

Projekt ANSICHT

Quantifizierung von Kriterien für Integritätsnachweise im Tonstein

TECHNISCHER BERICHT



PROJ	PSP	OBJ	FUNK	KOMP	BAUG	AG	UA	LFNR	RV
FE						BE	BY	0009	00

DOKID: 11780527
ULV-Nr.: 659483

Projekt ANSICHT

Quantifizierung von Kriterien für Integritätsnachweise im Tonstein

TECHNISCHER BERICHT

Autoren:

M. Jobmann
J. Maßmann
A. Meleshyn
M. Polster

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-08-2013-AP

Peine 15.12.2015

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) von DBE TECHNOLOGY GmbH und GRS durchgeführt. Die Verantwortung für den Inhalt liegt jedoch allein bei den Autoren.



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Energie



PTKA
Projektträger Karlsruhe

Karlsruher Institut für Technologie

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung und Zielsetzung.....	1
2	Sicherheitsanforderungen im Hinblick auf den Integritätsnachweis der geologischen Barriere.....	2
3	Fluiddruck-Kriterium.....	4
4	Advektions-Kriterium.....	6
5	Dilatanz-Kriterium	8
5.1	Übertragung des Dilatanzkonzeptes von Steinsalz auf Tonstein.....	8
5.2	Experimentelle Bestimmung der Dilatanzfestigkeit/Dilatanzgrenze	9
5.3	Ansatz des Dilatanz-Kriteriums im Rahmen der Modellberechnungen	13
6	Temperatur-Kriterium.....	15
6.1	Thermo-hydro-mechanische Effekte	17
6.1.1	Expansion und Kontraktion	17
6.1.2	Thermische Eigenschaften	20
6.1.3	Mechanische Eigenschaften	20
6.1.4	Hydraulische Eigenschaften	22
6.1.5	Dehydrierung quellfähiger Tonminerale	23
6.1.6	Erzeugung hydraulischer Gradienten.....	24
6.1.7	Verdampfen von Wasser	24
6.1.8	Gaseindringdruck.....	25
6.2	Chemische, biologische und mineralogische Effekte	25
6.2.1	Illitisierung von Smektiten	25
6.2.2	Smektitisierung von Illiten	27
6.2.3	Zementierung durch Silica- und Illit-Neubildung.....	27
6.2.4	Thermochemische Sulfatreduktion.....	28
6.2.5	Sorptionseigenschaften	28
6.2.6	Kerogenumwandlung in Erdöl.....	29
6.2.7	Mikrobielle Aktivitäten	29
6.3	Bewertung der Effekte	31
6.3.1	Bewertung THM-Effekte.....	31
6.3.2	Bewertung CBM-Effekte	32
6.3.3	Abschließende Bewertung.....	32
7	Zusammenfassung	35
8	Literatur	36

1 Einleitung und Zielsetzung

Im Rahmen des FuE-Vorhabens ANSICHT entwickeln DBE TECHNOLOGY, die Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) und die Gesellschaft für Reaktorsicherheit (GRS) eine Methode für einen ganzheitlichen Sicherheitsnachweis für ein Endlager für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle im Tongestein in Deutschland. Die Stärke dieses ganzheitlichen Sicherheitsnachweises besteht in der Verknüpfung von gesetzlichen und geologischen Rahmenbedingungen mit der Entwicklung eines Sicherheitskonzeptes. Aufbauend auf diesen Grundlagen und generischen geologischen Standortmodellen erfolgen die Entwicklung des Endlagerkonzeptes, insbesondere eines Einlagerungs- und Verschlusskonzeptes, sowie eines darauf basierenden Nachweises der Barrierenintegrität und der Analyse von wahrscheinlichen und weniger wahrscheinlichen Endlagerentwicklungen. Einer der drei Kernpunkte dieser Methode ist der Nachweis der Integrität der geologischen Barriere und insbesondere des einschlusswirksamen Gebirgsbereiches (ewG)

Ausgangspunkt für den Integritätsnachweis sind die Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle, wie sie vom Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit aufgestellt wurden (BMU 2010). Die in diesem Zusammenhang relevanten Passagen der Sicherheitsanforderungen mit Bezug zum Integritätsnachweis sind im Kapitel 2 dargestellt.

Um den Integritätsnachweis quantitativ führen zu können, ist es notwendig, die in den Sicherheitsanforderungen beschriebenen Kriterien soweit zu quantifizieren, dass sie im Rahmen von rechnerisch zu führenden Nachweisen abgehandelt werden können. Aus diesem Grund werden in den Kapiteln 3 bis 6 die Integritätskriterien quantitativ formuliert. Diese quantitative Formulierung ist als vorläufig anzusehen, da noch keinerlei Datenmaterial aus Standorterkundungen vorliegt. Bei Vorlage entsprechender Kenntnisse sind die Quantifizierungen zu verifizieren.

2 Sicherheitsanforderungen im Hinblick auf den Integritätsnachweis der geologischen Barriere

Im Kapitel 7.2.1 der Sicherheitsanforderungen (BMU 2010) ist bezüglich der Langzeitaussage zur Integrität des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs folgendes gesagt:

Für die wahrscheinlichen Entwicklungen ist für den einschlusswirksamen Gebirgsbereich (ewG) auf der Grundlage einer geowissenschaftlichen Langzeitprognose nachzuweisen, dass die Integrität dieses Gebirgsbereichs über den Nachweiszeitraum von einer Million Jahre sichergestellt ist. Hierfür ist vom Antragsteller der einschlusswirksame Gebirgsbereich räumlich und zeitlich eindeutig zu definieren und unter Berücksichtigung der eingelagerten Abfälle und der technischen Barrieren zu zeigen, dass

- 1. die Ausbildung von solchen sekundären Wasserwegsamkeiten innerhalb des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs ausgeschlossen ist, die zum Eindringen oder Austreten ggf. schadstoffbelasteter wässriger Lösungen führen können und dass*
- 2. ggf. im einschlusswirksamen Gebirgsbereich vorhandenes Porenwasser nicht am hydrogeologischen Kreislauf im Sinne des Wasserrechts außerhalb des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs teilnimmt. Dies gilt als erfüllt, wenn die Ausbreitung von Schadstoffen im einschlusswirksamen Gebirgsbereich durch advective Transportprozesse allenfalls vergleichbar zur Ausbreitung durch diffusive Transportprozesse erfolgt.*

Bei Salinar- und Tongesteinen ist die Integrität des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs zusätzlich anhand folgender Kriterien zu prüfen:

- 3. Die zu erwartenden Beanspruchungen dürfen die Dilatanzfestigkeiten der Gesteinsformationen des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs außerhalb der Auflockerungszonen nicht überschreiten.*
- 4. 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.*
- 5. Durch die Temperaturentwicklung darf die Barrierewirkung des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs nicht unzulässig beeinflusst werden.*

Zu diesen Anforderungen sei Folgendes angemerkt:

Bei Überschreiten der Fluiddruckbelastbarkeit der Gesteinsformation kann es nur dann zu einem erhöhten Zutritt von Grundwässern in den einschlusswirksamen Gebirgsbereich kommen, wenn sekundäre Wasserwegsamkeiten entstehen.

Der Punkt 1 beschreibt Schädigungen, die im Detail unter den Punkten 3 und 4 konkretisiert sind und im Folgenden durch das „**Dilatanz-Kriterium**“ und „**Fluiddruck-Kriterium**“ abgedeckt werden. Die unter Punkt 2 und 5 beschriebenen Anforderungen werden im Folgenden als „**Advektions-Kriterium**“ und „**Temperatur-Kriterium**“ bezeichnet.

Im Hinblick auf die praktische Umsetzbarkeit der genannten Anforderungen wird im Folgenden eine Ableitung bzw. Konkretisierung dergestalt angegeben, dass ein rechnerischer Nachweis im Rahmen des Sicherheits- und Nachweiskonzeptes erfolgen kann.

Für die Integrität der geologischen Barriere gilt dann:

Die **Integrität** des einschlusswirksamen Gebirgsbereiches (ewG) ist dann gewährleistet, wenn

- das **Advektions-Kriterium** und
- das **Temperatur-Kriterium** im gesamten ewG eingehalten werden sowie
- das **Fluiddruck-Kriterium** und
- das **Dilatanz-Kriterium** innerhalb des ewG in einem Bereich eingehalten werden, der das Endlager mit einer Mindestausdehnung umschließt.

