdruckes wird zunächst noch Gas in die Lösung gehen, bevor es durch das obere Dichtelement als verbleibende Gasphase gedrückt wird.

Eine gänzlich andere Situation tritt ein, wenn eine korrosionsbedingte Gasbildung berücksichtigt wird. Hier zeigt sich ein interessantes aber nicht unerwartetes Phänomen. Betrachtet man die Druckentwicklung (hier ohne Berücksichtigung eines Infrastrukturbereiches) im unteren Dichtelement (Abb. 4.23 oberes Bild), so stellen sich zunächst vergleichbare Verhältnisse wie im Rechenfall ohne Berücksichtigung einer Gasbildung ein (Abb. 4.21 oberes Bild). Man erhält wieder Druckgradienten im Dichtelement, die von oben nach unten gerichtet sind und die durch einen Zulauf in das Streckensystem erklärt werden können. Allerdings stellt sich keine über mehrere tausend Jahre konstante Druckphase ein, sondern der Druck steigt mehr oder weniger stark an. Darüber hinaus kommt es, bei diesem Rechenfall nach etwa 2 000 Jahren, zu einer Druckumkehr. Der Druckgradient ändert seine Richtung. Das bedeutet, dass ab diesem Druckumkehrpunkt der Druckgradient von unten nach oben gerichtet ist, was dazu führt, dass keine Strömung der Lösung in Richtung des Streckensystems stattfindet. Übersteigen die Druckdifferenzen, die hydrostatischen Gradienten, kommt es zu einer Bewegung aus dem Streckensystem heraus entlang des Schachtes in Richtung Oberfläche (Abb. 4.23 oberes Bild).

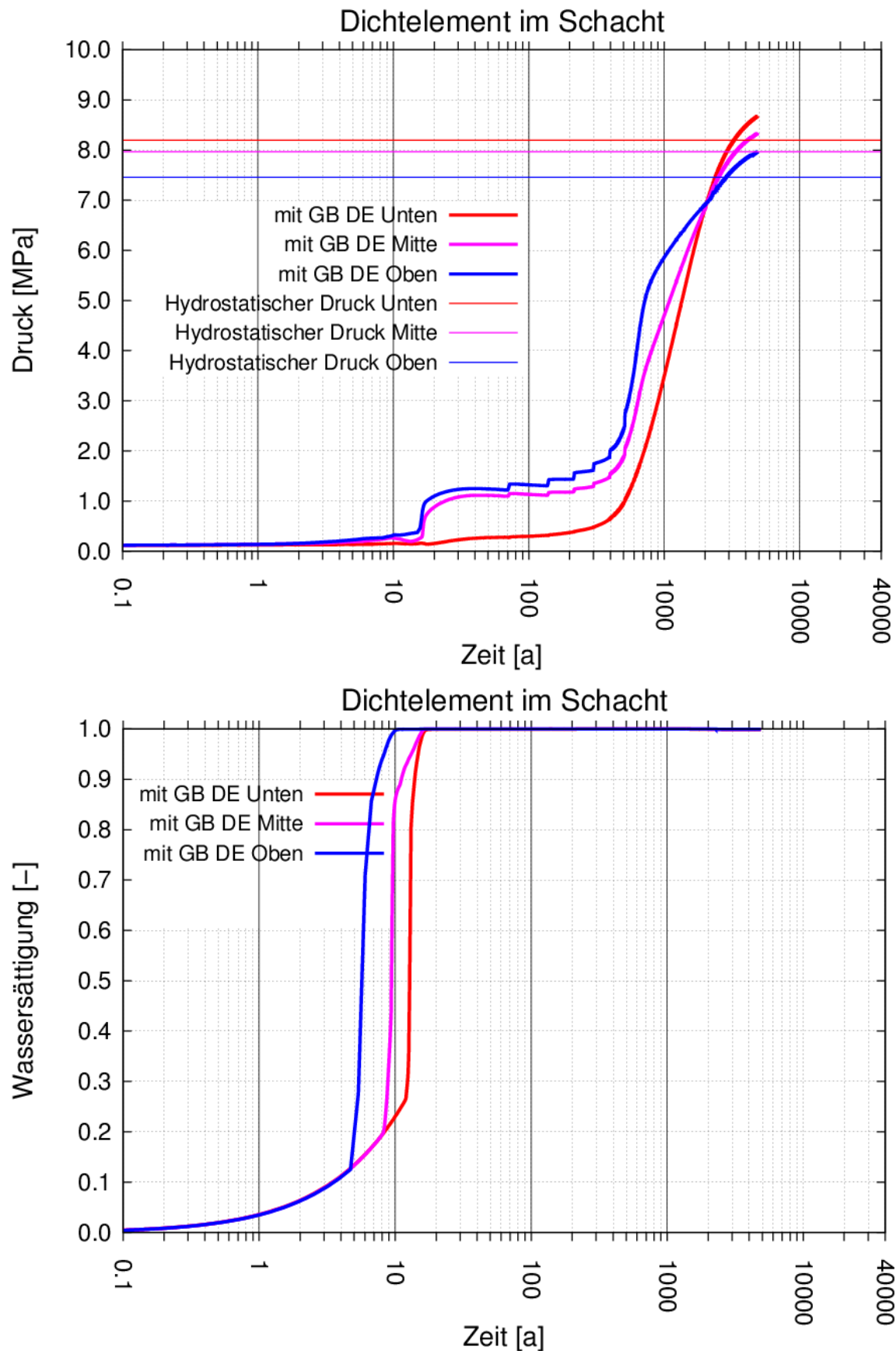


Abb. 4.23: Porenwasserdruck (oben) und Fluidsättigung im Dichtelement (unten) in unteren, mittleren und oberen Elementen mit Gasbildung

#### 4.4.3.2 Druckaufbau und Wassersättigung in der Strecke unterhalb des Schachtes

Der im vorigen Abschnitt beschriebene permanente Druckanstieg wirft die Frage auf, inwieweit beispielsweise der Infrastrukturbereich mit seiner geplanten Schotterverfüllung als Gasspeicher dienen kann. Gemäß Endlagerkonzept befindet sich der Infrastrukturbereich in der Umgebung der Schächte, weshalb er auch im Modell (Abb. 4.20) an den Schacht angeschlossen ist. Abb. 4.24 zeigt die Druckentwicklung (oberes Bild) und den Verlauf der Wassersättigung (unteres Bild) unterhalb des Schachtes (schwarzes Kästchen in Abb. 4.20).

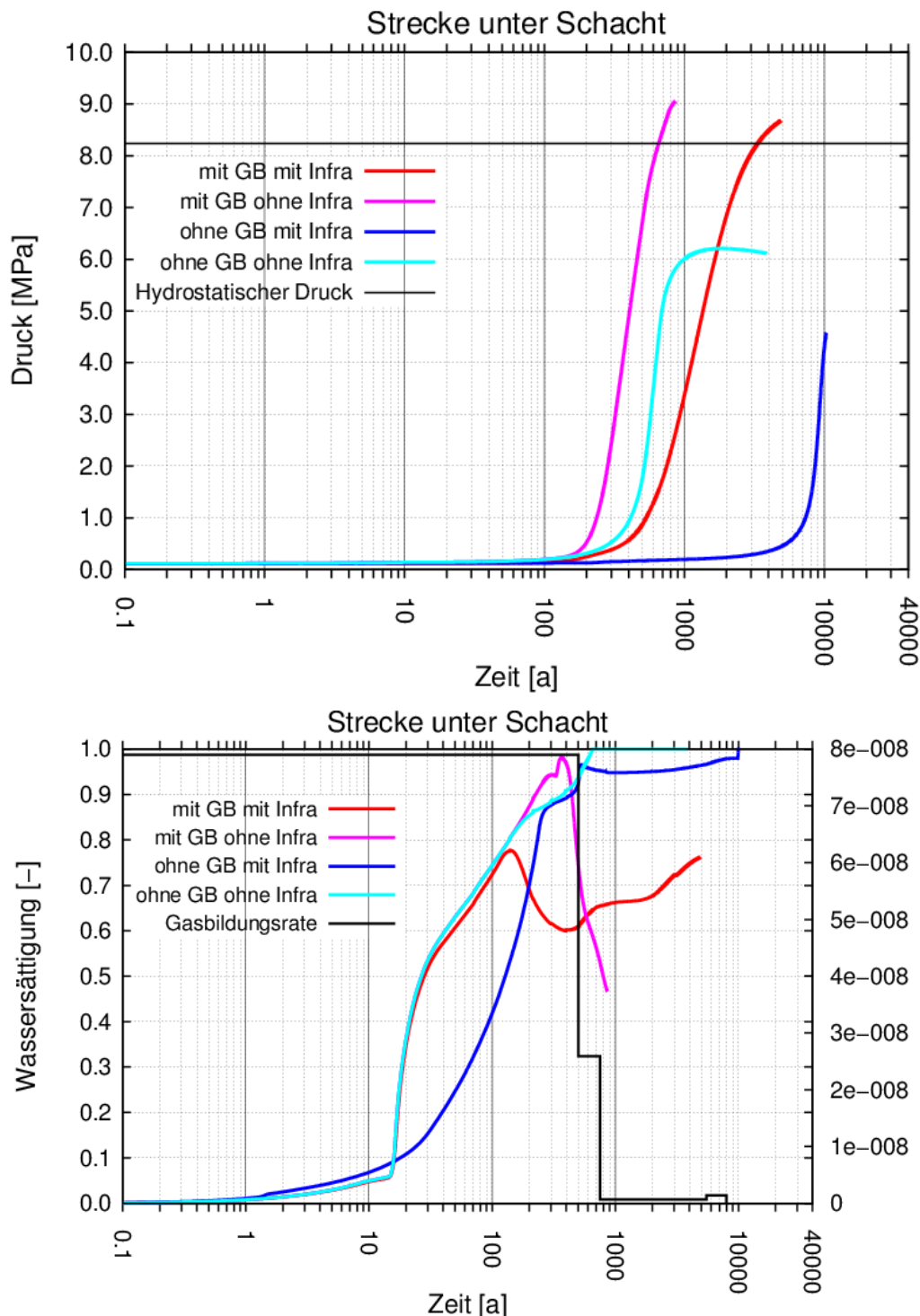


Abb. 4.24: Porenwasserdruck (obere Grafik) und Wassersättigung (untere Grafik) in der Strecke unterhalb des Schachtes mit und ohne Gasbildung, mit und ohne Berücksichtigung eines Infrastrukturbereiches als Gasspeicher.



Die beiden blauen Kurven zeigen jeweils den Verlauf ohne Gasbildung sowohl ohne (hellblau) als auch mit (dunkelblau) Berücksichtigung eines Infrastrukturbereiches. Entsprechend zeigen die beiden rötlichen Kurven die Verläufe mit Gasbildung (rot: ohne Infrastrukturbereich, lila: mit Infrastrukturbereich). Es lässt sich feststellen, dass es in jedem Fall zu einer deutlichen Verzögerung des Druckaufbaus bei Berücksichtigung eines Speichervolumens kommt. Der hydrostatische Druck wird aber bei Berücksichtigung einer Gasbildung, für diesen Rechenfall, in jedem Fall überschritten.

Betrachtet man den Verlauf der Wassersättigung (Abb. 4.24 unteres Bild), so ist zunächst auch für den Fall ohne eine Gasbildung (bläuliche Kurven) festzustellen, dass die Aufsättigung der Strecke unterhalb des Schachtes sehr viel langsamer verläuft, wenn das Speichervolumen des Infrastrukturbereiches mit berücksichtigt wird. Es fällt aber auf, dass für diesen Fall bis etwa 10 000 Jahre ein „Luftpolster“ von maximal 5% (dunkelblaue Kurve) im Beobachtungselement unterhalb des Schachtes verbleibt. Die langsame Reduzierung des Luftpolsters ist darauf zurück zu führen, dass entweder das Gas bei steigendem Druck in Lösung geht oder langsam durch das Dichtelement des Schachtes gedrückt wird.

Betrachtet man den Fall mit Gasbildung, so ist der Sättigungsverlauf ohne einen Infrastrukturbereich (lila Kurve) vergleichbar mit dem Fall ohne Gasbildung (hellblaue Kurve), allerdings nur bis zum Zeitpunkt der maximalen Sättigung (100%), der nach etwa 350 Jahren erreicht ist. Danach erreicht das in den Einlagerungsfeldern produzierte Gas den Bereich des Schachtes und führt zu einer signifikanten Reduzierung der Wassersättigung und damit zur Bildung eines Gaspolsters unterhalb des Dichtelementes.

Für den Fall mit Infrastrukturbereich (rote Kurve) wird die maximale Sättigung erst gar nicht erreicht. Hier erreicht die Wassersättigung lediglich einen Wert von knapp 80% bevor durch eintreffendes Gas die Wassersättigung wieder reduziert wird. Danach ist der Kurvenverlauf prinzipiell vergleichbar mit der Kurve ohne Gasbildung (dunkelblau) nur mit einem deutlich größeren Gaspolster. Die Tatsache, dass in diesem Fall keine vollständige Sättigung erreicht wird bevor das Gas eintrifft, liegt daran, dass durch das große Speichervolumen des Infrastrukturbereiches die Aufsättigung deutlich langsamer verläuft.

## **5 Analysen zu Temperatureffekten im Nahbereich der Behälter** (Michael Jobmann & Artur Meleshyn)

Im Folgenden werden thermisch bedingte Effekte im Nahbereich der Behälter diskutiert, um zu analysieren, an welcher Stelle gegebenenfalls noch vertiefende Untersuchungen notwendig sind, um die Grundlagen für eine sicherheitliche Beurteilung zu verbessern.

### **5.1 Behälter, Innenliner und Außenliner**

Die Rückholbare Kokille (Einlagerungskonzept NORD) hat eine Länge von 5.060 mm, einen Durchmesser von 520 mm (oben) und 470 mm (unten), ein Gebindevolumen von 0,72 m<sup>3</sup> und eine max. Gebindemasse von 5.266 kg. Die Wandstärke beträgt 44,5 mm oben und 19,5 mm unten. Die RK hat einen konischen Behälterkörper und einem angespressten oder angeschweißten Boden. Sie besteht aus Feinkornbaustahl 15MnNi6.3 (Lommerzheim & Jobmann, 2015).

Der POLLUX® 3 - Behälter (Einlagerungskonzept SÜD) besteht aus einem Innen- und einem Außenbehälter. Der Innenbehälter hat eine Wandstärke von 160 mm und wird durch einen geschraubten Primärdeckel und einen geschweißten Sekundärdeckel dicht verschlossen. Innenbehälter, Primär- und Sekundärdeckel bestehen aus Feinkornbaustahl (15MnNi6.3). Der äußere Abschirmbehälter hat eine Wandstärke von ca. 270 mm und wird mit einem verschraubten Außendeckel verschlossen. Dieser Abschirmbehälter hat keine Dichtfunktion zu übernehmen und besteht wie der Außendeckel aus Sphäroguss (GGG40, Werkstoff EN-GJS-400-15U (0.7040)). Der POLLUX®-3-Behälter soll in zwei Varianten genutzt werden, die entweder die Brennstäbe von 3 Brennelementen oder 3 CSD-V-Kokillen enthalten (Jobmann & Lommerzheim, 2015).