Die Integrität des ewG ist für die wahrscheinlichen Entwicklungen über den Nachweiszeitraum von einer Million Jahre nachzuweisen.

Die Mindestausdehnung ist standortspezifisch und hängt im Wesentlichen von der Permeabilität, der Porosität und dem vorliegenden hydraulischen Gradienten ab (AkEnd 2002). In Abbildung 2.1 sind die Kriterien und die Auswertebereiche schematisch dargestellt. Es wird von einem Endlagerkonzept ausgegangen, bei dem das Endlager, ohne Betrachtung der Schächte, vollständig im ewG liegt. Auch das Gestein in der unmittelbaren Umgebung des Bergwerks ist Teil des ewG. Der ewG liegt ferner vollständig im Wirtsgestein. Die Größe und Lage des ewG wird über einen Bereich bestimmt, der den Einlagerungsbereich, exklusive eines gestörten Bereichs, mit einer Mindestausdehnung vollständig umschließt.

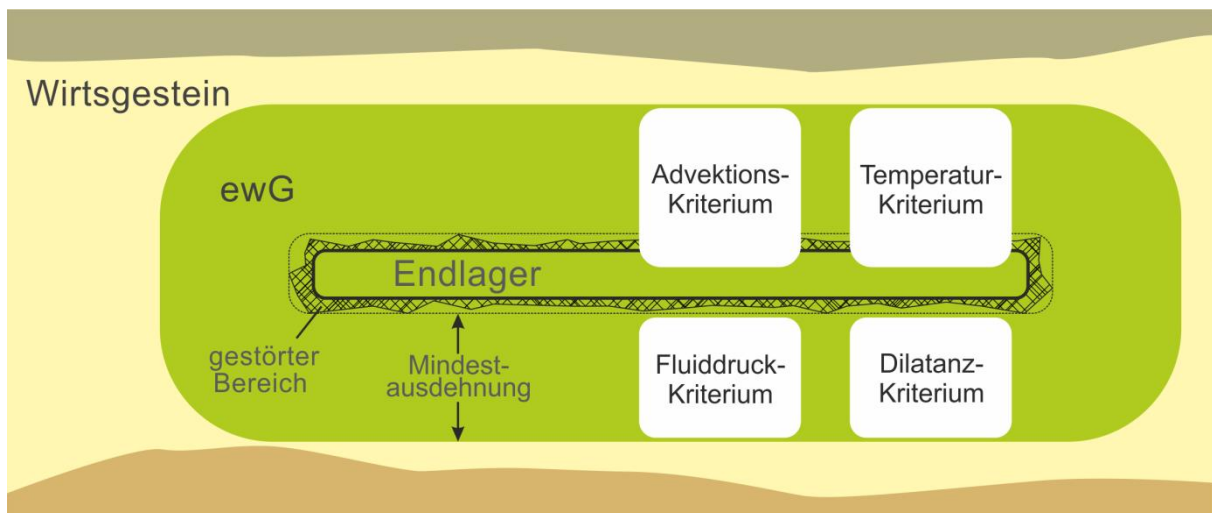


Abb. 2.1: Schematisierte Darstellung der quantifizierten Integritätskriterien

Bei den numerischen Modellberechnungen zur Integrität des ewG wird ein Ansatz verfolgt, der die Kopplung von thermischen, hydraulischen und mechanischen Prozessen berücksichtigt (THM). Die hydraulisch-mechanische Kopplung basiert auf dem Ansatz der effektiven Spannungen, der auf Terzaghi & Fröhlich (1936) zurückgeführt werden kann. Hiernach stehen die totalen (äußeren) Spannungen im Gleichgewicht zu den effektiven Spannungen, die auf dem Korngerüst wirken und über den Biot-Koeffizienten mit dem Porendruck verknüpft sind. Die Kopplung zum thermischen Prozess gewährleistet, dass die thermisch bedingte Dichteänderung des Gesteins und des in ihm enthaltenen Fluids berücksichtigt wird.

3 Fluiddruck-Kriterium

Bei den numerischen Modellberechnungen zur Integrität des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs (ewG) wird zunächst ein Ansatz verfolgt, der die Kopplung von thermischen, hydraulischen und mechanischen Prozessen berücksichtigt (THM). Die hydraulisch-mechanische Kopplung basiert auf dem Ansatz der effektiven Spannungen, der auf Terzaghi & Fröhlich (1936) zurückgeführt werden kann. Hiernach stehen die totalen (äußeren) Spannungen σ^{tot} im Gleichgewicht zu den effektiven Spannungen σ^{eff} , die auf dem Korngerüst wirken und über den Biot-Koeffizienten α mit dem Porendruck p verknüpft sind:

$$\sigma^{eff} = \sigma^{tot} - \alpha \cdot p \cdot \mathbf{1} \quad (3.1)$$

Positive Werte von Spannungen werden hier als Zugspannungen, negative als Druckspannungen dargestellt. Für die Formulierung des mechanischen Verhaltens (Spannungs-Dehnungsverhalten) wird im Allgemeinen die effektive Spannung verwendet.

Unter sekundären Wasserwegsamkeiten, die zum Eindringen oder Austreten ggf. schadstoffbelasteter wässriger Lösungen führen können, werden hier offene Makrorisse verstanden. Diese können sich nur dann ausbilden, wenn die Zugfestigkeit des Gesteins von den effektiven Spannungen überschritten wird. Es ist allerdings nicht auszuschließen, dass es zu einer zeitlich verzögerten Schädigung bereits auf einem Spannungsniveau kommt, das unterhalb der Zugfestigkeit liegt (Kriechbruch). Durch den Ansatz der THM Kopplung mit dem Konzept der effektiven Spannungen kann die Zugfestigkeit sowohl durch mechanische als auch durch hydraulische Prozesse oder deren Kombination erreicht werden. So wird auch die Verringerung von Druckspannungen im Korngerüst durch eine Erhöhung des Porenwasserdrucks, beispielsweise hervorgerufen durch thermisch bedingte Verringerung der Fluidichte, abgebildet. Folgende Prozesse sollten bei den Modellberechnungen zur Integrität des ewG in Tongesteinen beachtet werden, soweit ein signifikanter Einfluss auf das Berechnungsergebnis nicht durch vorlaufende Analysen ausgeschlossen werden kann:

- Spannungsumlagerungen durch Auffahrung
- Fluidbewegung im deformierbaren porösen Medium
- Wärmetransport
- Thermisch induzierte Ausdehnung des Fluides und des Gesteins
- Schrumpfen des Tonsteins
- Änderungen der Permeabilität
- Porendruckanstieg durch Gasentwicklung

Da die Zugfestigkeit des Gesteins durch die Schichtung und mögliche Vorschädigung aus der Belastungshistorie beeinflusst sein kann und im Extremfall zu Null werden könnte, sollte als Kriterium die effektive Zugspannung selbst ausgewertet werden. Hierzu muss diejenige Hauptspannung des effektiven Spannungstensors ausgewertet werden, welche die größte Zugspannung aufweist. Mit der Definition der drei effektiven Hauptspannungen

$$\sigma_I^{eff} \leq \sigma_{II}^{eff} \leq \sigma_{III}^{eff} \quad (3.2)$$

können die Zonen, in denen effektive Zugspannungen auftreten, durch die folgende Ungleichung beschrieben werden:

$$\sigma_{III}^{eff} \geq 0 \quad (3.3)$$

Treten Zonen mit effektiven Zugspannungen auf, so muss gewährleistet sein, dass eine ausreichende zugspannungsfreie Mächtigkeit innerhalb des ewG (Mindestauchung) erhalten bleibt.

Das Fluidruck-Kriterium wird demnach wie folgt definiert:

Das Fluidruck-Kriterium:

ist eingehalten,
wenn die effektiven Spannungen nicht im Zugspannungsbereich liegen.

Dieses Kriterium ist für einen Bereich, der innerhalb des ewG liegt und der das Endlager mit einer Mindestausdehnung umschließt, nachzuweisen.

Um eine praktikable Abschätzung im Rahmen des exemplarischen Integritätsnachweises zu gewährleisten, wird für die Anwendung des Kriteriums im Rahmen des ANSICHT Projektes ein gängiger Wert für den Biot-Koeffizienten von $\alpha=0,6$ gewählt. Nach Vorlage ausreichender standortspezifischer Daten kann diese Annahme durch einen realen Wert ersetzt werden.

4 Advektions-Kriterium

Bei den numerischen Modellberechnungen zu Strömungsprozessen werden die Porenwasserdrücke p_l berechnet. Über die Darcy-Gleichung kann hieraus bei Vollsättigung die Filtergeschwindigkeit \mathbf{v} bzw. Abstandsgeschwindigkeit \mathbf{u} berechnet werden:

$$n_{\text{eff}} \mathbf{u} = \mathbf{v} = \frac{\mathbf{k}}{\mu_l} (-\nabla p_l + \rho_l \mathbf{g}) \quad (4.1)$$

mit der durchflusswirksamen Porosität n_{eff} [-], dem Permeabilitätstensor \mathbf{k} [m²], der dynamischen Viskosität des Porenwassers μ_l [Pa·s], der Dichte des Wassers ρ_l [kg/m³] und dem Vektor der Erdbeschleunigung \mathbf{g} [m/s²].

Der konservative Stofftransport (ohne Rückhaltungen und stoffliche Veränderungen) in einem porösen Medium kann allgemein durch die 3-dimensionale Transportgleichung beschrieben werden (Domenico & Schwartz 1997):

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \underbrace{-\nabla \cdot (\mathbf{u}c)}_{\text{advektiv}} + \underbrace{\nabla \cdot \mathbf{D} \nabla c}_{\text{dispersiv}} + \underbrace{\nabla \cdot D_m \mathbf{1} \nabla c}_{\text{diffusiv}} \quad (4.2)$$

mit der Stoffkonzentration c [kg/m³], der Zeit t [s], der Abstandsgeschwindigkeit \mathbf{u} [m/s], dem Dispersionstensor \mathbf{D} [m²/s] und dem Koeffizienten der molekularen Diffusion D_m [m²/s]. Der Dispersionstensor berechnet sich aus der longitudinalen und transversalen Dispersivität (α_l, α_t) und dem Vektor der Abstandsgeschwindigkeit \mathbf{u} . Dispersion findet nur mit der Strömung statt und beschreibt die Wirkung der Variation des Geschwindigkeitsfelds auf allen Skalen, die nicht explizit im Modell berücksichtigt sind. Solange ein Einfluss von der Konzentration des gelösten Stoffes auf die Strömung ausgeschlossen werden kann, wird die Transportgleichung im Nachgang zur Strömungsberechnung gelöst.

Es wird gefordert, dass „im einschlusswirksamen Gebirgsbereich vorhandenes Porenwasser nicht am hydrogeologischen Kreislauf im Sinne des Wasserrechts außerhalb des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs teilnimmt. Dies gilt als erfüllt, wenn die Ausbreitung von Schadstoffen im einschlusswirksamen Gebirgsbereich durch advektive Transportprozesse allenfalls vergleichbar zur Ausbreitung durch diffusive Transportprozesse erfolgt“ (vgl. Kapitel 2, Punkt 2). Im Rahmen dieses Projektes wird diese Forderung in dem Sinne verstanden, dass allein durch die Bewegung des Porenwassers kein gelöster Stoff vom Einlagerungsbereich an den Rand des ewG transportiert werden darf.

Um eine konservative Abschätzung zu gewährleisten, werden weder Abbau- noch Rückhalte-mechanismen berücksichtigt; es wird also von einem idealen konservativen Tracer¹ ausgegangen. Ferner muss neben dem advektiven der dispersive Transport betrachtet werden, da beide Prozesse direkt von der Bewegung des Porenwassers abhängen, wie oben dargestellt.

¹ Beim gezielten Einsatz eines im hydrologischen System nicht vorhandenen Stoffes wird von einem „künstlichen Tracer“ gesprochen. Für die Wassermarkierung werden z.B. Farbstoffe eingesetzt. Ideale oder „konservative Tracer“ verhalten sich im System wie das Wasser selbst, „reaktive Tracer“ reagieren mit anderen Stoffen und zeigen dadurch ein vom Wasser abweichendes Ausbreitungsverhalten.

Das Advektions-Kriterium wird demnach wie folgt definiert:

Das **Advektions-Kriterium:**

ist eingehalten,

wenn ein gelöster konservativer Tracer innerhalb des Nachweiszeitraums nicht allein auf Grund der Bewegung des Porenwassers vom Einlagerungsbereich bis an den Rand des ewG transportiert werden kann.

Ein Nachweis kann über numerische Modellberechnungen erfolgen, welche lediglich den advektiven und dispersiven Teil der Transportgleichung berücksichtigen. Es ist hierbei davon auszugehen, dass während des gesamten Nachweiszeitraumes Schadstoffe aus den Einlagerungsbehältern austreten. Alternativ könnte ein (teil-) analytischer Nachweis erbracht werden, wenn abdeckende Annahmen zur Entwicklung des Strömungsfeldes über Ort und Zeit getroffen werden können.

Die wichtigsten Ursachen für advektiven Transport im Bereich eines Endlagers müssen bei der Nachweisführung berücksichtigt werden, soweit nicht gezeigt werden kann, dass sie keinen Transport aus dem Endlagerbereich ermöglichen:

- Natürlicher hydraulischer Gradient
- Wiederaufsättigung
- Gasproduktion und Gastransport
- Thermische Expansion und Kontraktion
- Konvergenz und Kompaktionsprozesse

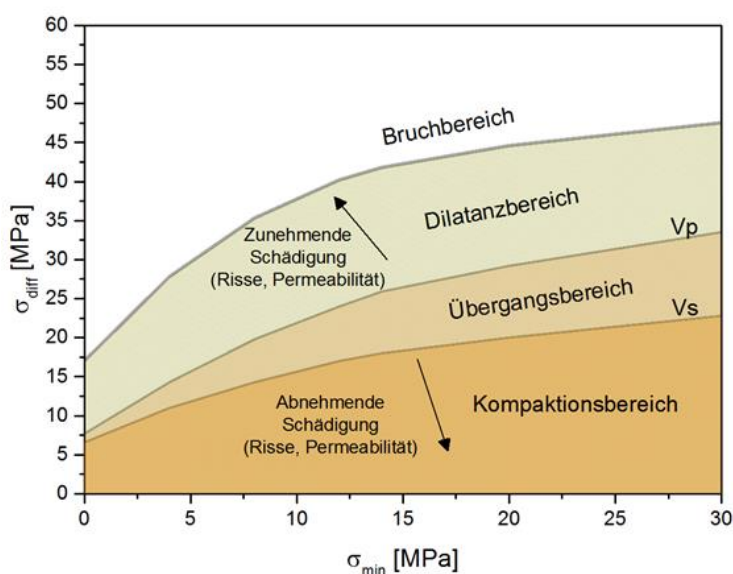
5 Dilatanz-Kriterium

Bei mechanischen Beanspruchungen oberhalb der Dilatanzfestigkeit ist mit dilatanten Gebirgsdeformationen und dem Entstehen von sekundären Wasserwegsamkeiten (Sekundärpermeabilitäten) zu rechnen. Hierunter werden Wegsamkeiten verstanden, welche sich entweder durch die Erweiterung vorhandener Fissuren ergeben oder sich durch Rissbildung und Rissvernetzung neu ausbilden (AkEnd 2002). Durch die Einhaltung des Dilatanzkriteriums innerhalb des ewG soll die Rissaufweitung bzw. Rissbildung und somit die Ausbildung von sekundären Permeabilitäten als potenzielle Wasserwegsamkeiten ausgeschlossen werden.

Da bis dato keine (allgemein gültige und akzeptierte) Formulierung der Dilatanzgrenze bzw. Dilatanzfestigkeit für Tonstein vorliegt und dies z. T. noch Gegenstand wissenschaftlicher Diskussion ist (IfG 2007, Popp et al. 2009), wird im Folgenden für die numerischen Modellberechnungen zur Integrität des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs (ewG) ein Ansatz abgeleitet. Hierfür wird zunächst das von Steinsalz auf Tonstein übertragene Dilatanzkonzept kurz erläutert und verschiedene Methoden der experimentellen Bestimmung der Dilatanzfestigkeit/Dilatanzgrenze von Tonstein dargestellt. Hierauf aufbauend wird ein Ansatz für die numerischen Modellberechnungen abgeleitet.