Die physikalischen Eigenschaften von Stählen (Behälter, Innenliner, Außenliner) ändern sich nur geringfügig mit Erhöhung der Temperatur (Richter, 2010). In dem relevanten Temperaturbereich von 20°C bis max. 300°C ist aus thermischer Sicht keine Grenzbedingung gegeben. Die sich ergebende thermo-mechanische Belastung wird im Zuge der Auslegung der Behälter und der beiden Liner (Einlagerungskonzept NORD) berücksichtigt.

### **5.2 Glasmatrix der Wiederaufarbeitungsabfälle**

Die Glasmatrix als solche ist sehr temperaturbeständig. In Abb. 5.1 ist das Ausdehnungsverhalten von Glas als Funktion der Temperatur dargestellt. Es gibt vier Temperaturpunkte die charakteristisch sind für das Materialverhalten. Das sind die maximale Arbeitstemperatur, der Glasübergangspunkt, der Transformationspunkt und der Erweichungspunkt.

Die maximale Arbeitstemperatur ist die höchste zulässige Gebrauchstemperatur bis zu dem das Glas unter Beibehaltung seiner Eigenschaften verwendet werden sollte. Beim Überschreiten der Glasübergangstemperatur (T<sub>g</sub>) ist die Umwandlung eines festen Glases in eine gummiartige bis zähflüssige Schmelze zu beobachten. Im Gegensatz zur Viskosität ändert sich die Wärmeausdehnung bei einigen Gläsern in einem vergleichsweise engen Temperaturbereich plötzlich, den man als Transformationspunkt T<sub>g</sub> bezeichnet. Oberhalb dieser Temperatur ist die Wärmeausdehnung wesentlich höher als darunter. Auch die Wärmekapazität steigt am Transformationspunkt sprunghaft an, was meist zur Messung des Transformationspunktes herangezogen wird. Oberhalb des (dilatometrischen) Erweichungspunktes beginnt das Glas merklich zu fließen und sich dadurch unter dem Einfluss des Eigengewichtes signifikant zu verformen.



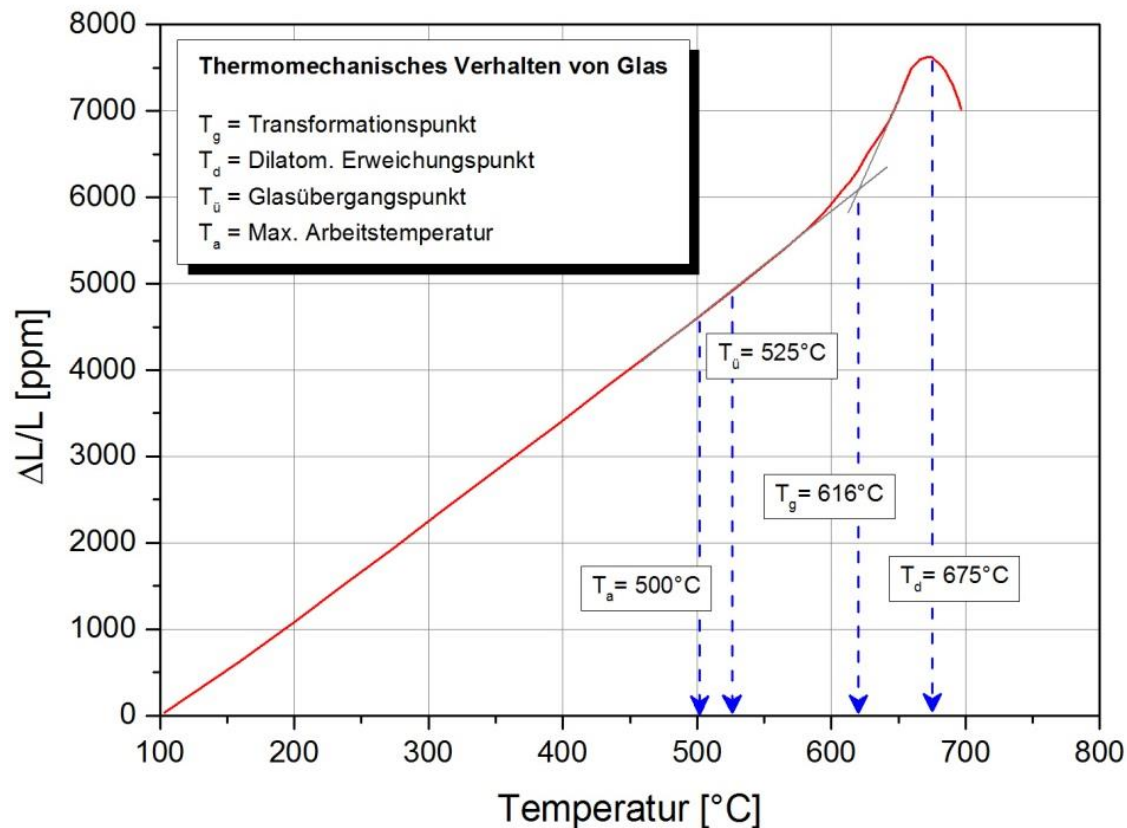


Abb. 5.1: Thermisches Ausdehnungsverhalten von Glas

Aus Sicht der thermischen Belastung kann festgehalten werden, dass wenn im Zuge der Einlagerung die Temperatur im Innern des Behälters nicht über  $500^\circ\text{C}$  ansteigt, keine Veränderung der Glasmatrix zu erwarten ist.

Bemerkung: Für die amerikanischen Behälter wird eine maximale Temperatur von  $400^\circ\text{C}$  erlaubt (Bates et al. 1994, Berusch et al. 1993). In NIROND (2001-06E) wird für die belgischen Behälter eine maximale Temperatur für die Glasmatrix von  $350^\circ\text{C}$  festgesetzt. Bei Unterstellung eines Versagensfalles wird diese auf  $200^\circ\text{C}$  festgesetzt.

### 5.3 Sandfüllung im Innenliner (Konzept NORD)

Im Einlagerungskonzept NORD wird der verbleibende Hohlraum zwischen den rückholbaren Kokillen und dem Innenliner mit Quarzsand ausgefüllt. Quarz besteht chemisch aus Siliziumdioxid ( $\text{SiO}_2$ ) und ist der Hauptbestandteil der meisten Sande. Quarz ist  $\text{SiO}_2$  in der bei Temperaturen unter  $573^\circ\text{C}$  thermodynamisch stabilsten kristallinen Modifikation. "Thermodynamisch stabil" bedeutet, dass sich theoretisch alle anderen Modifikationen des  $\text{SiO}_2$ , z. B. amorphes  $\text{SiO}_2$  (in Form von "fester Kieselsäure", Quarzglas oder Mikrosilica) oder Cristobalit, "freiwillig", d. h. auch ohne Zufuhr von Energie, in Quarz umwandeln könnten, nicht aber umgekehrt.

Vom Quarz selbst gibt es zwei unterschiedliche kristalline Modifikationen, nämlich den Alpha-Quarz ("Tiefquarz") und den Beta-Quarz ("Hochquarz"). Die Modifikation Tiefquarz liegt bei Temperaturen unter  $573^\circ\text{C}$  vor (Abb. 5.2). Tiefquarz hat eine Dichte von  $2650 \text{ kg/m}^3$ . Tiefquarz wandelt sich oberhalb von  $573^\circ\text{C}$  in die Hochquarz-Modifikation um und wird bei Abkühlung wieder zu Tiefquarz. Den Übergang nennt man "Quarzsprung", weil die Umwandlung von Tiefquarz zu Hochquarz auch mit einer sprunghaften Vergrößerung des

spezifischen Volumens um 0,8% verbunden ist und bei Abkühlung, d. h. bei der Umwandlung zu Tiefquarz, nicht erhalten bleibt. Der Quarzsprung muss z. B. beim Brennen von quarzhaltigen Tonwaren beachtet werden: Ein zu schnelles Aufheizen oder Abkühlen kann zu Sprüngen und Rissen von Tonwaren führen. Hochquarz hat einen Schmelzpunkt von 1550°C (schnelles Aufheizen, erhöhter Druck). Lässt man den Aufheizvorgang nur sehr langsam erfolgen (Tempern), so findet bei 870°C eine Umwandlung in Tridymit und bei 1470°C eine Umwandlung in Cristobalit statt.

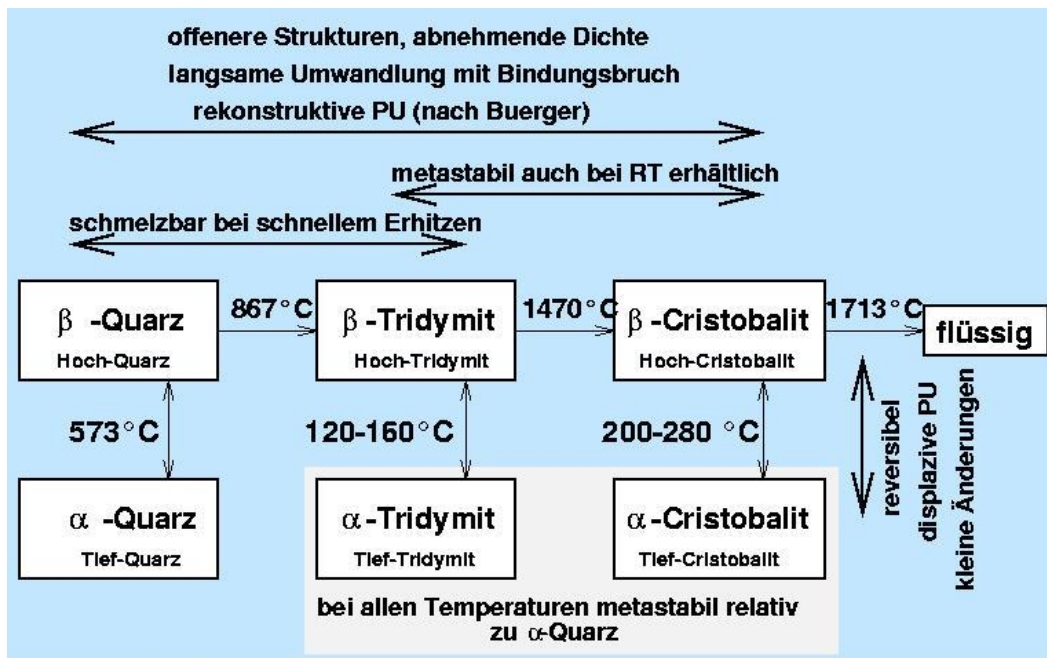


Abb. 5.2: Phasendiagramm und Umwandlungspunkte von Quarz (Uni Freiburg, 2013).

Einen großen Einfluss auf die entstehenden Modifikationen hat neben der Temperatur auch der Umgebungsdruck. Cristobalit hat seinen Schmelzpunkt bei 1723°C. Der Schmelzpunkt und insbesondere der Punkt des beginnenden Sinterns (= beginnendes Schmelzen, so dass die Quarzkörner zusammenbacken) sind stark von der Reinheit ( $\text{SiO}_2$ -Gehalt) des Quarzes abhängig. Quarz hat einen linearen thermischen Ausdehnungskoeffizienten von  $14 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  im Temperaturintervall von 20-300°C. Abb. 5.3 zeigt die thermische Ausdehnung von Quarz- und anderen Sanden im Vergleich.

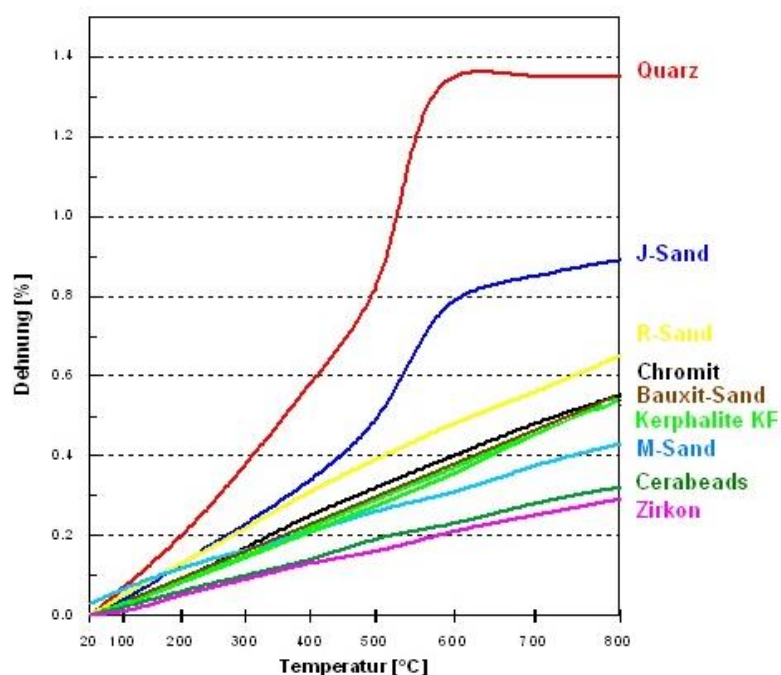


Abb. 5.3: Thermisches Ausdehnungsverhalten verschiedener Sande (Gießerei-Lexikon, 2013)

Aus Sicht der thermischen Belastung kann festgehalten werden, dass, wenn im Zuge der Einlagerung die Temperatur im Sand nicht über 573°C ansteigt, keine relevanten Veränderungen des Quarzsandes zu erwarten sind.

## 5.4 Buffermaterial

In beiden Einlagerungskonzepten ist angedacht, zur Herstellung eines Buffers in direkter Behälterumgebung aufbereitetes und ggf. kompaktiertes Ausbruchsmaterial zu verwenden. Da das Hauterivium und das Barremium als ausgewählte Wirtsgesteine im Standortmodell NORD sowie der Opalinuston im Standortmodell SÜD nur eine begrenzte Menge quellfähiger Minerale enthalten, ist vorgesehen, soweit notwendig, quellfähige Minerale (z. B. Montmorillonit) dem Buffermaterial beizumischen.

### 5.4.1 Thermo-hydro-mechanische (THM) Effekte

Da speziell für aufbereitetes Ausbruchsmaterial aus dem Wirtsgestein Hauterivium und Barremium keine Informationen zum Verhalten bei hohen Temperaturen vorliegen, werden im Folgenden ersatzweise Untersuchungen zu thermo-hydro-mechanischen Effekte an Bentoniten aufgelistet.

#### 5.4.1.1 Dehydrierung quellfähiger Tonminerale

Laborversuche mit Wyoming-Montmorillonit zeigen, dass in einem geschlossenen System Montmorillonit-Zwischenschichten mit drei Wasserlagen (Schichtabstand 1,8–1,9 nm, Wassergehalt von ca. 30 Gew.-%) nur zu einem Anteil von 20% in ein Montmorillonit mit zwei Wasserlagen (Schichtabstand ca. 1,54 nm, Wassergehalt ca. 20 Gew.-%) bei einem Temperaturanstieg auf 163°C und einem durch den teilweisen Zwischenschichtwasserverlust einhergehenden Druckanstieg auf 0,6 MPa umgewandelt werden (Huang et al. 1994). Ein weiterer Temperaturanstieg auf 313°C führte zwar zu einem Druckanstieg auf ca. 110 MPa jedoch nur zu einem geringfügigen weiteren Zwischenschichtwasserverlust. Der Zustand mit zwei Wasserlagen wurde erst bei einer Temperatur von über 330°C und einem Druck von etwa 180 MPa erreicht.