5.1 Übertragung des Dilatanzkonzeptes von Steinsalz auf Tonstein

Zur Beschreibung der Schädigung und deren Entwicklung in Abhängigkeit vom mechanischen Beanspruchungszustand kann das sog. Dilatanzkonzept herangezogen werden, welches ursprünglich für Steinsalz entwickelt wurde (Cristescu & Hunsche 1998, Hunsche et al. 2003). Dementsprechend tritt bei Beanspruchungen unterhalb der Bruch- und oberhalb der Dilatanzgrenze des Tonsteins Dilatanz, d. h. Volumenzunahme und Gefügauflockerung auf, siehe Abb. 5.1. Mit zunehmender Beanspruchung nimmt oberhalb der Dilatanzgrenze die Schädigung durch Aufweitung bestehender Mikrorisse und/oder Ausbildung neuer Mikrorisse zu. Durch Rissvernetzung erhöht sich die Permeabilität deutlich. In Abhängigkeit von der Standzeit und Höhe der Belastung ist Kriechbruch möglich – auch bei Spannungszuständen, welche sich unterhalb der „Kurzzeitbruchgrenze“ befinden. Bleibt der Beanspruchungszustand unterhalb der Dilatanzgrenze, behält der Tonstein seine günstigen initialen Eigenschaften. Sofern die Dilatanzgrenze lediglich temporär überschritten wurde,



führt eine erneute Unterschreitung aufgrund der Kompaktion zu einer Zustandsverbesserung mit Risschließung und Rückgang der Schädigung und Permeabilität.

Abb. 5.1: Dilatanzkonzept für Opalinuston mit Darstellung der Dilatanz- und Bruchgrenze in Abhängigkeit vom Spannungszustand (modifiziert nach Popp & Salzer 2007); mit den Schallwellengeschwindigkeiten v_p und v_s .

Die prinzipielle Übertragbarkeit des Dilatanzkonzeptes auf das mechanische Verhalten des Tonsteins wurde belegt und ist wissenschaftlicher Konsens (Hunsche et al. 2005, Lux et al. 2005, Naumann et al. 2007, Popp & Salzer 2007, Zhang et al. 2010). Jedoch wird von den Autoren u. a. auf unterschiedliche Schädigungsmechanismen und die aus der Struktur bzw. Textur des Tongesteins resultierenden Effekte hingewiesen, beispielsweise:

- starker Einfluss der Schichtung bzw. Festigkeitsanisotropie und mögliche Interaktionen mit ggf. vorhandenen Trennflächen; z. T. Lokalisierung der Risse an der Schichtung und Staffelbrüche
- starker Einfluss der Belastungsrichtung
- Heterogenität des Tongesteins

Ebenfalls wird auf die Komplexität der Ermittlung der Dilatanz (volumetrische Gefügauflockerung) aufgrund der – diesen Prozess überlagernden – Volumenkompaktion des porösen Tongesteins betont.

5.2 Experimentelle Bestimmung der Dilatanzfestigkeit/Dilatanzgrenze

Zur Bestimmung der Dilatanzfestigkeit/Dilatanzgrenze werden verschiedene Methoden eingesetzt. Aufgrund der unterschiedlichen Sensitivität der Verfahren und z. T. erforderlicher (subjektiver) Interpretation der Messdaten divergieren die Ergebnisse voneinander und stellen unterschiedliche Stadien der Schädigung dar, was im Hinblick auf die Ableitung des anzusetzenden Kriteriums zu berücksichtigen ist. Um dies kenntlich zu machen und eine Unterscheidung zu ermöglichen, wird im Folgenden zwischen „Dilatanzfestigkeit“, „Schädigungsgrenze“ und „Mikrorissgrenze“ unterschieden. Auf Basis hydro-mechanischer Versuche mit Durchströmung kann zudem eine „Perkolationsgrenze“ abgeleitet werden.

A) Minimum der Volumenverformung ε_{vol} („Dilatanzfestigkeit“)

Die Ermittlung der Dilatanzfestigkeit des Tonsteins erfolgt zumeist auf Basis der Messung des Spannungs-Verformungsverhaltens in uni- oder triaxialen Druckversuchen. Die Dilatanzfestigkeit entspricht hierbei jenem Beanspruchungszustand, in dem die Volumenverformung ihr Minimum aufweist, in Abb. 5.2 mit σ_D gekennzeichnet. Volumenkompaktion und Gefügauflockerung stehen für diesen Zustand – bei integraler Betrachtung der Probe – im Gleichgewicht. Bei weiterer Zunahme der Beanspruchung überwiegen die dilatanten Verformungsanteile, bis es durch weitere Mikrorissöffnungen und deren Vernetzung zur Ausbildung von Makrorissen und Bruchversagen (σ_F) kommt.

Festzuhalten ist, dass es bereits im Spannungsbereich unterhalb σ_D zu einer Gefügeschädigung infolge Mikrorissbildung kommt. Eine lokale Zunahme der Permeabilität durch die lokale Ausbildung von Rissen kann daher per se nicht ausgeschlossen werden. Ferner ist anzumerken, dass für dieses Verfahren eine hinreichende Genauigkeit der Erfassung der Volumenverformung erforderlich ist (Abb. 5.2: Unterschiede Ölvolumen vs. Dehnungsgeber). Für verschiedene Tonsteine wurde festgestellt, dass die auf diese Weise ermittelte Dilatanzfestigkeit nahe der Bruchfestigkeit liegt bzw. mit ihr korreliert werden kann, beispielsweise:

Opalinuston (OPA):	$\sigma_D \approx 0,8 \dots 0,9 \cdot \sigma_F$	(Blümling 2005)
Mt. Terri, OPA:	$\sigma_D \approx 0,7 / 0,96 \cdot \sigma_F$	parallel / senkrecht zur Schichtung (Naumann et al. 2007)
Bure, Callovo-Oxfordian (COX):	$\sigma_D \approx \sigma_F$	(Zhang et al. 2010)
Konrad, vorrangig Alb:	$\sigma_D \approx \sigma_F$	(Lux et al. 2005)

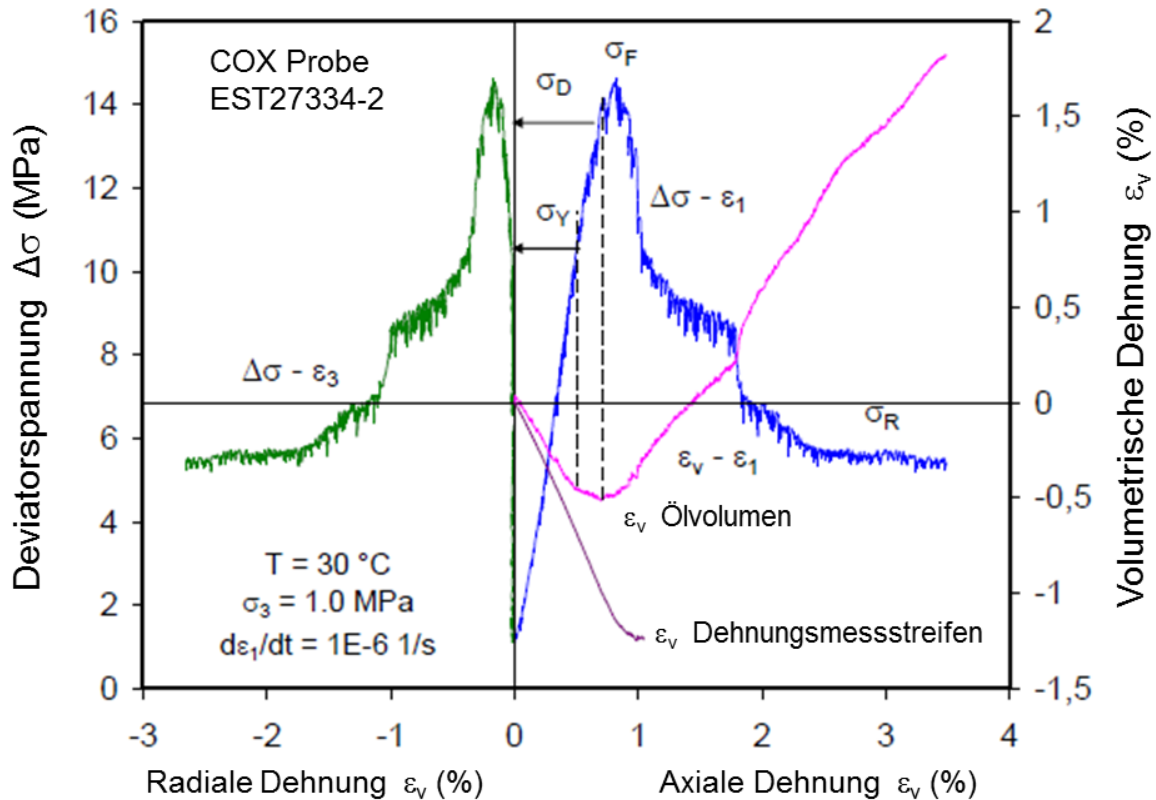


Abb. 5.2: Spannungs- Verformungsverhalten von Tonstein, hier beispielhaft COX Triaxialtest (Zhang et al. 2010).