Ein ungesättigter Wyoming-Montmorillonit mit zwei Wasserlagen in 80% der Zwischenschichten und einer Wasserlage (Schichtabstand 1,24–1,26 nm, Wassergehalt ca. 10 Gew.-%) in den restlichen Zwischenschichten wurde in ein Montmorillonit mit einer Wasserlage bei einer Temperatur von 88°C umgewandelt. In diesem geschlossenen System führte der Zwischenschichtwasserverlust zu einem Anstieg des Porenwasserdruckes auf 0,16 MPa (Huang et al. 1994). Dieser Zustand blieb bis zu einer Temperatur von 215°C (Druck 2,07 MPa) größtenteils erhalten. Der Schichtabstand erniedrigte sich geringfügig auf 1,21 nm.

Prinzipiell führt die Reduzierung einer Wasserlage zu einer Verringerung des Quelldruckes und zu einer leichten Erhöhung des Porendruckes. Die entsprechende Verringerung des Quelldruckes wird als reversibel betrachtet, solange Montmorillonite nicht über 500–600°C erhitzt werden (Huang et al. 1994, Derkowski et al. 2012).

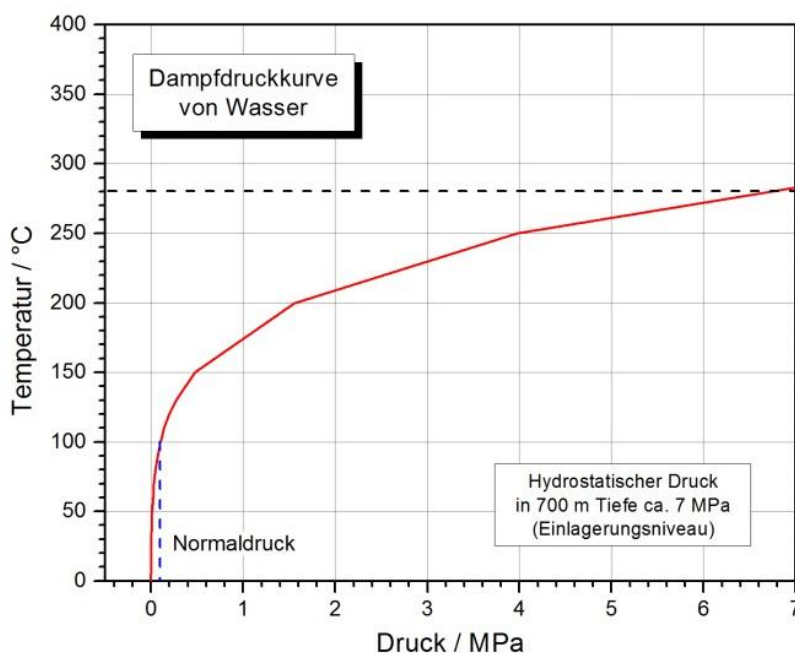
Bei 200°C und unter drainierten Laborbedingungen dehydrieren Smektite nur unvollständig und enthalten etwa 1 Gew.-% des Wassers, das größtenteils in Form des Hydrationswassers der austauschbaren Kationen in den Zwischenschichten und an den äußeren Oberflächen der Tonmineralteilchen vorliegt (Derkowski et al. 2012). Der komplette Verlust dieses Wassers wird in Smektiten erst durch eine Erhitzung in Vakuum bei 400°C erreicht.

#### 5.4.1.2 Verdampfen von Wasser

Nach Auffahrung der Einlagerungsbohrlöcher im Standortmodell NORD kommt es bedingt durch die Bewetterung vor dem Einbringen der Behälter und des Versatz- und Verschlussmaterials zu einer leichten Austrocknung am Rand des Bohrloches. Dieser ungesättigte Bereich besteht zum größten Teil aus der Auflockerungszone. Nach Verschließen des Bohrloches kommt es zu einer Wiederaufsättigung des ungesättigten Bereiches. Anschließend beginnt das Wasser langsam in den Buffer einzudringen, vornehmlich getrieben von der kapillaren Saugkraft im Buffer und dem sich wieder einstellenden ursprünglichen Druckniveaus im angrenzenden Wirtsgestein. Behindert wird das Eindringen von Wasser durch die erzeugte Wärme in den Behältern. Dadurch kommt es zum Verdampfen des Wassers in Behälternähe, wodurch Wasserdampf erzeugt wird. Ein Verdampfen von Wasser erfolgt spätestens nach Überschreiten des Siedepunktes.

Im Standortmodell Süd laufen prinzipiell vergleichbare Prozesse ab, nur dass hier die Aufsättigung nicht im Einlagerungsbohrloch, sondern in der Einlagerungsstrecke erfolgt.

Abb. 5.4 zeigt die Dampfdruckkurve von Wasser. Der Siedepunkt von Wasser verschiebt sich ausgehend von 100°C unter Normalbedingungen bis hin zu etwa 280°C nach Wiederherstellung des hydrostatischen Drucks im Einlagerungsniveau, wobei der stärkste Anstieg bereits im unteren Druckniveau erfolgt. Das heißt, dass bereits ein kleiner Druckanstieg zu einer deutlichen Erhöhung der Siedetemperatur führt.



Im Porenraum vorhandenes bzw. dorthin vordringendes Wasser würde durch die Expansion der Gasphase den Porendruck erhöhen. Mit dieser Druckerhöhung geht auch eine Erhöhung der Siedetemperatur einher, und der Verdampfungsprozess kommt zum Erliegen, wenn der mit der vorliegenden Temperatur korrespondierende Dampfdruck erreicht ist.

Abb. 5.4:  
Dampfdruckkurve von Wasser

Eine Erhöhung der Permeabilität aufgrund dieses Prozesses kann nicht stattfinden, wenn Wasser erst dann in den Porenraum vordringt, wenn Endlagergebäude und technische Barrieren nach Verschluss des Endlagers im Wirtsgestein eingespannt und dem Überlagerungsdruck bzw. dem hydrostatischen Druck ausgesetzt sind, weil die möglichen Dampfdrücke in relevanten Temperaturbereichen geringer sind, z. B. beträgt bei 200°C der Sättigungsdampfdruck ca. 1,5 MPa (Abb. 5.4) gegenüber ca. 18 MPa Überlagerungsdruck und ca. 7 MPa hydrostatischem Druck in 800 m Tiefe. Der Prozess des Verdampfens von Wasser ist zeitlich deutlich limitiert.

### 5.4.1.3 Mechanische Eigenschaften

Im in-situ Versuch TBT (Temperature Buffer Test) im Untertagelabor Äspö wurden für den bei Temperaturen von bis zu etwa 140°C erhitzten Bentonit im Vergleich zum nicht erhitzten Bentonit eine erhöhte Bruchfestigkeit (Abb. 5.5) und Steifigkeit festgestellt (Åkesson et al. 2012). Dieselbe Beobachtung wurde auch für die auf 125°C erhitzte Bentonite im in-situ Versuch LOT (Long Term Test of Buffer Material) ebenfalls im Untertagelabor Äspö gemacht (Karnland et al. 2009).

Die Verformungsversuche unter einaxialer Spannung an radial ungespannten Proben aus dem TBT Versuch zeigten dem gegenüber, dass Bentonite, die auf etwa 150°C erhitzt und nach dem Versuch wieder gesättigt wurden, eine geringere Bruchfestigkeit als nicht erhitzte Bentonite aufweisen (Åkesson et al. 2012).

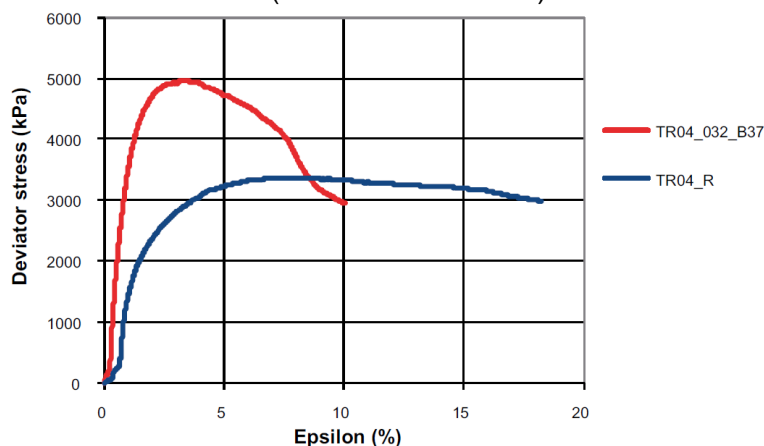


Abb. 5.5:  
Bruchfestigkeit eines gesättigten Bentonits, der 5 Jahre einer Temperatur von über 120°C ausgesetzt war und anschließend für 2 Jahre bis auf etwa 140°C erhitzt wurde, und eines gesättigten nicht erhitzten Bentonits als Funktionen der Verformung in einem Triaxialversuch (Åkesson et al. 2012).

Hier führte offensichtlich die Aufsättigung unter nicht eingespannten Verhältnissen zu einer ungehinderten Volumenvergrößerung und damit zu einer Verringerung der Festigkeit. Das heißt, hierbei ist nicht die Temperatur der ausschlaggebende Faktor für das veränderte Verhalten.

### 5.4.1.4 Wärmeleitfähigkeit

Die Wärmeleitfähigkeit von Materialien ist in der Regel temperaturabhängig. In Buntebarth (2004) wurde die Wärmeleitfähigkeit von Na-Bentonit bei Temperaturen von 35°C bis 200°C gemessen. Die drei untersuchten Proben hatten unterschiedliche Wassergehalte. Eine Probe hatte einen Wassergehalt von 10%, die zweite einen Wassergehalt von 17% und die dritte einen Wassergehalt von 0%. Diese wurde für mehrere Stunden bei einer Temperatur von 98°C getrocknet unter einem Einspanndruck von 1 MPa. Die Ergebnisse der Messungen sind in Abb. 5.6 dargestellt.

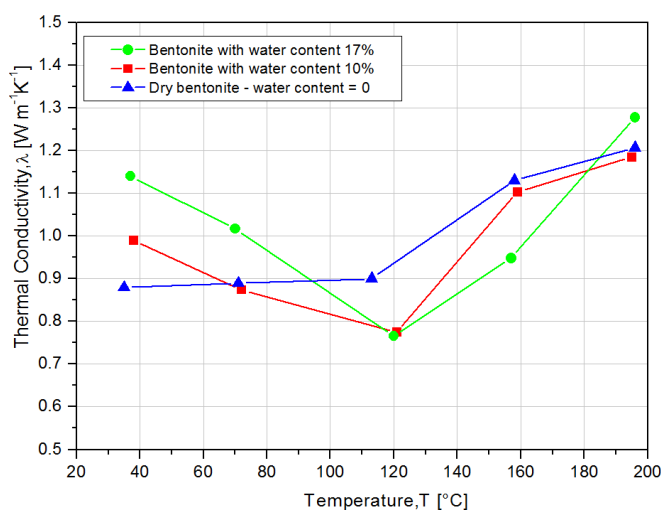


Abb. 5.6:  
Thermal conductivity versus temperature for different water contents (Buntebarth 2004, Yildizdag 2008)



Es ist festzustellen, dass die Wärmeleitfähigkeit des untersuchten Na-Bentonites bis etwa 120°C für die nicht getrockneten Proben (rot und grün) abnimmt, während sie für die getrocknete Probe (blau) konstant bleibt. Die Abnahme der Wärmeleitfähigkeit ist bedingt durch die Freisetzung von Porenwasser. Oberhalb von etwa 120°C steigt die Wärmeleitfähigkeit bis zur untersuchten Endtemperatur von 200°C an. Der Anstieg ist bedingt durch den verbesserten Kontakt der Mineralmatrix.

#### 5.4.1.5 Permeabilität

Die Durchlässigkeit für Wasser eines über mehrere Jahre auf bis zu 150°C erhitzten Na-Bentonits im TBT In-situ-Versuch im Äspö URL unterschied sich nicht signifikant von der hydraulischen Durchlässigkeit nicht erhitzter Bentonite und betrug  $3\text{--}6 \cdot 10^{-13}$  m/s bei einer Trockendichte von etwa 1600 kg/m<sup>3</sup> (Åkesson et al. 2012). Im LOT In-situ-Versuch im Äspö URL wurden keine signifikanten Unterschiede in der Wasserpermeabilität für die bis auf 125°C erhitzte und nicht erhitzte Bentonite festgestellt (Karnland et al. 2009).

In Laborversuchen mit einem auf Trockendichten von 1400 bis 1800 kg/m<sup>3</sup> kompaktierten Ca-Bentonit wurden bei einer Temperatur von 150°C hydraulische Durchlässigkeiten von jeweils  $6 \cdot 10^{-13}$  bis  $7 \cdot 10^{-12}$  m/s gemessen, die etwa um den Faktor 1,6 höher waren als bei 100°C (Cho et al. 2000). Die Erhöhung der hydraulischen Durchlässigkeit mit steigender Temperatur lässt sich mit den temperaturbedingten Viskositätsänderungen des Testfluides erklären.

#### 5.4.1.6 Kapillardruck

Untersuchungen zeigen, dass Kapillardruck-Sättigungsbeziehungen einer leichten Temperaturabhängigkeit unterliegen.

Die Saugspannung eines Bentonits im gespannten Zustand bei einer Dichte von 1600 kg/m<sup>3</sup> wurde durch einen Temperaturanstieg von 25°C auf 120°C um 20 bis 40 % (je nach Wassergehalt) vermindert und ein Wert von 20 MPa (Wassergehalt von 14,9 %) bis 160 MPa (Wassergehalt von 4,4 %) erreicht (Jacinto et al. 2009).

Die Temperaturabhängigkeit des Kapillardruckes in einem porösen Medium wird in erster Linie bestimmt durch die Oberflächenspannung an der Wasser-Gas Grenze und dem dortigen Kontaktwinkel (Bear 1972). Eingehende diesbezügliche Untersuchungen wurden von Grant & Salehzadeh (1996) und She & Sleep (1998) durchgeführt, die neben eigenen Experimenten auch eine Literaturstudie durchgeführt haben. Im Ergebnis halten sie fest, dass der Kontaktwinkel deutlich weniger sensitiv auf Temperaturänderungen ist als die Oberflächenspannung.

Es ist bekannt, dass eine Änderung der Sättigung der dominierende Faktor für Änderungen des Kapillardruckes ist. Bei einer Änderung der Temperatur ändern sich sowohl die Viskosität als auch die Dichte des Fluides. Besonders signifikant ist die Änderung der Viskosität, womit sie die dominierende Größe in Bezug auf die Mobilität des Fluides ist (Busch et al. 1993). Bei einer Temperaturerhöhung verringert sich die Viskosität und die Migrationsfähigkeit des Fluides wird erhöht. Durch die Volumenausdehnung des Fluides erhöht sich die Sättigung des Porenraumes, die zu einem verringerten Kapillardruck führt, wodurch sich wiederum die Migrationsgeschwindigkeit reduziert.