B) Abweichung der Volumenverformung vom linearen Verlauf ε_{vol} („Schädigungsgrenze“)

Bereits deutlich vor Erreichen der Dilatanzfestigkeit σ_D tritt eine Schädigung der Probe infolge Mikrorissöffnung und/oder Mikrorissbildung und –vernetzung ein. Der in Abb. 5.2 mit σ_Y bezeichnete Punkt markiert hierbei den Übergang von der Phase volumetrischer Kompaktion (elastisch, reversibel) zur Phase beginnender Mikrorissbildung und Schädigung und kann daher als Schädigungsgrenze aufgefasst werden. Durch die ab diesem Belastungszustand auftretenden irreversiblen plastischen Deformationen kommt es zu einer Abweichung vom linearen Verlauf der volumetrischen Deformationen. Die derart festgestellte Schädigungsgrenze kann ebenfalls in Relation zur Bruchfestigkeit gesetzt werden. In ANDRA (2005) wird zudem hinsichtlich der mineralogischen Zusammensetzung (hier: des Karbonatgehaltes) differenziert:

Bure, COX, Fazies A (karbonatreich):	$\sigma_Y = 0,9 \cdot \sigma_F - 13$ [MPa]	(ANDRA 2005)
Bure, COX, Fazies B-E (tonreich):	$\sigma_Y = 0,6 \cdot \sigma_F - 2$ [MPa]	(ANDRA 2005)
Bure, COX:	$\sigma_Y \approx 0,7 \cdot \sigma_F$	(Zhang et al. 2010)

C) Maximum der Schallwellengeschwindigkeiten v_s („Mikrorissgrenze“) und v_p

Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Dilatanzgrenze besteht in der versuchsbegleitenden Durchschallung der Probekörper mit Ultraschall (Popp & Salzer 2007). Hierdurch werden zum Teil o.g. Kritikpunkte am Verfahren auf Basis der gemessenen Volumenverformung (integrale Betrachtung, Erfassen der Volumenverformung) umgangen. Die Methode wird als sensitiver hinsichtlich der Rissbildung und des Einsetzens der Dilatanz eingeschätzt (IfG 2007). Somit werden von diesem Verfahren lokale Mikrorissbildungen erfasst, welche hydraulisch relevant sein könnten. Auf diese Weise spiegelt insbesondere die Identifikation auf Basis der s-Wellengeschwindigkeit den Beginn einsetzender Rissbildung wider („Mikrorissgrenze“). Sie wird als untere Grenzkurve mechanischer Schädigung angesehen (IfG 2007) und grenzt den Spannungsbereich mit dilatantem Verhalten nach unten hin ab. Die zugehö-

rigen Belastungszustände liegen deutlich unterhalb der mittels Volumendeformation ermittelten „Dilatanzfestigkeiten“ bzw. „Schädigungsgrenzen“:

Mt. Terri, OPA, vorrangig S-Proben²: $\sigma_{ini\ dam} \approx 0,5 \dots 0,6 \cdot \sigma_F$ (Popp & Salzer 2007)

Mt. Terri, OPA, S-Proben: $\sigma_{ini\ dam} \approx 0,6 \cdot \sigma_F$ (s-Wellen, Naumann et al. 2007)

Die auf Basis der p-Wellen-Laufzeiten ermittelte Dilatanzgrenze repräsentiert eine verstärkte Akkumulation der Mikrorissbildung (IfG 2007) und liegt oberhalb der Dilatanzgrenze auf Basis der s-Wellen, jedoch noch deutlich unterhalb der Bruchgrenze in etwa in der Bandbreite der „Schädigungsgrenze“:

Mt. Terri, OPA, S-Proben: $\sigma_{ini\ dam} \approx 0,8 \cdot \sigma_F$ (p-Wellen, Naumann et al. 2007)

Hierbei ist anzumerken, dass die Bewertung der p-Wellen nicht in jedem Fall zu einem verwertbaren Ergebnis führt. So sind Fälle dokumentiert, für die das Maximum der Schallwellengeschwindigkeit erst nach Überschreitung der Spitzenfestigkeit – also eingetretenen Makrobrüchen – festzustellen war (Czaikowski 2011).

Abb. 5.3 zeigt beispielhaft für Opalinuston die Zusammenstellung von Bruchgrenze und Dilatanz- bzw. Schädigungsgrenzen, abgeleitet auf Basis der seismischen Wellengeschwindigkeiten.

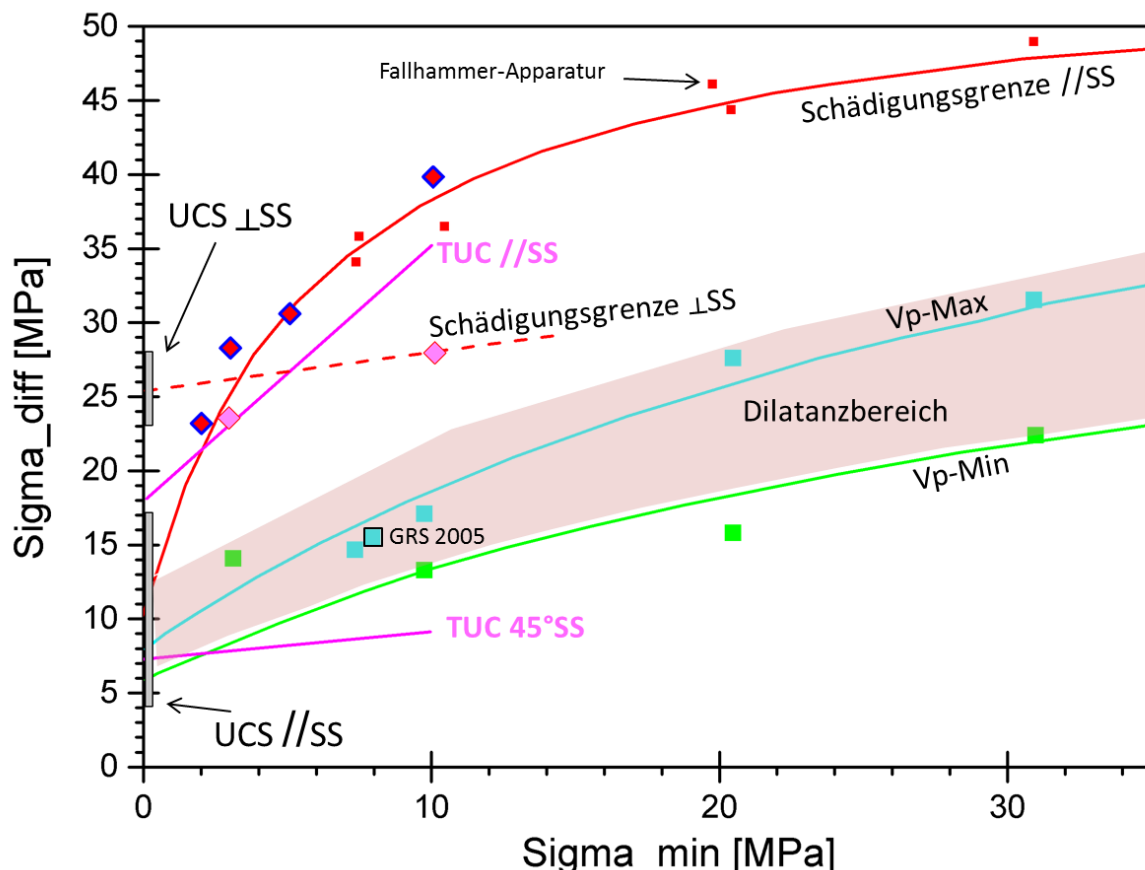


Abb. 5.3: Zusammenstellung von Bruchgrenze und Dilatanz- bzw. Schädigungsgrenzen, abgeleitet auf Basis der seismischen Wellengeschwindigkeiten während kompressiver Belastung für Opalinuston, Probengeometrie vorrangig senkrecht zur Schichtung (modifiziert nach IfG 2007), TUC = TU Clausthal, UCS = uniaxial strength test.

² S-Probe bedeutet: Belastungsrichtung senkrecht zur Schichtung

Fakt ist, dass die unter A) bis C) dargestellten Methoden zur Ermittlung der Dilatanzgrenze zu abweichenden Ergebnissen führen. Ferner ist auf dieser Basis keine Aussage zur Anisotropie der Riss- bzw. Schädigungsentwicklung bzw. zur hydraulischen Relevanz des sich weitenden und/oder neu ausbildenden und vernetzenden Risswerks möglich. Insbesondere für die Methode der Bestimmung der „Dilatanzfestigkeit“ im Minimum der Volumenverformung bleibt offen, ob bereits vor Erreichen der Dilatanzgrenze/Dilatanzfestigkeit relevante Veränderungen der hydraulischen Eigenschaften eintreten. Eine Möglichkeit zur Betrachtung dieser Problemstellung bieten Triaxialversuche mit gleichzeitiger Durchströmung (Zhang et al. 2010).

D) „Perkolationsgrenze“

In Abb. 5.4 werden Ablauf und Ergebnisse eines Triaxialversuches mit gleichzeitiger Durchströmung exemplarisch für eine COX-Probe dargestellt. Aus dem Verlauf der Permeabilität ist ersichtlich, dass nach Überschreitung der Dilatanzgrenze/Schädigungsgrenze (in etwa bei dem 0,7-fachen der Bruchfestigkeit) ein moderater Anstieg der Permeabilität zu verzeichnen ist. Erst bei Annäherung an die Bruchgrenze steigt die Permeabilität nach Überschreitung einer „Perkolationsgrenze“ sprunghaft um mehrere Größenordnungen an. Die Perkolationsgrenze liegt hierbei in etwa bei dem 0,9-fachen der Bruchfestigkeit (Zhang et al. 2010).

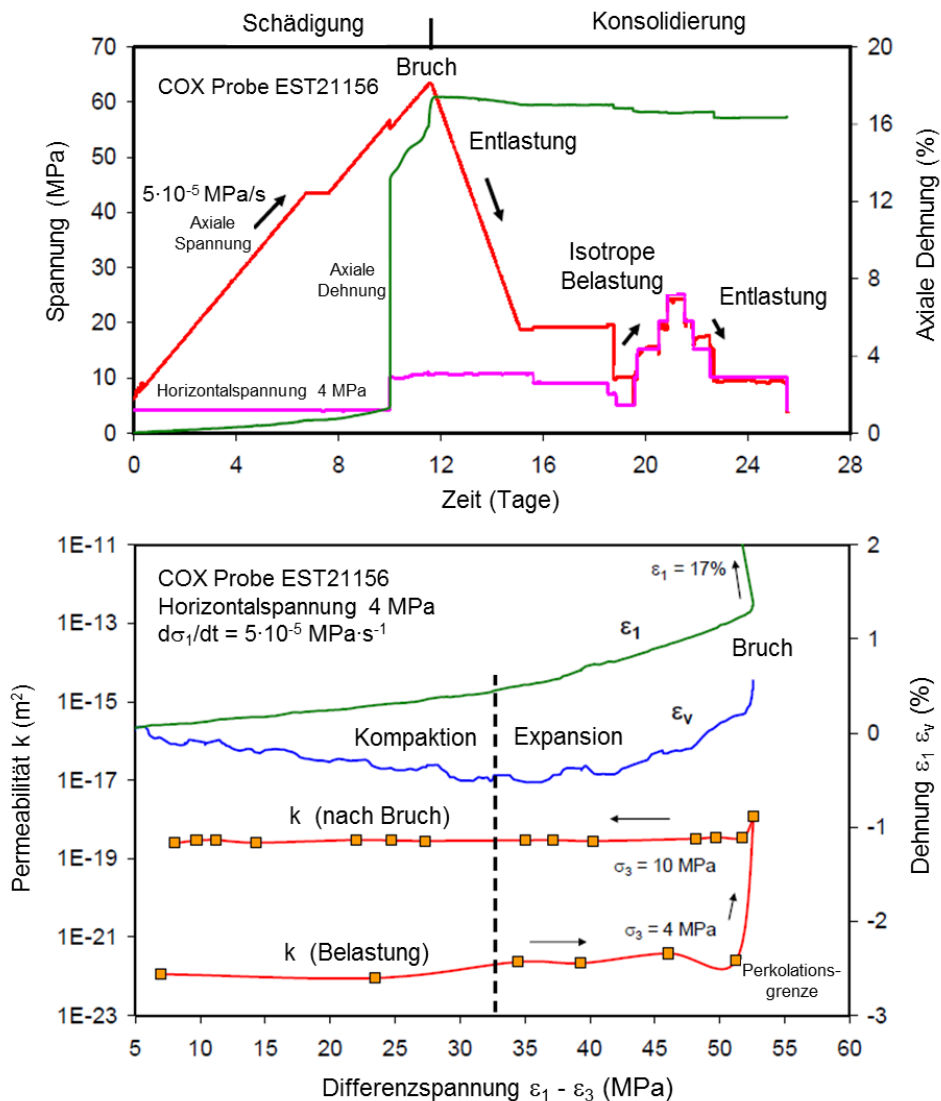


Abb. 5.4: Versuche zur schädigungsinduzierten Permeabilität; oben: Darstellung des Belastungsregimes und Versuchsablaufs; unten: Verformung und Permeabilität in Abhängigkeit von der deviatorischen Belastung (Zhang et al. 2010).

5.3 Ansatz des Dilatanz-Kriteriums im Rahmen der Modellberechnungen

Wie bereits beschrieben, liegt bis dato keine allgemeingültige und akzeptierte Formulierung eines Dilatanz-Kriteriums für Tongestein vor, sodass für die numerischen Berechnungen zur Integrität des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs (ewG) am generischen Modell ein Ansatz im Sinne einer Arbeitshypothese abgeleitet wird.

Der Ansatz folgt den Prämissen:

- a) eine nach Möglichkeit konservative (abdeckende) Abschätzung im Rahmen des Integritätsnachweises zu gewährleisten und
- b) hinsichtlich der numerischen Umsetzung praktikabel zu sein.

Hinsichtlich des Ansatzes wird vorgeschlagen, in Erweiterung der Sicherheitsanforderungen eine Grenzbedingung zu wählen, welche die Schädigungsgrenze (im Sinne von „Beginn der Schädigung“) abbildet und nicht die „Dilatanzfestigkeit“, unter der zumeist der Belastungszustand im Volumenminimum verstanden wird. Somit wird unabhängig vom letztendlich angesetzten Betrag der mechanischen Grenzbelastbarkeit sichergestellt, dass der Spannungsbereich potenzieller Rissweitung, Rissneubildung und -vernetzung mit erfasst wird. Auf der sicheren Seite liegend wird hierbei ein Wert für die Grenzbelastung angesetzt, welcher in der Größenordnung der Beanspruchungszustände liegt, die auf Basis der s-Wellengeschwindigkeiten („Mikrorissgrenze“) abgeleitet werden können. Es ist davon auszugehen, dass die Formulierung der Dilatanzgrenze bzw. des Dilatanz-Kriteriums auf dieser Basis den geringsten Betrag der zulässigen Beanspruchung liefert, d.h. hinsichtlich der Nachweisführung konservativ abdeckend ist (siehe Abb. 5.1).

Das „Dilatanz-Kriterium“ wird demnach wie folgt definiert:

Das Dilatanz-Kriterium:

ist eingehalten,
wenn der Spannungszustand unterhalb der Schädigungsgrenzen und somit auch der Dilatanzfestigkeiten der Gesteinsformationen liegt.

Dieses Kriterium ist für einen Bereich, der innerhalb des ewG liegt und der das Endlager mit einer Mindestausdehnung umschließt, nachzuweisen.