Weitere Untersuchungen von She & Sleep (1998) zeigen, dass es auch eine leichte Temperaturabhängigkeit der residualen Flüssigkeitssättigung gibt, die zu einer veränderten Form der Kapillardruck-Sättigungs-Funktion führt.

#### 5.4.1.7 Quelldruck

Es wurden für erhitzten Bentonit nach der Aufsättigung Quelldrücke gemessen, die um bis zu etwa 40% geringer waren, als für die nicht erhitzten Bentonite (4,9 bis 7,6 MPa) (Åkesson et al. 2012). Im TBT In-situ-Versuch ermittelten Quelldruckabnahmen waren bei 140 bis 150°C sehr ähnlich denen bei 90 bis 100°C (Åkesson et al. 2012), so dass sich anhand derzeitiger Datenlage prinzipiell keine zusätzliche Verminderung des Quelldruckes infolge erhöhter Temperatur feststellen lässt. Im LOT In-situ-Versuch wurden keine signifikanten Unterschiede bezüglich des Quelldruckes für die bis auf 125°C erhitzte und nicht erhitzte Bentonite festgestellt (Karnland et al. 2009).

Diese Ergebnisse zeigen kein konsistentes Bild der Quelldruckabhängigkeit von der Temperatur auf. Dies kann mit unterschiedlicher mineralogischer Zusammensetzung der untersuchten Tonmaterialien und daraus resultierender Auswirkung einer Temperaturerhöhung zu tun haben. Es wurde in der Arbeit von Herbert et al. (2011) aus den Versuchen mit unterschiedlichen Bentoniten schlussgefolgert, dass Quelldruck nicht nur vom Smektitgehalt eines Tons sondern auch von einer temperaturbedingten Bildung von Fe- und Si-Präzipitaten innerhalb der Smektitaggregate, die zu einer Reduktion des Quelldruckes führt, abhängt.

### 5.4.2 Chemische, Biologische und Mineralogische (CBM) Effekte

#### 5.4.2.1 Alteration von Smektiten

Obwohl der Reaktion eines Bentonits mit flüssigem Wasser bei Temperaturen von 150–250°C nur ein minimaler Rückgang seiner Quellfähigkeit bescheinigt wird, kann seine Wechselwirkung mit Wasserdampf bei solchen Temperaturen in einem irreversiblen Rückgang seiner Eigenschaft, osmotisch zu Quellen, resultieren (Couture 1985a). Dieser Rückgang hängt von der Temperatur und dem Wassergehalt eines Tons oder eines Ton/Sand Gemisches ab (Abb. 5.7).

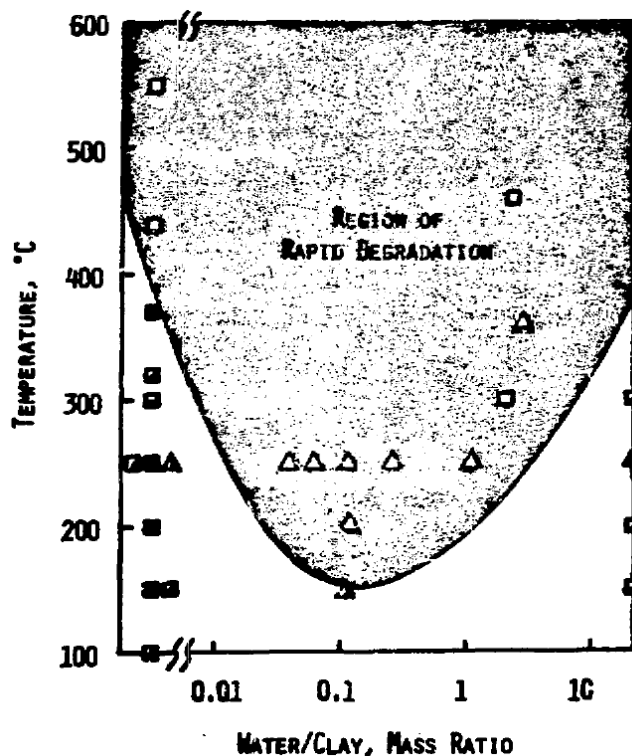


Abb. 5.7:  
Die schattierte Region grenzt die Temperaturen und Wassergehalte ab, bei denen ein schneller Rückgang der osmotischen Quellfähigkeit eines Tons oder eines Ton/Sand Gemisches erfolgen kann (Couture 1985b)

Als ein Mechanismus, der diese Beobachtung erklären kann, wurde eine Zementierung von einzelnen Tonmineralschichten durch die bei einer Tonalteration freigesetzte Silica vorgeschlagen (Wersin et al. 2007). Eine alternative Erklärung könnte auf dem folgenden

Mechanismus (Ouhadi et al. 2010) beruhen. Eine Erhitzung auf die Temperaturen  $\leq 150^{\circ}\text{C}$  führt zu einem partiellen ggf. vollständigen Verlust des Hydratationswassers der austauschbaren Kationen an den äußeren Oberflächen der Tonmineralteilchen (s. oben die Diskussion zur Dehydrierung quellfähiger Tonminerale im Abschnitt 5.4.1.1). Dies resultiert in einem Anstieg der Ionenkonzentration, einer entsprechenden Reduktion der Dicke der diffusen Doppelschicht um Tonmineralteilchen herum, einer Abnahme der Abstoßung zwischen einzelnen Tonmineralteilchen und ihrer Ausflockung. Dadurch wird der Betrag der Meso- und Makroporen zwischen Tonmineralteilchen zur Gesamtporosität und somit die Permeabilität des Bentonits vergrößert.

Es ist jedoch zu betonen, dass der Rückgang der osmotischen Quellfähigkeit der untersuchten Na-Bentonite durch die Wechselwirkung mit Wasserdampf nicht mit einem Rückgang des innerkristallinen Quellens der Smektite einherging (Couture 1985a, Couture 1985b). In den beiden letzteren Arbeiten wird festgehalten, dass Montmorillonite in Na-Bentoniten auch nach einer solchen Behandlung bis zu einem Schichtabstand von 1,9 nm quellen. Das innerkristalline Quellen der Smektite läuft durch einen sukzessiven Aufbau von bis zu drei Wasserlagen im Schichtzwischenraum – mit einem charakteristischen Schichtabstand von 1,9 nm – ab (Wilson et al. 2004). Die Aufnahme einer dritten Wasserlage zwischen die Montmorillonit-Schichten mit zwei vorhandenen Wasserlagen führte zu einer Quelldruckzunahme von 27 MPa (Madsen & Müller-Vonmoos 1989).

Eine Übertragung solcher mikroskopischen Veränderungen in einzelnen aus Tonmineralschichten bestehenden Tonmineralteilchen in die makroskopischen Quelldruckänderungen verbessert sich mit steigender Tonkompaktion. So wurden für Na- und Ca-Bentonite Quelldrücke von 4–7 und 25–40 MPa bei Trockendichten von jeweils 1,6 und 1,9 g/cm<sup>3</sup> gemessen (Madsen 1998). Dabei quellen Ca-Bentonite ausschließlich innerkristallin. Ferner betragen die Meso- und Makroporen zwischen Tonmineralteilchen in Na-Bentoniten einen deutlich höheren Anteil und Zwischenschichträume deutlich niedrigeren Anteil zur Gesamtporosität als in Ca-Bentoniten (Likos & Lu 2006). Dementsprechend führt das mikroskopische Quellen in einem Na-Bentonit vor allem zum Auffüllen von Meso- und Makroporen, das durch eine Erhitzung auf Temperaturen größer gleich  $150^{\circ}\text{C}$  verhindert wird. In einem Ca-Bentonit wird das mikroskopische Quellen hingegen weit effektiver in makroskopische Volumenänderungen übertragen. Daher kann erwartet werden, dass Ca-Bentonite auch nach einer Wechselwirkung mit Wasserdampf bei Temperaturen deutlich über  $150^{\circ}\text{C}$  den für die Funktion des Buffers notwendigen Quelldruck aufrechterhalten können. Ein entsprechender Nachweis liegt jedoch in der einschlägigen Literatur noch nicht vor.

Abschließend soll hinsichtlich dieses Prozesses festgehalten werden, dass in einem wichtigen Unterschied zum experimentellen Aufbau (Couture 1985a, Couture 1985b) Smektite im Nahfeld nicht instantan und nicht in einem geschlossenen System auf eine Temperatur von  $150^{\circ}\text{C}$  gebracht werden. Vielmehr wird nach der Einbringung der Abfälle die Temperatur in der Umgebung kontinuierlich ansteigen. Sowohl das Buffermaterial als auch, im Falle des Einlagerungskonzeptes NORD, das Verschlusselement der Bohrlöcher und ein Teil des durch die Auffahrung gestörten Tongesteins (Auflockerungszone und ungesättigte Zone) werden teilgesättigt sein. Dementsprechend wird direkt nach der Einlagerung der Fluidruck im Nahfeld nicht signifikant über 0,1 MPa liegen, und es kann eine nahezu vollständige Freisetzung des Wassers aus den lufttrockenen Na- und Ca-Smektiten bei Temperaturen von  $118\text{--}150^{\circ}\text{C}$  erwartet werden (Koster van Groos & Guggenheim 1984, Koster van Groos & Guggenheim 1987, Huang et al. 1994, Fernández et al. 2004). Laut diesen Arbeiten werden im Temperaturbereich  $150\text{--}200^{\circ}\text{C}$  Wassermengen kleiner gleich 1 Gew.-% bei Ca-Smektiten und kleiner 0,5 Gew.-% bei Na-Smektiten freigesetzt. Im darüber liegenden Temperaturbereich  $200\text{--}400^{\circ}\text{C}$  geht schließlich den Smektiten die restliche Wassermenge von etwa 1 Gew.-% verloren (Derkowski et al. 2012).



Im Nahfeld werden somit nicht wie in den Experimenten (Couture 1985a, Couture 1985b) ca. 7–8 Gew.-% des Wasserdampfes bei beispielsweise 150°C, sondern deutlich unter 0,5–1 Gew.-% wechselwirken (die Menge 0,5–1 Gew.-% verteilt sich über den ganzen Temperaturbereich von 150–200°C).

Als Schlussfolgerung bleibt festzuhalten, dass die Auswirkungen des Wasserdampfes auf die Quellfähigkeit eines Bentonits im Nahfeld als vernachlässigbar gering einzuschätzen sind.

#### 5.4.2.2 Mineralumwandlung

Eine intensive und lang andauernde Erhitzung kann quellfähige smektitische Tonminerale in nicht-quellfähige Illite umwandeln. Die Auswirkungen eines thermischen Ereignisses auf einen Smektit führenden Tonstein (Upper Pierre Shale, Colorado) haben Pytte & Reynolds (1989) an der Fraktion <0,5 µm untersucht. Obwohl die Autoren keine Angaben zur Korngrößenverteilung der Schichtsilikate geben, kann man davon ausgehen, dass in der Fraktion <0,5 µm die Hauptmenge der Smektite enthalten ist. In Abhängigkeit von der Entfernung zum Kontakt einer Basaltintrusion und damit zur Temperaturquelle nehmen die Illit-Gehalte von 90% Illit in Illit/Smektit Wechsellagerungen (I in I/S) bei 5 m Abstand und ca. 300°C auf 25% I in I/S bei 15 m Abstand und ca. 120°C ab (Pytte & Reynolds 1989, deren Abbildung 8.1). Dieser Ansatz ist in diesem Zusammenhang insofern von besonderer Bedeutung, als auch die Dauer der Temperaturerhöhung durch thermometamorphe Überprägung bekannt ist. Die Zeitspanne der Temperaturerhöhung um 20°C gegenüber der Gebirgstemperatur umfasst ca. 3.500 Jahre (Pytte & Reynolds 1989, deren Abbildung 8.2). Die ursprüngliche Gebirgstemperatur von ca. 30°C hatte sich also 10 000 Jahre nach dem thermometamorphen Ereignis wieder eingestellt.

Die zeitliche Auswertung der thermischen Überprägung als Funktion der jeweiligen Temperatur führte Pytte & Reynolds (1989) zu der Formulierung

$$S^4 = S_0^4 / (1 + 4 \cdot 74.2 \cdot t \cdot S_0^4 \cdot A \cdot e^{(-2490/T - E_a/RT)}) \quad (1)$$

$A = 5.2 \cdot 10^7 \text{ s}^{-1}$ ,  $E_a$  = Aktivierungsenergie (33 kcal/mol),  $S_0$  = Ausgangswert im Smektit,  $S$  = erreichter S-Anteil in I/S,  $t$  = Zeit (s),  $T$  = Temperatur (K),  $R$  = Allg. Gaskonstante (J/(mol K)).

Unter der Annahme von initial 90% Smektit in I/S wurden mittels Gleichung (1) die bei Temperaturen von 200, 150, 100 und 75°C erreichten Smektit-Gehalte als Funktion der Zeit berechnet und die Ergebnisse in Abb. 5.8 dargestellt.

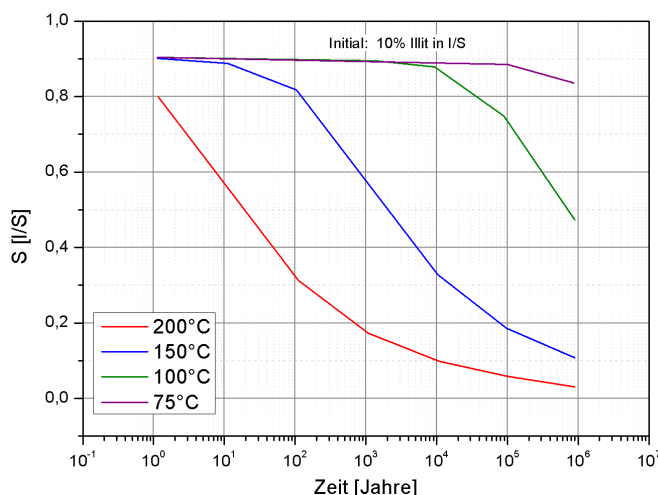


Abb. 5.8:  
Zusammenhang zwischen Gebirgstemperatur und Smektit in I/S-Wechsellagerungen als Funktion der Zeit in einer durch externen Wärmeeintrag beeinflussten Tonsteinformation; nach Pytte & Reynolds (1989).

Man erkennt in Abb. 5.8, dass bei Temperaturen von 200°C nach 20 Jahren die Hälfte des Smektiten zu Illit umgesetzt wird; bei 150°C sind dafür ca. 3 500 Jahre erforderlich. Bedenkt man, dass der Zeitbereich der Temperatur oberhalb von 100°C größenordnungsmäßig nur wenige hundert Jahre beträgt, so kann man davon ausgehen, dass keine nennenswerten Illitisierungen innerhalb des Buffermaterials zu erwarten sind.

Diese Aussage wird durch Laboruntersuchungen von Huang et al. (1993) bestätigt, die den K-Umsatz bei steigender Temperatur über die Zeit experimentell bestimmt und auf diese Weise ein Maß für die Reaktionskinetik der Illitisierungsreaktion erhalten haben. Die Berechnungen ergaben, dass bei K-Gehalten in der Lösung von 200 ppm eine nahezu vollständige Illitisierung erst nach 10 000 Jahren, also dem Ende des vom Endlager induzierten Temperaturimpulses, eintritt. Bei 50°C reichen selbst bei 1 000 ppm K in der Porenlösung eine Million Jahre nicht aus, den Prozess nennenswert in Gang zu setzen.