Als Dilatanzgrenze wird im Rahmen der Modellberechnungen angesetzt:

$$\sigma_{\text{dil}} = 0,5 \cdot \sigma_{\text{F}}$$

Durch diese spannungsbasierte Formulierung erfolgt eine Korrelation der Dilatanzgrenze relativ zur jeweils vorhandenen Bruchfestigkeit. Somit werden indirekt der Spannungszustand und in Abhängigkeit von dem verwendeten Stoffmodell zur Beschreibung des plastischen Gebirgsverhaltens anisotrope Festigkeiten berücksichtigt. Eine ergänzende Kontrolle eines verformungsbasierten Kriteriums $\varepsilon < \varepsilon_{\text{dil}}$ wäre hinsichtlich verfügbarer Datenbasis zu prüfen. Bei eventueller Verwendung eines viskosen Anteils in den Modellberechnungen sollte eine Grenzbedingung für die (Scher-)Verformungen eingeführt werden, da sich Tonstein unterhalb der Dilatanzgrenze nicht beliebig stark schädigungsfrei verformen kann, was in den Modellberechnungen jedoch theoretisch möglich ist. Wird das Kriterium in Teilbereichen des ewG verletzt (z. B. in der Auflockerungszone), so muss gewährleistet sein, dass eine ausreichende Mächtigkeit innerhalb des ewG (Mindestausdehnung) erhalten bleibt, in der das Dilatanz-Kriterium eingehalten wird.

Dieser, im Hinblick auf die Nachweisführung konservativ einzuschätzende Ansatz, trägt der gegebenen Komplexität und den Unsicherheiten Rechnung. Diese Konservativitäten können grundsätzlich mit Vorlage standortspezifischer Daten abgebaut werden.

Anmerkungen:

- Der Biot-Koeffizient wird in Analogie zum Fluiddruck-Kriterium im Rahmen des exemplarischen Nachweises auf den gängigen Wert 0,6 gesetzt. Die Beschreibung der Festigkeits- und somit auch der Dilatanz-Kriterien der anstehenden Gesteine erfolgt unter Ansatz effektiver Spannungen entsprechend Gleichung 3-1 mit $\alpha = 0,6$. Dies stellt zunächst einen praktikablen Modellierungsansatz dar, der bei Vorlage ausreichender standortspezifischer Daten überprüft und ggf. angepasst werden muss.
- Skaleneffekte bei der Übertragung von Labordaten auf In-situ-Verhältnisse sind für Dilatanzfestigkeiten nicht auszuschließen, können aber gegenwärtig nicht quantifiziert werden und werden im Rahmen der Modellierung nicht berücksichtigt. Dies bleibt ebenfalls zu prüfen und ggf. anzupassen.
- Das Erfordernis der Betrachtung von Zeiteffekten, d. h. der Unterscheidung in „Kurzzeitfestigkeit“ und „Langzeitfestigkeit“ ist nach gegenwärtigem Stand nicht gegeben und bleibt daher zu prüfen und ggf. anzupassen. Es wird angenommen, dass durch die konservative Wahl der Dilatanzgrenze eine ggf. vorhandene Abhängigkeit der Festigkeit von der Belastungsgeschwindigkeit / Belastungsdauer abgedeckt ist.
- Die tendenziell konservative Wahl der Dilatanzgrenze trägt ebenso der Festigkeitsanisotropie, sowie ggf. im Wirtsgestein vorhandenen Trennflächensystemen Rechnung.

Umsetzung im Rahmen der numerischen Berechnungen

Zur Beschreibung der Bruchfestigkeit sollte eine geeignete numerische Formulierung verwendet werden, welche die relevanten Abhängigkeiten erfasst. (z.B. Spannungszustand oder Festigkeitsanisotropie). Basis der Formulierung können lineare oder nicht-lineare elasto-plastische Spannungskriterien sein, wie beispielsweise vorgeschlagen für:

- COX Bure / Hoek-Brown-Kriterium (ANDRA 2005 und Zhang et al. 2010)
- OPA Mt. Terri / modifiziertes Mohr-Coulomb-Kriterium (IfG 2007)
- OPA Benken / bi-lineares Mohr-Coulomb-Kriterium (NAGRA 2002)

Auf eine Berücksichtigung der Abhängigkeit der Festigkeiten vom Sättigungsgrad oder Wassergehalt wird zunächst verzichtet. Da die Bruchfestigkeiten mit abnehmender Sättigung zunehmen (bspw. im konturnahen Bereich) wird angenommen, dass die an die Bruchfestigkeiten gekoppelten Grenzbelastbarkeiten ebenfalls zunehmen. Eine Vernachlässigung dieses Einflusses stellt einen konservativen Modellierungsansatz dar. Auf eine Berücksichtigung der Abhängigkeit der Dilatanzgrenze von der Temperatur wird zunächst verzichtet, da keine ausreichenden Daten verfügbar sind. Auswertungen von Laborversuchen an Opalinuston (Gräsle & Plischke 2010, Gräsle 2012) zeigen zwar eine Abnahme der Bruchfestigkeiten mit steigender Temperatur (bis max. 80°C getestet) jedoch wäre ebenso mit der Festigkeitszunahme infolge Abnahme des Anteils flüssigen Wassers und durch Konsolidierungseffekte zu rechnen (siehe dazu auch Kapitel 6.1.2).

Hinsichtlich der numerischen Umsetzung ist geplant, das Dilatanz-Kriterium berechnungsbegleitend zu prüfen, bspw. durch Kontrolle und Protokollierung des Quotienten aus Ist-Spannungszustand und Grenzbelastbarkeit (hier: Dilatanzfestigkeit). Durch die mathematisch einfache Formulierung der Dilatanzgrenze kann berechnungsbegleitend und/oder im Rahmen der Auswertung der numerischen Berechnungen die Sensitivität hinsichtlich des konservativ abgeschätzten Faktors von 0,5 untersucht werden. Gegebenenfalls kann für diese Sensitivitätsuntersuchung ein kleineres Modell des Nahbereichs verwendet werden, mit dessen Hilfe dann vereinfachte Annahmen für das Gesamtmodell getroffen werden können.

6 Temperatur-Kriterium

Im Unterschied zu den anderen oben genannten Kriterien ist zur Konkretisierung und Umsetzung der Sicherheitsanforderungen zunächst zu klären, was unter einer „unzulässigen“ Beeinflussung (vgl. Kapitel 2, Punkt 5) der Barrierewirkung durch Temperaturerhöhung zu verstehen ist. Daher werden im Folgenden zunächst bekannte Untersuchungsergebnisse bezüglich der Temperatureinwirkung auf Tongesteine zusammengestellt. Anschließend erfolgt eine Bewertung temperaturinduzierter Veränderungen des Tongesteins hinsichtlich einer signifikanten Veränderung der Barrierewirkung.

Zur besseren Einschätzung der Bedeutsamkeit der Prozesse sind an dieser Stelle zunächst Ergebnisse indikativer Auslegungsberechnungen im Hinblick auf die Temperaturentwicklung dargestellt. Grundlage dieser Berechnungen ist das Einlagerungskonzept (vertikale Bohrlochlagerung) für das Endlagerstandortmodell NORD (Lommerzheim & Jobmann 2015).

Gemäß diesem Konzept bestehen die geotechnischen Barrieren aus den Nahfeldbarrieren, den Bohrlochverschlüssen, den Streckenverschlüssen in den Querschlägen, den Streckenverschlüssen in den Richtstrecken, dem Streckenversatz und den Schachtverschlüssen. Unter den Nahfeldbarrieren werden die geotechnischen Barrieren im Bereich der Einlagerungsbohrlöcher mit Ausnahme des Bohrlochverschlusses verstanden. Dabei setzen sich die Nahfeldbarrieren aus den folgenden Komponenten zusammen (Abb. 6.1):

- Buffer
- Innenliner
- Sandverfüllung
- Rückholbare Kokille (inkl. Abfallmatrix)