Wersin et al. (2007) kommen aufgrund der Daten für Illitisierung von natürlichen Bentonitablagerungen in Kinnekulle (Schweden), die etwa 1 000 Jahren den Temperaturen im Bereich 140–160°C durch eine Basaltintrusion ausgesetzt waren, zu einem ähnlichen Ergebnis. Es wird dabei festgestellt, dass eine Erhitzung des gesättigten Bentonits für 200 Jahre bei 150°C und einem unbegrenzten K-Angebot nur zu einer maximal fünfprozentigen Illitisierung führen wird.

Untersuchungen der wechselgelagerten Bentonite und Tongesteine im Nankai Graben deuten darauf hin, dass die höhere Porosität und der höhere Anteil organischen Materials in den Tongesteinen die Smektit-Illitisierung gegenüber den Bentoniten beschleunigen (Masuda et al. 2001). Für einen hochkompaktierten Buffer mit niedriger Porosität und geringen Anteil organischen Materials kann von einer langsamen Illitisierungskinetik ausgegangen werden.

Letztendlich bleibt noch festzuhalten, dass die Kalium-Verfügbarkeit für die Illitisierung von entscheidender Bedeutung ist. Daher wird die Illitisierung von z. B. Bentoniten, die arm an Kalium sind, durch die Kinetik der Kaliumzufuhr aus dem umliegenden Gebirge kontrolliert (Środoń 1999). Dementsprechend kann die Illitisierung in einem an Kalium armen Buffermaterial erst nach der Wiederaufsättigung der anstehenden Auflockerungszone einsetzen. Jedoch kann auch im Fall einer anschließenden ausreichenden Kaliumzufuhr aus dem Wirtsgestein bis zur abgeschlossenen Aufsättigung des Buffers nur eine stark verlangsamte Illitisierung erwartet werden, da die Kinetik und Ausmaß dieser Reaktion bei einer unvollständigen Porensättigung stark behindert ist (Whitney 1990). So wurden in der letzteren Arbeit innerhalb von 60 Tagen bei einem Druck von 100 MPa, einer Temperatur von 250°C und einem Ton/Wasser-Masseverhältnis von 1:1 43% des Smektiten in Illit umgewandelt, während diese Umwandlung bei einem Ton/Wasser-Masseverhältnis von 20:1 nur 18% betrug.

#### **5.4.2.3 Abiotische Hydrogensulfid Produktion**

Diese Hydrogensulfid Produktion in einem Tongestein bzw. tonhaltigen Material unter reduzierenden Bedingungen kann nach heutigem Kenntnisstand durch zwei Prozesse, thermochemische Sulfatreduktion (Cross et al. 2004, Truche et al. 2009) und H<sub>2</sub>-induzierte Pyritreduktion (Truche et al. 2013), zustande kommen.

Thermochemische Sulfatreduktion ist über geologische Zeiträume für Temperaturen ab 80°C nachgewiesen. Auf der Grundlage experimenteller Befunde (Truche et al. 2009) wird davon ausgegangen, dass bei einer Temperatur von 200°C die Halbwertszeit für die Umsetzung von Sulfat in der Gegenwart von molekularem Wasserstoff in der Größenordnung von 10 Jahren liegt, während sie bei 150°C etwa 580 Jahre beträgt. Nach Cross et al. (2004) kann die Hälfte des Sulfats im Tonporenwasser – ohne Einwirkung des molekularen Wasserstoffs

fes – zu korrosivem Hydrogensulfid innerhalb von ca. 1 650 Jahren bei einer Temperatur von 150°C und innerhalb von etwa 20 Jahren bei 200°C umgewandelt werden.

Jedoch setzt die thermochemische Sulfatreduktion voraus, dass Sulfat in gelöster Form vorliegt. Daher wäre im ungesättigten Buffer die Grundlage für ihren Ablauf teilweise bis vollständig entzogen. Mit der Sättigung des Buffers mit Sulfat-reichen Lösungen aus dem Wirtsgestein werden im Buffermaterial die Voraussetzungen für den Ablauf der thermochemischen Sulfatreduktion während des Zeitraums hoher Temperaturen, bedingt durch die eingelagerten Abfälle, vorliegen. Die durch Metallkorrosion oder Radiolyse verursachte Produktion von molekularem Wasserstoff kann diesen Prozess etwa um den Faktor 2–3 beschleunigen. Da die Kinetik der thermochemischen Sulfatreduktion jedoch deutlich langsamer ist als die Geschwindigkeit des Temperaturrückganges im Buffer, können die Auswirkungen dieses Prozesses als vernachlässigbar angesehen werden.

Bei Temperaturen kleiner gleich 150°C und  $H_2$ -Partialdrucken unter 3 MPa wird die Hydrogensulfidkonzentration in der flüssigen und gasförmigen Phase allein durch die Löslichkeit des Pyrits bestimmt und kann z. B. bei 1–2 Gew.-% an Pyrit im Tongestein, einem  $H_2$ -Partialdruck von 0,6 MPa und einer Temperatur von 150°C oder 90°C etwa 0,5 mmol/L bzw. 0,02 mmol/L betragen (Truche et al. 2013). Bei Temperaturen über 150°C und  $H_2$ -Partialdrucken über 3 MPa hingegen wird Pyrit ( $FeS_2$ ) innerhalb kürzester Zeit vollständig in Pyrrhotite ( $FeS_{1+x}$ ) mit gleichzeitiger Freisetzung von  $(1-x)$  Mole Hydrogensulfids per Mol Pyrit umgesetzt. Vorausgesetzt, dass die Temperatur im Pyrit-haltigen Buffer während des Temperaturimpulses vor dem Anstieg des  $H_2$ -Partialdruckes auf 3 MPa unter 150°C zurückgeht, können die Auswirkungen dieses Prozesses vernachlässigt werden. Der Prozess bedarf weiterhin keiner Betrachtung, wenn sichergestellt werden kann, dass im Buffer keine nennenswerten Mengen an Pyrit vorliegen. Dies könnte z. B. durch die Pyritoxidation im Ausbruchsmaterial und beizumischenden Bentonit vor der Herstellung von hoch kompaktierten Formsteinen (Ringscheiben) erreicht werden.

#### 5.4.2.4 Mikrobiellen Aktivität

Mikrobielle Prozesse können im Primärzustand des Tongesteins - aufgrund seiner hohen Konsolidierung und damit geringen Porosität während der post-sedimentären Entwicklung oder eines limitierten Angebots an Elektronendonatoren - extrem latent sein. Diese Einschränkungen werden jedoch durch die Auffahrung der Hohlräume des Grubengebäudes zwangsläufig, wenngleich auch nur teil- und zeitweise, aufgehoben.

Für das Einlagerungskonzept NORD beispielsweise, wird durch die Einbringung des Buffers, der Innen- und Außenliner und der Bohrlochverschlüsse in den Einlagerungsbohrlöchern sowie die Bildung der Auflockerungszone eine gewisse Zeit vergehen, bis die Wiederherstellung des Primärzustandes erreicht ist. Diese Aktivitäten werden Mikroumgebungen hinterlassen, z. B. Grenzflächen zwischen dem Innenliner und dem Buffer sowie zwischen einzelnen Ringsteinen des Buffers usw., die die Aktivität von Mikroorganismen fördern können. Mikroorganismen sind sowohl im Tongestein als auch in einzubringenden Tönen heimisch und können auch mit weiteren Materialien, durch Menschen und die Bewetterung ins Grubengebäude eingeschleppt und bei günstigen Bedingungen aktiv werden (Meleshyn 2011).

Es kann angenommen werden, dass einige wenige Wochen nach Verschluss des Endlagers der Sauerstoff im Grubengebäude durch mikrobielle Prozesse verbraucht wird (siehe z. B. Puigdomenech et al. 2001). Daraufhin werden, mangels relevanter Quellen des Nitrats und Mangans im Grubengebäude, vor allem Eisen(III)-reduzierende, Sulfat-reduzierende, Methan-produzierende und fermentative Mikroben die Entwicklung der mikrobiellen Aktivität im Grubengebäude bestimmen (Meleshyn 2011).

Die Fe(III)-reduzierenden Mikroben können bis etwa 121°C aktiv bleiben. Sie sind nicht auf organische Kohlenstoffverbindungen als Energiequelle angewiesen und können für diesen Zweck das Wasserstoffgas verwerten, das in einem Endlager durch Metallkorrosion, Radio-lyse oder mikrobielle Umsetzung von Mineralen erzeugt wird.

Fe(III)-reduzierende Mikroben kontrollieren bzw. leisten einen bedeutenden Beitrag zur Fe(III)-Reduktion in Untergrundsedimenten und können mehrere endlagerrelevante günstige Eigenschaften der Tonminerale infolge deren Umwandlung negativ beeinflussen (Meleshyn 2011). Sie wurden z. B. für die Umwandlung von Smektiten und Illiten des Oberkreide- bis Eozän-Tongesteins in die weltgrößte Lagerstätte des hochreinen Kaolins in den USA verantwortlich gemacht (Hurst & Pickering 1997). Obgleich sich diese mikrobielle Aktivität im Primärzustand der dadurch entstandenen Kaolin-Lagerstätte aufgrund der nicht mehr vorhandenen Elektronenakzeptoren auf extrem niedrige metabolische Raten reduziert haben muss, verursachte ihr Anstieg in Kaolinschlämmen die Notwendigkeit einer routinemäßigen Biozid-Zugabe zwecks Einhaltung des industriellen Toleranzlevels.

Ein relevantes Beispiel stellt auch der Nachweis der Aktivität von Sulfat-reduzierenden Mikroben in einem In-situ-Versuch im Opalinuston im Mont Terri Untertagelabor dar, in dem synthetisches Porenwasser fünf Jahre lang in einem Bohrloch zirkulierte (Wersin et al. 2011). Eine unbeabsichtigte Platzierung einer zersetzbaren Kohlenstoffquelle im Bohrloch (vermutlich, des Glycerols in Eh und pH-Elektroden), resultierte in einer Anregung der Aktivität von Sulfat-reduzierenden Mikroben und in einem Rückgang der Sulfatkonzentration in der Lösung auf ein Drittel – trotz seines kontinuierlichen Hineindiffundierens aus dem umgebenden Tongestein – und in einem Anstieg der Sulfidkonzentration auf bis zu 1,0 mmol/L. Beträchtliche Mengen an Sulfat-reduzierenden Mikroben und Sulfidkonzentrationen von bis zu 5,6 mmol/L wurden im Porenwasser zwischen dem Zementausbau des HADES-Untertagelabortunnels und dem angrenzenden Boom Clay beobachtet (Meleshyn 2011). Solche millimolaren Sulfidkonzentrationen können durch Fe(III)-Reduktion eine Umwandlung von quellfähigen Tonmineralen in nicht-quellfähige Minerale innerhalb von einigen Jahrtausenden bis Jahrtausenden bewirken (Raiswell & Canfield 1996).

Aufgrund der Aktivität von Methan-produzierenden Mikroben stieg die Methankonzentration im Porenwasser des zuvor angesprochenen In-situ-Versuches im Mont Terri Untertagelabor um drei Größenordnungen bis auf 0,7 mmol/L an (Wersin et al. 2011). Sie war somit vergleichbar mit der Methankonzentration von 1,1 mmol/L im Grundwasser eines mit Gaskondensat kontaminierten oberflächennahen sandigen Aquifers in Colorado, USA, in dem methanogene Mikroben als die wichtigste Acetat-konsumierende Spezies fungierte (Meleshyn 2011).

Methan-produzierende Mikroben können Fe(III) in der Tonmineralstruktur ebenfalls reduzieren (mit beispielsweise etwa 1,4 mmol/g Ton innerhalb von vier Wochen in Laborversuchen mit Tonsuspensionen) (Meleshyn 2011). Darüber hinaus können sie Methan und Wasserstoffgas aus metallischem Eisen in Kontakt mit Montmorillonit produzieren (Chastain & Kral 2010). Eine Beobachtung der um drei Größenordnungen höheren Methanproduktion und Korrosionsraten in einem Gemisch aus metallischem Eisenpulver und Boom Clay-Schlamm als in einem Gemisch aus Stahl und Boom Clay-Schlamm (Ortiz et al. 2002) kann als ein Zeugnis dieser Fähigkeit von Methan-produzierenden Mikroben interpretiert werden (Meleshyn 2011). Eine Inkubation von marinen Sedimenten mit Eisengranulat in einer weiteren Untersuchung zeigte auf, dass Methan-produzierende Mikroben Elektronen aus metallischem Eisen um mehr als eine Größenordnung schneller ziehen können als es bei einer abiotischen Korrosion durch Wechselwirkung mit Wasser zu erwarten ist (Dinh et al. 2004).

Während methanogene Mikroben bei Temperaturen von bis zu 122°C aktiv bleiben, können Sulfat-reduzierende Bakterien solche Temperaturen laut derzeitigen Erkenntnissen nur in einem inaktiven Zustand überleben. Sie haben allerdings nachgewiesenermaßen ein optima-

les Wachstum im Temperaturbereich von 80–95°C. Beide Mikrobenarten sind nicht auf CO<sub>2</sub> (oder Methyl) bzw. Sulfat als Elektronenakzeptoren angewiesen und können stattdessen Elektronen an Fe(III) in der Tonmineralstruktur abgeben. Sie können außerdem metallisches Eisen als Elektronendonator direkt verwerten.

Fermentation ist hingegen ein mikrobieller Prozess, in dem keine extrazellulären Elektronenakzeptoren für die Oxidation von organischem Material gebraucht werden und der in einer Akkumulation von reduzierten Stoffen wie H<sub>2</sub> und CO<sub>2</sub> sowie solcher niedrigmolekularer organischer Säuren wie Essig- und Ameisensäure resultiert (Meleshyn 2011). Durch die letzteren können einerseits die Aktivität von anderen Mikroben angeregt und andererseits die Korrosion von zementhaltigen Materialien stark beschleunigt werden (De Windt & Devillers 2010).

Die genannten mikrobiellen Prozesse können durch den Prozess der Biofilmbildung in ihrer Wirkung noch verstärkt werden, da dieser Prozess Mikroben eine effizientere Energie- und Nährstoffverwertung in einem gegen die äußeren Einwirkungen geschützten Raum sichert. Die Verfügbarkeit des Porenraums ist für alle angesprochenen Prozesse maßgeblich. Um diese in einem geplanten Endlager zu verringern, wurde beispielsweise von der für die Entsorgung der radioaktiven Abfälle in Kanada verantwortlichen Organisation der Einsatz eines Bentonit–Sand-Gemisches als Referenz-Nahfeldbarriere zugunsten eines reinen Bentonits verworfen, da der Porenraum so deutlich reduziert werden kann.