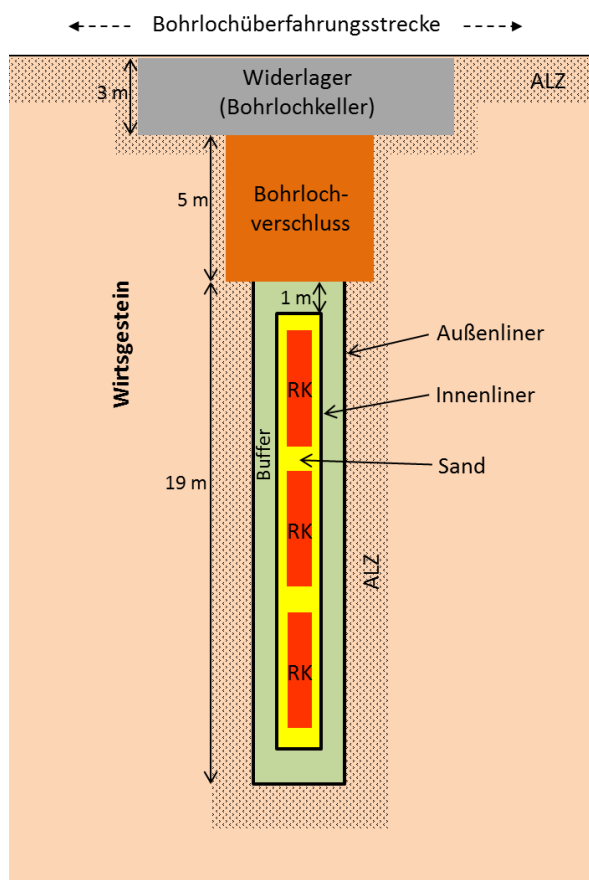


Abb. 6.1:
Schematische Darstellung eines Einlagerungsbohrloches

Funktion, Anforderungen und technisches Design werden im Verfüll- und Verschlusskonzept detailliert beschrieben. Jeweils 3 *Rückholbare Kokillen* (RK) werden in einem 27 m tiefen Bohrloch eingelagert. Die Einlagerung erfolgt dabei innerhalb eines Innenliners aus Metall. Die verbleibenden Hohlräume zwischen Innenliner und den RKs werden mit Sand ausgefüllt. Der Innenliner wiederum wird von einem Buffer umschlossen, der den Kontakt zum Außenliner herstellt, der zur Stabilisierung des Bohrloches vor der Befüllung dient. Die RK wurde in den Auslegungsberechnungen mit einer Zwischenlagerzeit von 23 Jahren angenommen, so dass die Temperatur im Nahbereich der Bohrung Werte erreicht, die innerhalb des Untersuchungsbereiches der im Folgenden beschriebenen Prozesse (30-110°C) liegt. Abb. 6.2(a) zeigt die zeitliche Entwicklung der Temperatur am Bohrlochrand sowie in einer Entfernung von 15 m vom Bohrloch, was der Mitte zwischen zwei Einlagerungsbohrlöchern entspricht. Abb. 6.2(b) zeigt die räumliche Temperaturverteilung zwischen zwei Einlagerungsbohrlöchern zu verschiedenen Zeiten.

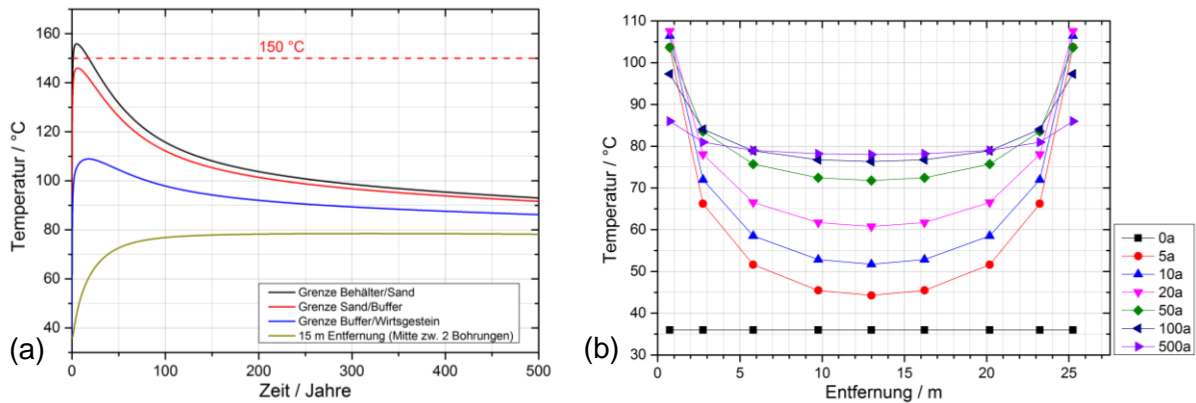


Abb. 6.2: Temperaturentwicklung in der Umgebung eines Einlagerungsbohrloches; (a) zeitliche Entwicklung der Temperatur im Buffer, am Bohrlochrand sowie in einer Entfernung von 15 m vom Bohrloch, was der Mitte zwischen zwei Einlagerungsbohrlöchern entspricht; (b) Räumliche Temperaturverteilung zwischen zwei Einlagerungsbohrlöchern zu verschiedenen Zeiten.

Es zeigt sich, dass die Temperatur in der Mitte zwischen zwei Bohrlochern langfristig nicht über 80°C ansteigt. Lediglich im Nahbereich bis etwa 5 m Entfernung sind die Temperaturen temporär erhöht. Um einen Eindruck von dem gesamten Temperaturimpuls zu bekommen, der von den wärmeentwickelnden Abfällen im Gestein erzeugt wird, wurden mit einem analytischen Computercode Berechnungen bis 100.000 Jahre angestellt, ein Zeitraum, der mit dem numerischen Code nicht realisierbar ist.

Abb. 6.3 zeigt die gesamte Dauer des Temperaturimpulses, den das Endlager an das Wirtsgestein abgibt. Es wird deutlich, dass nach etwa 10.000 Jahren der Temperaturimpuls in einer Entfernung von 15 m von einem Einlagerungsbohrloch weitestgehend abgeklungen ist wobei bereits nach 5.000 Jahren die Temperaturen unter 50°C gesunken sind. Für das Einlagerungskonzept der horizontalen Streckenlagerung im Endlagerstandortmodell SÜD (Jobmann & Lommerzheim 2015) werden zunächst vergleichbare Temperaturverläufe in der Umgebung der Behälter bzw. der Einlagerungsstrecken angenommen.

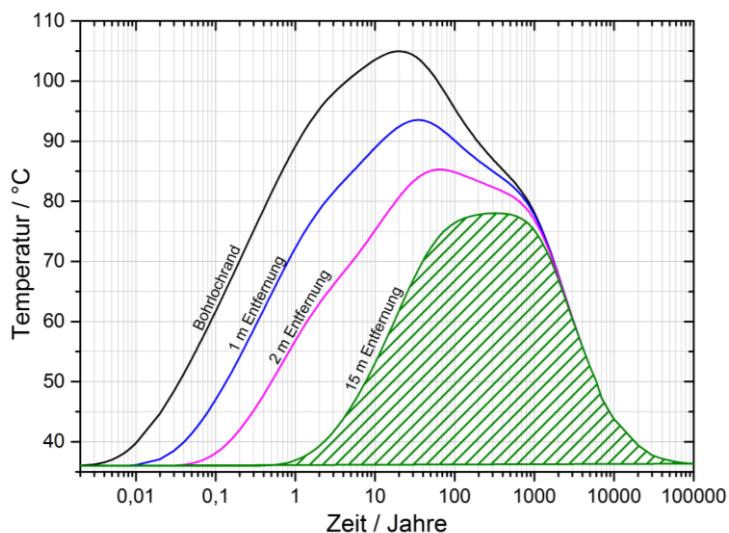


Abb. 6.3: Zeitlicher Verlauf der Temperatur in der Umgebung des mittleren Einlagerungsbohrloches des gesamten Einlagerungsfeldes für Wärme entwickelnde Abfälle

Als Arbeitshypothese wird in den folgenden Kapiteln eine Temperaturobergrenze von 150° angesetzt, da für höhere Temperaturen zu wenige Daten für eine Bewertung vorliegen. Die Ausführungen beziehen sich also nur auf diesen Temperaturbereich.

6.1 Thermo-hydro-mechanische Effekte

6.1.1 Expansion und Kontraktion

Laborversuche mit gesättigtem Boom Clay (Sultan et al. 2002, Baldi et al. 1991) und ungesättigtem MX-80-Bentonit (Tang et al. 2008) zeigten in Übereinstimmung mit früheren Beobachtungen für andere gesättigte Tonsteine (s. Quellenangabe in Tang et al. 2008), dass Erhitzung eines kompaktierten oder natürlichen Tonsteins zu seiner Kontraktion bei niedrigen Werten (≤ 1) des Konsolidierungsverhältnisses (engl.: overconsolidation ratio, OCR) führt. Bei hohen OCR-Werten geht eine thermische Expansion des Tonsteins ab einer bestimmten Temperatur in eine Kontraktion über. Diese Temperatur nimmt von ca. 80°C bei OCR von 12 auf ca. 50°C bei OCR von 2 nahezu linear ab (Abb. 6.4).