Mikrobiell beeinflusste Korrosion stellt einen weiteren mikrobiellen Prozess dar, deren Relevanz für ein Endlager für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle im Tongestein seit geraumer Zeit bekannt ist und der durch Sulfat-reduzierende Mikroben verursacht wird. Deren Aktivität kann die Korrosion von eisenhaltigen Materialien bis zu einer Rate von 600 µm pro Jahr erhöhen (Abb. 5.9) sowie eine gleichmäßige Korrosion in einen Lochfraß überführen. Die in den Sicherheitsanforderungen spezifizierte Forderung der Bergbarkeit über einen Zeitraum von 500 Jahren nach Verschluss des Endlagers erfordert eine entsprechende Standzeit der Behälter ohne dass deren Dichtheit durch Lochfraß zerstört wird.

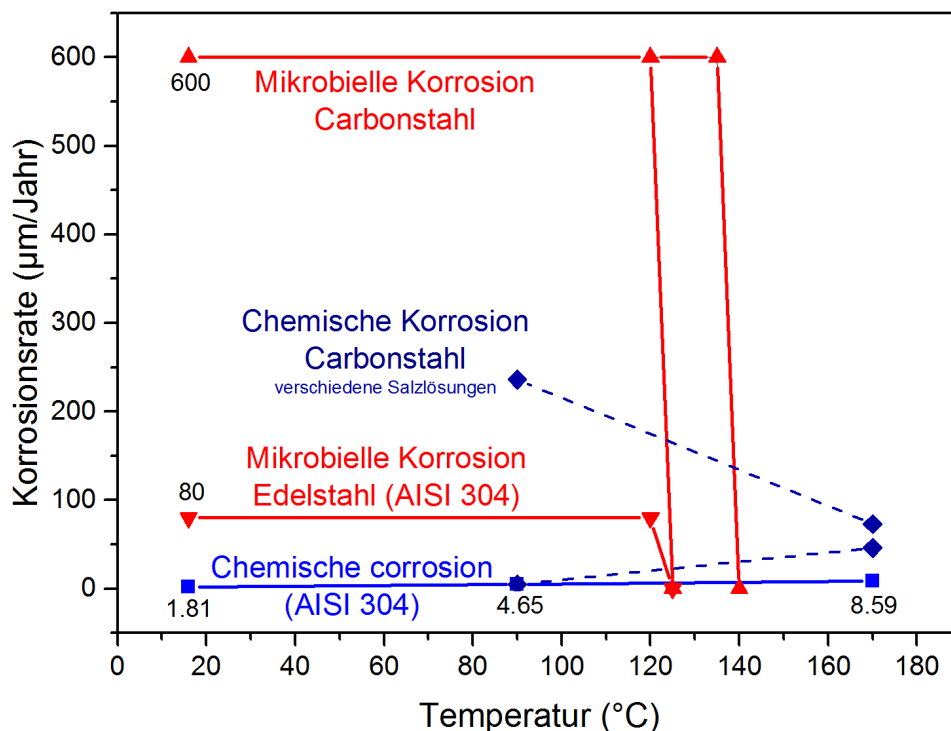


Abb. 5.9: Raten der chemischen und mikrobiellen Korrosion in Abhängigkeit von der Temperatur. Daten gemäß Kursten et al. (1997), Kursten (2004) und El Hajj et al. (2010)



Die Anforderungen der Rückholbarkeit und Bergung von wärmeentwickelnden radioaktiven Abfällen gehen auch mit spezifischen Endlagerkonzeptmerkmalen einher, wie z. B. die Verwendung der Sandverfüllung innerhalb des Innenliners mit einer im Vergleich zum Buffer deutlich erhöhten Porosität. Außerdem wird die Verwendung von Innen- und Außenlinern einen zusätzlichen Porenraum an den Grenzflächen zwischen dem Innenliner, dem Buffer und dem Außenliner schaffen, so dass Lebensraum für Mikroben vorhanden ist.

Temperaturen in der Behälterumgebung von mehr als 122°C führen zu Inaktivität und zum Absterben von Mikroben. Einige Mikroben sind dann noch in der Lage sogenannte Endosporen zu bilden (Nicholson et al. 2000), die noch kurzzeitig Temperaturen bis 140°C aushalten können (vgl. nachfolgendes Kapitel). Darüber hinaus gehende Temperaturen führen nach heutigem Wissen definitiv zu einem Absterben und damit zu einer Sterilisierung des Bereiches um die Behälter.

#### **5.4.2.5 Abschätzung hinsichtlich der bestmöglichen Minimierung der mikrobiellen Aktivität im Buffer bzw. in der Behälterumgebung (Artur Meleshyn)**

Untersuchungen der Kultivierbarkeit (in 7 bis 50 g/L Tonsuspensionen mit zugeführten Nährstoffen) von aus kompaktierten Bentoniten stammenden mikrobiellen Populationen deuteten zunächst auf die Einstellung der Aktivität von Sulfat-reduzierenden Bakterien in einem wassergesättigten Bentonit bei Dichten von über 1,5 g/cm<sup>3</sup> hin (Pedersen et al. 2000). Es wurde zudem einer modellhaften Betrachtung und einer mikroskopischen Sichtung des kompaktierten Bentonits entnommen, dass Sulfat-reduzierende Bakterien in einem wassergesättigten Bentonit bei Dichten von über 1,9 g/cm<sup>3</sup> weder überlebensfähig noch migrationsfähig sind (Pusch 1999). Diese Ergebnisse begründeten die Schlussfolgerung der Nagra im Entsorgungsnachweis (Nagra 2002), dass nur ein vernachlässigbarer Einfluss der Mikroben auf Behälterkorrosion und auf den Radionuklidtransport im hoch-kompaktierten Bentonit zu erwarten ist. Im Einklang mit diesen Ergebnissen wurde im schwedischen Endlagerkonzept vorbehaltlich der Bestätigung durch künftige Untersuchungen angenommen, dass sich im Buffer bei der für das Endlagerkonzept gewählten Trockendichte von 1,57 g/cm<sup>3</sup> bzw. Dichte von 2,0 g/cm<sup>3</sup> im wassergesättigten Zustand ein Quelldruck von mindestens 2 MPa einstellt, der jegliche mikrobielle Aktivität verhindern wird (SKB 2006).

Jedoch zeigten spätere Untersuchungen, dass die Aktivität von Sulfat-reduzierenden Bakterien in einem kompaktierten Bentonit mit der steigenden Dichte zwar abnimmt, jedoch nicht komplett eingestellt wird. So wurde eine Abnahme der für die Aktivität von Sulfat-reduzierenden Bakterien charakteristischen Sulfidproduktion um den Faktor von ca. 50 bei einer Zunahme der Bentonitdichte von 1,5 g/cm<sup>3</sup> auf 2,0 g/cm<sup>3</sup> in einem Versuch mit In-situ-Grundwasser im Äspö-Untertagelabor gemessen (Masurat et al. 2010). Im wassergesättigten kompaktierten Bentonitbuffer mit einer Dichte von 2,0 g/cm<sup>3</sup> aus den In-situ-Großversuchen LOT und CRT im Äspö-Untertagelabor wurden die Aktivität von Sulfat-reduzierenden Bakterien sowie Endosporen-bildende Sulfat-reduzierende Bakterien nachgewiesen (Chi Fru & Athar 2008).

Die mikrobielle Population im MX-80 Bentonit beträgt bei einer Trockendichte von 1,8 g/cm<sup>3</sup> (2,15 g/cm<sup>3</sup> im wassergesättigten Zustand) etwa  $1,5 \cdot 10^6$  Zellen/g Ton und unterscheidet sich kaum von den Populationsgrößen bei geringeren Trockendichten von 1,3 und 1,6 g/cm<sup>3</sup>, die den Bentonitdichten von jeweils 1,8 und 2,0 g/cm<sup>3</sup> im wassergesättigten Zustand entsprechen (Stroes-Gascoyne et al. 2011).

Für die Überlebensfähigkeit von Mikroben, derer Abmessungen in der Regel im Bereich von 0,5 bis 10 µm liegen (Stroes-Gascoyne et al. 2011), in kompaktierten Bentoniten, in denen der Anteil der Poren mit einem Durchmesser im Bereich von 0,1 bis zu einigen 10 µm denkbar gering ist (Abb. 5.10), wurden bislang folgende Erklärungen vorgeschlagen:

## Mikroben

- überleben in selten vorkommenden größeren Poren (Stroes-Gascoyne et al. 2007),
- transformieren sich in kleinere Formen (Mauclaire et al. 2007),
- kompensieren den äußeren mechanischen Druck durch den internen Zelldruck (Turgordruck) (Masurat et al. 2010).

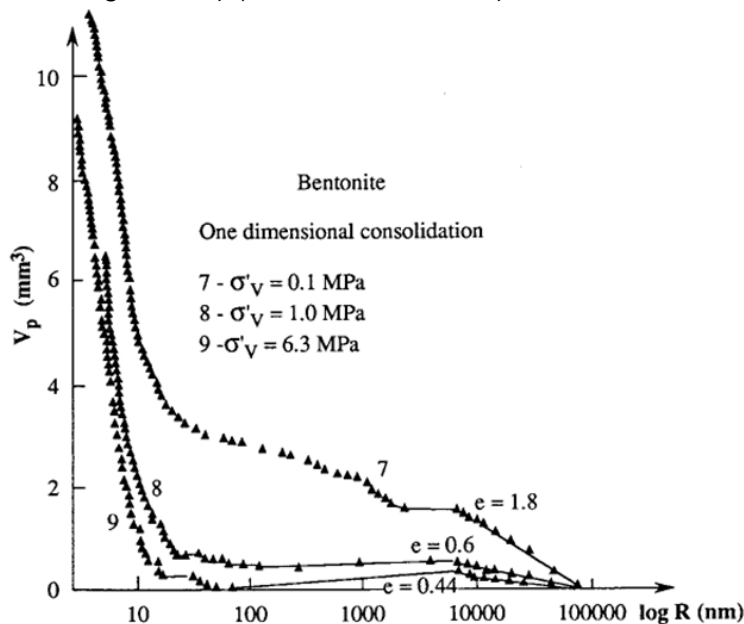


Abb. 5.10:  
Quecksilberporosimetrie eines einaxial  
kompaktierten Bentonits: Kumulatives  
Porenvolumen in Abhängigkeit vom  
Porendurchmesser (Hicher et al. 2000)

Die größeren Poren mit einem Durchmesser von 0,5 bis etwa 30–50  $\mu\text{m}$  in einem kompaktierten Bentonit sind charakteristisch für die Kontaktstellen zwischen den einzelnen Tonmineralaggregaten bzw. den letzteren und Körnern von Begleitmineralen des Bentonits wie z. B. Quarz (Lloret & Villar 2007, Přikryl & Weishauptová 2010).

Eine Transformation zu kleineren Formen kann durch eine Fragmentierung, d. h. Zellteilung ohne Zellwachstum, oder durch eine kontinuierliche Volumenabnahme stattfinden und kann zu einer Volumenreduktion um bis zu 60–70% innerhalb von Stunden (Kjelleberg & Hermansson 1984) bzw. Wochen (Caccavo et al. 1996) führen. Die Entwicklungsfähigkeit (Vitalität) der Mikroben bleibt dabei erhalten. Als Auslöser für eine solche Transformation dient der Nährstoffmangel. Zur Überwindung eines Nährstoffmangels können sich Mikroben in einem ähnlichen Vorgang mittels Zellteilung durch Porenöffnungen mit einem Durchmesser, der um 10 bis 50% kleiner ist als der von Mikroben, durchzwängen (Männik et al. 2009).

Der äußere mechanische Druck in einem gesättigten Buffermaterial wird in der Größenordnung 7–8 MPa zu erwarten sein (Masurat et al. 2010, Delage et al. 2010). Zum Vergleich beträgt der derzeit akzeptierte obere Drucklimit für das Wachstum von Mikroben 120 MPa und für ihre Vitalität 800 bis 900 MPa (Vanlint et al. 2011). Mikroben, für die kleinere hydrostatische Drücke von z. B. 200 MPa in salzfreien Lösungen letal sind, überleben solche Drücke, wenn der Salzgehalt der Lösung auf 4 g/kg NaCl erhöht wird (Molina-Höppner et al. 2004). Bemerkenswert dabei ist, dass solche Salzkonzentrationen für die in der letzten Arbeit untersuchten Mikroben unter atmosphärischem Druck letal sind.

Eine weitere Eigenschaft einiger Bakterienarten, die ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber ungünstigen Umgebungsbedingungen erhöht, ist die Bildung von Endosporen. Sie wird durch das Mangel an leicht verwertbaren Formen des Kohlenstoffs, Stickstoffs bzw. Phosphors in der lokalen Umgebung eines zur solchen Bildung fähigen Bakteriums ausgelöst (Nicholson et al. 2000). Die Temperaturen, die für Bakterien im Endosporen-Zustand letal sind, liegen um 30–40°C höher als die, die für Bakterien im aktiven Zustand letal sind.



(Nicholson et al. 2000). Dabei ist die Überlebensdauer der Endosporen unter trockenen Umgebungsbedingungen um etwa Faktor 1000 höher als unter feuchten Umgebungsbedingungen (Abb. 5.11)

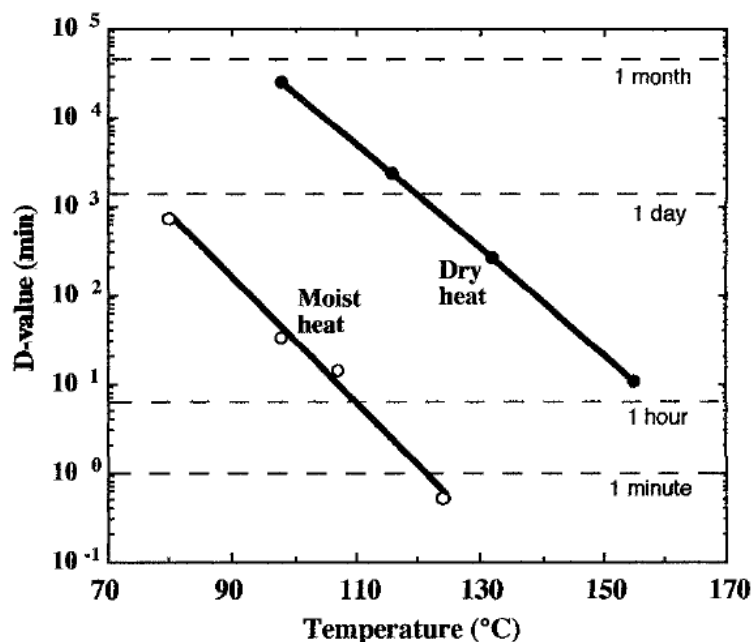


Abb. 5.11:  
Temperaturbehandlungszeiten (min),  
die zu einer zehnfachen Abnahme der  
Endosporenanzahl der *Bacillus subtilis*  
führen, in Abhängigkeit von der  
Temperatur einer trockenen bzw.  
feuchten thermischen Behandlung  
(Nicholson et al. 2000)

Die oberste Temperaturgrenze für die Aktivität von Sulfat- und Fe(III)-reduzierenden Bakterien liegt bei etwa 95°C (Weber & Jørgensen 2002) bzw. 121°C (Kashefi & Lovley 2004). Da sowohl Sulfat- als auch Eisen(III)-reduzierende Bakterien (jedoch nicht die Methanproduzierende Archaeen) Endosporen bilden können (Chi Fru & Athar 2008, Slobodkin et al. 1999), wird demnach eine relativ kurzzeitige thermische Behandlung bei etwa 150°C benötigt, um etwaige Endosporen in einem Material zu eliminieren. Mit ansteigender Behandlungsdauer kann von einer Abnahme der dafür benötigten Behandlungstemperatur ausgegangen werden, da z. B. nur äußerst geringe und keine Mengen an mikrobiellen Biomasse in Sedimentgesteinsschichten vorgefunden wurden, die eine Paläotemperatur von 140°C bzw. 145°C während ihrer Entstehungsgeschichte erfahren haben (Colwell et al. 1997).

Aus der vorausgehenden Diskussion lässt sich folgende Abschätzung hinsichtlich der bestmöglichen Minimierung des Ausmaßes der potentiellen mikrobiellen Aktivität im Buffermaterial bzw. in der Behälterumgebung aufstellen:

- Möglichst geringer Gehalt an organischem Kohlenstoff, um die wichtigste Nährstoffquelle zu begrenzen.
- Die Einbautrockendichte soll so gewählt werden, dass die Dichte im wassergesättigten Zustand nach dem Quellen eines Buffers in die etwaigen Resthohlräume nicht den Wert von 2,0 g/cm<sup>3</sup> unterschreitet (bei einem nicht vorhandenen Resthohlraumvolumen und einer Korndichte des Bentonits von 2,75 g/cm<sup>3</sup> entspräche dieser Wert einer Einbautrockendichte von 1,6 g/cm<sup>3</sup>). Eine höhere Dichte kann zu einer weiteren Reduktion der potentiellen mikrobiellen Aktivität führen. Die Anforderung an die Einbautrockendichte kann ggf. durch einen möglichst hohen Montmorillonitgehalt im Bentonit etwas gelockert werden (wegen des charakteristischen Porendurchmessers).
- Eine thermische Behandlung des Bentonits – vorzugsweise nach dem Einbau (wegen der unvermeidlichen bakteriellen Kontamination nach einer Einbauort-fernen Behandlung) – bei mindestens 125°C, um Endosporen von Sulfat-reduzierenden Bakterien

zu eliminieren, und mindestens 150°C, um Endosporen von Eisen(III)-reduzierenden Bakterien zu eliminieren, einige Stunden bis Tage (falls der Buffer im feuchten Zustand eingebaut wird) bzw. einige Monate bis Jahre (falls der Buffereinbau im extrem trockenen Zustand erfolgt). Mit ansteigender Behandlungsdauer kann eine geringere Behandlungstemperatur gewählt werden.

### 5.4.3 Bewertung der Effekte

Gemäß den oben beschriebenen Untersuchungsergebnissen lässt sich folgendes festhalten: Prinzipiell führt die Reduzierung einer Wasserlage zu einer Verringerung des Quelldruckes und zu einer leichten Erhöhung des Porendruckes. Die entsprechende Verringerung des Quelldruckes ist in dem zu betrachtenden Temperaturbereich reversibel. Im Rahmen der In-situ-Versuche TBT und LOT im Äspö URL konnte dieser Prozess allerdings nicht nachgewiesen werden.

Der Siedepunkt von Wasser verschiebt sich ausgehend von 100°C unter Normalbedingungen bis hin zu etwa 280°C nach Wiederherstellung des ungestörten Drucks im Einlagerungsniveau, wobei der stärkste Anstieg bereits im unteren Druckniveau erfolgt. Das heißt, dass bereits ein kleiner Druckanstieg zu einer deutlichen Erhöhung der Siedetemperatur führt. Im Porenraum vorhandenes Wasser würde bei atmosphärischem Druck bei 100°C siedend und durch die thermische Expansion der Gasphase den Porendruck erhöhen. Mit dieser Druckerhöhung geht auch eine Erhöhung der Siedetemperatur einher, und der Verdampfungsprozess kommt zum Erliegen, wenn der mit der vorliegenden Temperatur korrespondierende Dampfdruck erreicht ist. Der Prozess des Verdampfens von Wasser ist daher zeitlich deutlich limitiert.

Im In-situ-Versuch TBT (Temperature Buffer Test) im Untertagelabor Äspö wurden für den bei Temperaturen von bis zu etwa 140°C erhitzten Bentonit im Vergleich zum nicht erhitzten Bentonit eine erhöhte Bruchfestigkeit und Steifigkeit festgestellt. Dieselbe Beobachtung wurde auch für die auf 125°C erhitzte Bentonite im In-situ-Versuch LOT ebenfalls im Untertagelabor Äspö gemacht. Eine mechanische Schwächung konnte nicht nachgewiesen werden.

Die Wärmeleitfähigkeit von Na-Bentoniten nimmt bis etwa 120°C für die nicht getrockneten Proben ab. Die Abnahme der Wärmeleitfähigkeit ist bedingt durch die Freisetzung von Porenwasser. Oberhalb von etwa 120°C steigt die Wärmeleitfähigkeit durch den verbesserten Kontakt der Mineralmatrix leicht an. Die Veränderung der thermischen Eigenschaften ist vernachlässigbar gering.

Die Durchlässigkeit für Wasser eines über mehrere Jahre auf bis zu 150°C erhitzten Na-Bentonits im TBT In-situ-Versuch im Äspö URL unterschied sich nicht signifikant von der hydraulischen Durchlässigkeit nicht erhitzter Bentonite. Im LOT In-situ-Versuch im Äspö URL wurden keine signifikanten Unterschiede in der Wasserpermeabilität für die bis auf 125°C erhitzte und nicht erhitzte Bentonite festgestellt. Eine Veränderung der Permeabilität kann als nicht relevant eingestuft werden.

Untersuchungen zeigen, dass Kapillardruck-Sättigungsbeziehungen einer leichten Temperaturabhängigkeit unterliegen. Dies führt zu einer geringfügigen und als vernachlässigbar anzusehenden Änderung der Geschwindigkeit der Aufsättigung.

Die Alteration von Smektiten bei erhöhten Temperaturen hängt sowohl im Fall der Wechselwirkung mit dem Wasserdampf als auch im Fall der Illitisierung entscheidend von der Verfügbarkeit des Wassers, bzw. des Wassersättigungsgrades des Tons, ab. Nicht minder wichtig ist im ersteren Fall die Art des Zwischenschichtkations in Smektiten und im letzteren Fall die Verfügbarkeit des Kaliums und die Dauer des Temperaturimpulses durch die eingebrachten Abfälle. Bei Temperaturen unter 150°C ist jedoch unabhängig von der Art des Zwischenkations und der Verfügbarkeit des Wassers und des Kaliums sowie in Anbetracht der auf höchstens ein bis zwei Tausend Jahre begrenzten Dauer des hohen Temperaturle-

vels keine Beeinträchtigung des Buffers zu erwarten. Im Bereich des Bohrloch-Verschlusselementes im Falle der vertikalen Bohrlochlagerung (Konzept NORD) werden kaum Temperaturen oberhalb von 100°C erreicht, so dass in diesem Element keine Alterationen zu erwarten sind.

Zwecks einer erhöhten Alterationsbeständigkeit von Buffermaterialien bei Temperaturen über 150°C empfiehlt sich die Verwendung eines Kalium-armen Tonmaterials mit Calcium als Zwischenschichtkation der Smektitkomponente. In diesem Fall kann ebenfalls von keiner Beeinträchtigung des Buffers ausgegangen werden, vorausgesetzt, dass die Temperatur zum Zeitpunkt der Aufsättigung mit dem Wasser aus dem anstehenden Tongestein oder dem Grubengebäude unter den Wert von 150°C zurückgeht.<sup>2</sup>

Die Erfüllung dieser Bedingung wird auch verhindern, dass eine abiotische Hydrogensulfid Produktion durch entweder thermochemische Sulfatreduktion oder H<sub>2</sub>-induzierte Pyritreduktion bei Temperaturen über 150°C eine Beeinträchtigung des Buffers verursachen können. Dies wird im Fall der H<sub>2</sub>-induzierten Pyritreduktion dadurch sichergestellt, dass vor der Aufsättigung des Buffers und somit vor dem Einsetzen einer nennenswerten Eisenkorrosion kein Anstieg des H<sub>2</sub>-Partialdruckes auf Werte über 3 MPa zu besorgen ist. Bei Temperaturen unter 150°C können die Auswirkungen der thermochemischen Sulfatreduktion vernachlässigt werden, da ihre Kinetik deutlich langsamer ist als die Geschwindigkeit des Temperaturrückganges im Buffer. Die Auswirkungen der H<sub>2</sub>-induzierten Pyritreduktion sind bei Temperaturen unter 150°C bzw. in einem Pyrit-armen Tonmaterial nicht zu betrachten.

Hinsichtlich der Stabilität des Betonwiderlagers kann festgehalten werden, dass seine mechanische Stabilität je nach Zuschlagstoff im Temperaturbereich über 300°C liegt. Eine Rissbildung kann im Beton ab ca. 200°C erwartet, während eine Permeabilitätssteigerung des Betons, der nicht über 80% seiner Druckfestigkeit beansprucht ist, ab 150°C zu erwarten ist. Die wasserungsverlustbedingte Mikrorissbildung im Beton kann bei der Verwendung eines Betons mit einer Permeabilität von 10<sup>-20</sup>–10<sup>-18</sup> m<sup>2</sup> ab 150–175°C erwartet werden.

---

<sup>2</sup> Als Orientierungswert für die Aufsättigungsdauer eines kompaktierten Bentonitversatzes im Nahfeld können etwa 100 Jahren entsprechend dem Nagra-Konzept der Endlagerung von hochaktiven Abfällen im Opalinuston genannt werden (Johnson & King 2008).

## 6 Literaturverzeichnis

- Akesson, M. (2012). Temperature Buffer Test. Technical Report, SKB and Clay Technology.
- Baer, J. (1972): Dynamics of fluids in porous media. Elsevier, Philadelphia.
- Bates, J., Bradley, C., Buck, E., Cunnane, J., Ebert, W., Feng, X., et al. (1994). High-level waste borosilicate glass: a compendium of corrosion characteristics, Volume II. Tech. rep., United States Department of Energy, Office of Waste Management, USA.
- Bechthold, W., Smailos, E., Heusermann, S., Bollingerfehr, W., Bazargan Sabel, B., Rothfuchs, T., Kamlot, P., Grupa, J., Olivella, S., Hansen, F.D. (2004): Backfilling and sealing of underground repositories for radioactive waste in salt (Bambus II project), EUR 20621EN, European Commission, Luxembourg.
- Bennion, B. & Bachu, S., 2006. The impact of Interfacial Tension and Pore-Size Distribution/Capillary Pressure Character on CO<sub>2</sub> Relative Permeability at Reservoir Conditions on CO<sub>2</sub>-Brine Systems (SPE99325), Tulsa, Oklahoma: Society of Petroleum Engineers.
- BMU (2010): Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit. Stand: 30. September 2010, Bonn.
- Berusch, A. and Gomberg, S. and Charles, C. (1993). Waste acceptance criteria for the DOE's vitrified high-level waste form, DOE, United States.
- Buntebarth, G. (2004). Bestimmung Thermophysikalischer Eigenschaften an Bentonit-Proben. Tech. rep., Geophysikalisch-Technisches Büro, Clausthal-Zellerfeld.
- Busch, K.-F., Luckner, L., & Tiemer, K. (1993). Geohydraulik, Lehrbuch der Hydrogeologie, Band 3. Gebrüder Bornträger, Berlin/Stuttgart.
- Caccavo Jr., F., Ramsing N. B., Costerton, J. W. (1996): Morphological and metabolic responses to starvation by the dissimilatory metal-reducing bacterium *Shewanella alga* BrY. Applied Environmental Microbiology 62, 4678–4682.
- Chastain, B. K., & Kral, T. A. (2010). Zero-valent iron on Mars: an alternative energy source for methanogens. Icarus, 208, 198–201.
- Chi Fru, E., Athar, R. (2008): In situ bacterial colonization of compacted bentonite under deep geological high-level radioactive waste repository conditions. Applied Microbiology and Biotechnology 79, 499–510.
- Cho, W.-J., Lee, J.-O., & Kang, C.-H. (2000). Influence of temperature elevation on the sealing performance of a potential buffer material for a high-level radioactive waste repository. Annals of Nuclear Energy, 27, 1271–1284.
- Colwell, F. S., Onstott, T. C., Delwiche, M. E., Chandler, D., Fredrickson, J. K., Yao, Q. J., McKinley, J. P., Bone, D. R., Griffiths, R., Phelps, T. J., Ringelberg, D., White, D. C., LaFreniere, L., Balkwill, D., Lehman, R. M., Konisky, J., Long, P. E. (1997): Microorganisms from deep, high temperature sandstones: constraints on microbial colonization. FEMS Microbiology Reviews 20, 425–435.
- Couture, R. A. (1985a). Steam rapidly reduces the swelling capacity of bentonite. Nature, 318, 50–52.
- Couture, R. A. (1985b). Rapid increases in permeability and porosity of bentonite-sand mixtures due to alteration by water vapor. In: Scientific Basis for Nuclear Waste Management VIII (eds. Jantzen, C. M., Stone, J. A., & Ewing, R. C.), Materials Research Society, Pittsburgh, 515–522.
- Cross, M. M., Manning, D. A., Bottrell, S. H., & Worden, R. H. (2004). Thermo-chemical sulphate reduction (TSR): experimental determination of reaction kinetics and implications of the observed reaction rates for petroleum reservoirs. Organic Geochemistry, 35, 393–404.
- De Windt, L., & Devillers, P. (2010). Modeling the degradation of Portland cement pastes by biogenic organic acids. Cement and Concrete Research, 40, 1165–1174.
- Delage, P., Cui, Y. J., Tang, A. M. (2010): Clays in radioactive waste disposal. Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering 2, 111–123.
- Derkowski, A., Drits, V. A., & McCarty, D. K. (2012). Rehydration of dehydrated-dehydroxylated smectite in a low water vapor environment. American Mineralogist, 97, 110–127.
- Dinh, H. T.; Kuever, J.; Musmann, M.; Hassel, A. W.; Stratmann, M.; Widdel, F.: Iron corrosion by novel anaerobic microorganisms. Nature 427, 829–832, 2004. El Hajj, H., Abdelouas, A., Grambow, B., Martin, C. & Dion, M.: Microbial corrosion of P235GH steel under geological conditions. Physics and Chemistry of the Earth 35, 248–253, 2010.
- Fernández, A. M., Baeyens, B., Bradbury, M., Rivas, P. (2004). Analysis of the porewater chemical composition of a Spanish compacted bentonite used in an engineered barrier. Physics and Chemistry of the Earth, 29, 105–118.

- Gevantman, L.H. (ed.) (1981): Physical Properties Data for Rock Salt. National Bureau of Standards Monograph 167, Washington.
- Gießerei-Lexikon (2013). [www.giessereilexicon.com](http://www.giessereilexicon.com).
- Grant, S., & Salehzadeh, A. (1996). Calculation of temperature effects on wetting coefficients of porous solids and their capillary pressure functions. *Water Resources Research*, 32(2), 261-270.
- Herbert, H.-J., Kasbohm, J., Lan, N. T., Meyer, L., Thao, H. T. M., & Xie, M. (2011). Fe-Bentonite. Experiments and modeling of the interactions of bentonites with iron. Report GRS-295, BMWi-FKZ 02 E 10538, GRS mbH, Braunschweig.
- Hicher, P. Y., Wahyudi, H., Tessier, D. (2000): Microstructural analysis of inherent and induced anisotropy in clay. *Mechanics of Cohesive-Frictional Materials* 5, 341–371.
- Huang, W., Longo, J., & Pevear, D. (1993). An experimentally derived kinetic model for smectite-to-illite conversion and its use as a geothermometer. *Clays Clay Miner*, 41, 162-177.
- Huang, W.-L., Bassett, W. A., & Wu, T.-C. (1994). Dehydration and hydration of montmorillonite at elevated temperatures and pressures monitored using synchrotron radiation. *American Mineralogist*, 79, 683–691.
- Hurst, V. J., & Pickering, Jr. S. M. (1997). Origin and classification of Coastal Plain kaolins, southeastern USA, and the role of groundwater and microbial action. *Clays and Clay Minerals*, 45, 274–285.
- Jacinto, A. C., Villar, M. V., Gómez-Espina, R., & Ledesma, A. (2009): Adaptation of the van Genuchten expression to the effects of temperature and density for compacted bentonites. *Applied Clay Science* 42, 575–582.
- Jobmann, M. & Lommerzheim, A. (2015): Endlagerkonzept sowie Verfüll- und Verschlusskonzept für das Standortmodell SÜD, Technischer Bericht, DBE TECHNOLOGY GmbH, TEC-11-2014-Z, Peine.
- Jobmann, M., Meleshyn, A., Maßmann, J., Polster, M. (2015): Ableitung und quantitative Formulierung der Integritätskriterien für die geologische Barriere zur Verwendung im Rahmen der Nachweismethodik. Technischer Bericht, DBE TECHNOLOGY GmbH, TEC-08-2013-AP.
- Karnland, O., Olsson, S., Dueck, A., Birgersson, M., Nilsson, U., Hernan-Håkansson, T., et al. (2009). Long term test of buffer material at the Äspö Hard Rock Laboratory, LOT project. Final report on the A2 test parcel. Final Report, SKB.
- Kashefi, K., Lovley, D. R. (2004): Extending the upper temperature limit for life. *Science* 301, 934.
- King, F. (2008): Corrosion of carbon steel under anaerobic conditions in a repository for SF and HLW in Opalinus Clay. Nagra Technical Report, NTB 08-12, Wetingen, Switzerland.
- Kjelleberg, S., Hermansson, M. (1984): Starvation-Induced Effects on Bacterial Surface Characteristics. *Applied Environmental Microbiology* 48, 497–503.
- Koster van Groos, A., & Guggenheim, S. 1987a) The effect of pressure on the dehydration reaction of interlayer water in Na-montmorillonite (SWy-1). *American Mineralogist*, 69, 872–879.
- Koster van Groos, A., & Guggenheim, S. 1987a) Dehydration of a Ca-Mg-exchanged montmorillonite (SWy-1) at elevated pressures. *American Mineralogist*, 72, 292–298.
- Kursten, B., Cornélis, B., Labat, S., Van Iseghem, P. (1997): Completion of the corrosion programme in Boom clay - in situ experiments, European Commission Report EUR 17105 EN.
- Kursten, B. (2004): Results from corrosion studies on metallic components and instrumentation installed in the OPHÉLIE mock-up. Presentation on EIG EURIDICE' OPHÉLIE Day, June 10, 2004
- Likos, W. J., & Lu, N. (2006). Pore-scale analysis of bulk volume change from crystalline interlayer swelling in Na<sup>+</sup>- and Ca<sup>2+</sup>-smectite. *Clays and Clay Minerals*, 54, 515–528.
- Lloret, A., Villar, M. V. (2007): Advances in the knowledge of the thermo-hydromechanical behaviour of heavily compacted "Febex" bentonite. *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 701–715.
- Lommerzheim, A. & Jobmann, M. (2015): Endlagerkonzept sowie Verfüll- und Verschlusskonzept für das Standortmodell NORD, Technischer Bericht, DBE TECHNOLOGY GmbH, TEC-08-2014-Z, Peine.
- Madsen, F. T., & Müller-Vonmoos, M. (1989). The swelling behavior of clays. *Applied Clay Science*, 4, 143–156.
- Madsen, F. T. (1998). Clay mineralogical investigations related to nuclear waste disposal. *Clay Minerals*, 33, 1009-129.
- Masuda, H., Peacor, D. R., & Dong, H. (2001). Transmission electron microscopy study of conversion of smectite to illite in mudstones of the Nankai Trough: contrast with coeval bentonites. *Clays and Clay Minerals*, 49, 109–118.



- Masurat, P., Eriksson, S., Pedersen, K. (2010): Microbial sulphide production in compacted Wyoming bentonite MX-80 under in situ conditions relevant to a repository for high-level radioactive waste. *Applied Clay Science* 47, 58–64.
- Maucalre, L., McKenzie, J. A., Schwyn, B., Bossart, P. (2007): Detection and cultivation of indigenous microorganisms in Mesozoic claystone core samples from the Opalinus Clay formation (Mont Terri rock laboratory). *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 232–240.
- Männik, J., Driessen, R., Galajda, P., Keymer, J. E., Dekker, C. (2009): Bacterial growth and motility in sub-micron constrictions. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America* 106, 14861–14866.
- Meleshyn, A. (2011). Microbial processes relevant for the long-term performance of radioactive waste repositories in clays. BMWi-FKZ 02 E 10548, Report GRS-291, GRS mbH, Braunschweig.
- Molina-Höppner, A., Doster, W., Vogel, R.F. & Gänzle, M.G. (2004). Protective Effect of Sucrose and Sodium Chloride for *Lactococcus lactis* during Sublethal and Lethal High-Pressure Treatments, *Applied and Environmental Microbiology*, Vol. 70, No. 4,, p. 2013–2020, American Society for Microbiology.
- Müller, W., Morlock, G., Gronemeyer, C. (1992): Produktion und Verbleib von Gasen im Grubengebäude eines salinaren Endlagers, Statusbericht, GSF-Bericht 3/92, GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Neuherberg.
- Nagra (2002): Projekt Opalinus Clay: The long-term safety of a repository for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste sited in the Opalinus Clay of the Züricher Weinland. Nagra, NTB 02-05, Wettingen.
- Nagra (2004): Effects of Post-Disposal Gas Generation in a Repository for Spent Fuel, High-level Waste and Long-Lived Intermediate Waste sited in Opalinus Clay, Nagra, NTB 04-06, Wettingen.
- Navarro, M. (2013): Modelling Gas and Water Flow through Dilating Pathways in Opalinus Clay. The HG-C and HG-D Experiments. A Study within the Euratom 7th Framework Programme Project FORGE. GRS-306, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Köln.
- Nicholson, W. L., Munakata, N., Horneck, G., Melosh, H., J., Setlow, P. (2000): Resistance of *Bacillus* endospores to extreme terrestrial and extraterrestrial environments. *Microbiology and Molecular Biology Reviews* 64, 548–572.
- Nowak, T. & Maßmann, J. (2013). Endlagerstandortmodell Nord – Teil III: Auswahl von Gesteins- und Fluideigenschaften für numerische Modellberechnungen im Rahmen des Langzeitsicherheitsnachweises. Project AnSichT – Methodenentwicklung und Anwendung eines Sicherheitsnachweiskonzeptes für einen generischen HAW-Endlagerstandort im Tonstein. Techn. rep., BGR.
- ONDRAF/NIRAS (2001). SAFIR 2 Safety and feasibility interim report 2, ONDRAF/NIRAS, Brussels.
- optiSLang (2014). Methods for multi-disciplinary optimization and robustness analysis. Dynardo GmbH, Weimar
- Ortiz, L., Volckaert, G., & Mallants, D. (2002). Gas generation and migration in Boom Clay, a potential host rock formation for nuclear waste storage. *Engineering Geology* 64, 287–296.
- Ouhadi, V. R., Yong, R. N., Goodarzi, A. R., & Safari-Zanjani, M. (2010). Effect of temperature on the re-structuring of the microstructure and geo-environmental behaviour of smectite. *Applied Clay Science*, 47, 2–9.
- Pedersen, K., Motamedi, M., Karnland, O., Sandén, T. (2000): Mixing and sulphate reducing activity of bacteria in swelling, compacted bentonite clay under high-level radioactive waste repository conditions. *Journal of Applied Microbiology* 89, 1038–1047.
- Přikryl, R., Weishauptová, Z. 2010. Hierarchical porosity of bentonite-based buffer and its modification due to increased temperature and hydration. *Applied Clay Science* 47, 163–170.
- Pruess, K., Oldenburg, C., Moridis, G. (2012): TOUGH2 User's Guide, Version 2. LBNL-43134, Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley.
- Pruess, K., Oldenburg, C., Moridis G. (1999). TOUGH2 User's Guide, Version 2.0, Report LBNL-43134. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, CA
- Pusch, R. 1999. Mobility and survival of sulphate-reducing bacteria in compacted and fully water saturated bentonite – microstructural aspects. SKB Technical Report TR 99-30, Svensk Kärnbränslehantering AB, Stockholm.
- Puigdomenech, I. et al. (2001). O<sub>2</sub> depletion in granitic media. Report TR-01-05, Svensk Kärnbränslehantering AB, Stockholm.
- Pytte, A., & Reynolds, R. (1989). The thermal transformation of smectite to Illite. In Naer MC & McCulloh, T.H. (eds.): *Thermal History of Sedimentary Basins*, Chapter 8:133-140. Springer, New York.



- Raiswell, R., & Canfield, D. E. (1996). Rates of reaction between silicate iron and dissolved sulfide in Peru Margin sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 60, 2777–2787.
- Reinhold, K., Jahn, S., Kühnlenz, T., Ptock, L., Sönke, J. (2013): Endlagerstandortmodell Nord (An-SichT) – Teil I: Beschreibung des geologischen Endlagerstandortmodells, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, Hannover.
- Richter, F. (2010). Die physikalischen Eigenschaften der Stähle „Das 100 - Stähle - Programm“ Teil I: Tafeln und Bilder. Tech. rep.
- Shaw, R.P. (2013): Gas Generation and Migration, International Symposium and Workshop, 5th to 7th February 2013, Luxembourg, Proceedings FORGE Report.
- She, H., & Sleep, B. (1998). The effect of temperature on capillary pressure-saturation relationships for air-water and perchloroethylene-water systems. *Water Resources Research*, 34(10), 2587–2597.
- SKB (2006): Long-term safety for KBS-3 repositories at Forsmark and Laxemar – a first evaluation. Main report of the SR-Can project. Technical Report TR-06-09, Svensk Kärnbränslehantering AB, Stockholm.
- Smailos, E.; Martínez-Esparanza, A.; Kursten, B.; Marx, G.; Azkarate, I. (1999): Corrosion evaluation of metallic materials for long-lived HLW/spent fuel disposal containers. EUR 19112, European Commission, Luxemburg.
- Slobodkin, A. I., Tourova, T. P., Kuznetsov, B. B., Kostrikina, N. A., Chernyh, N. A., Bonch-Osmolovskaya, E. A. (1999): *Thermoanaerobacter siderophilus* sp. nov., a novel dissimilatory Fe(III)-reducing, anaerobic, thermophilic bacterium. *International Journal of Systematic Bacteriology* 49, 1471–1478.
- Środoń, J. (1999). Use of clay minerals in reconstructing geological processes: recent advances and some perspectives. *Clay Minerals*, 34, 27–37.
- Stroes-Gascoyne, S., Schippers, A., Schwyn, B., Poulain, S., Sergeant, C., Simonoff, M., Le Marrec, C., Altmann, S., Nagaoka, T., Mauclaire, L., McKenzie, J., Daumas, S., Vinsot, A., Beaucaire, C., Matray, J.-M. (2007): Microbial community analysis of Opalinus Clay drill core samples from the Mont Terri underground research laboratory, Switzerland. *Geomicrobiology Journal* 24, 1–17.
- Stroes-Gascoyne, S., Hamon, C.J., Maak, P. (2011): Limits to the use of highly compacted bentonite as a deterrent for microbiologically influenced corrosion in a nuclear fuel waste repository. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C* 36, 1630–1638.
- Truche, L., Berger, G., Destigneville, C., Pages, A., Guillaume, D., Giffaut, E., & Jacquot, E. (2009). Experimental reduction of aqueous sulphate by hydrogen under hydrothermal conditions: implication for the nuclear waste storage. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73, 4824–4835.
- Truche, L., Jodin-Caumon, M.-C., Lerouge, C., Berger, G., Mosser-Ruck, R., Giffaut, E., & Michau, N. (2013). Sulphide mineral reactions in clay-rich rock induced by high hydrogen pressure. Application to disturbed or natural settings up to 250 °C and 30 bar. *Chemical Geology*, 351, 217–228.
- Uni Freiburg (2013). [http://ruby.chemie.uni-freiburg.de/Vorlesung/nacht\\_2.html](http://ruby.chemie.uni-freiburg.de/Vorlesung/nacht_2.html)
- Van Genuchten, M. (1980). A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils. *Soil Science Society*, 44, 892–898.
- Vanlint, D., Mitchell, R., Bailey, E., Meersman, F., McMillan, P. F., Michiels, C. W., Aertsen, A. (2011): Rapid acquisition of Gigapascal-high-pressure resistance by *Escherichia coli*. *mBio* 2, e00130–10.
- Weber, A., Jørgensen, B. B. (2002): Bacterial sulfate reduction in hydrothermal sediments of Guaymas Basin, Gulf of California, Mexico. *Deep-Sea Research I* 49, 827–841.
- Weetjens, E., Perko, J., Yu, L. (2009): Final report on gas production and transport. PAMINA Report M 3.2.16, SCK CEN, Mol. <http://www.ip-pamina.eu/downloads/pamina.m3.2.16.pdf>
- Wersin, P., Johnson, L. H., & McKinley, I. G. (2007). Performance of the bentonite barrier at temperatures beyond 100 °C: A critical review. *Physics and Chemistry of the Earth*, 32, 780–788.
- Wersin, P., Leupin, O. X., Mettler, S., Gaucher, E. C., Mäder, U., De Cannière, P., Vinsot, A., Gabler, H. E., Kunimaro, T., Kiho, K., & Eichinger, L. (2011). Biogeochemical processes in a clay formation in situ experiment: Part A – Overview, experimental design and water data of an experiment in the Opalinus Clay at the Mont Terri Underground Research Laboratory, Switzerland. *Applied Geochemistry*, 26, 931–953.
- Whitney, G. (1990). Role of water in the smectite to illite reaction. *Clays and Clay Minerals*, 38, 343–350.

- Wilson, J., Cuadros, J., & Cressey, G. (2004). An in situ time-resolved XRD-PSD investigation into Na-montmorillonite interlayer and particle rearrangement during dehydration. *Clays and Clay Minerals*, 52, 180–191.
- Yildizdag, K., Herklotz, M., Jobmann, M., Polster, M., Schonebeck, M., & Uhlig, L. (2008). Investigation on the THM Behavior of a Heated Bentonite Barrier by Measurements and Numerical Calculations. Final Report, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine.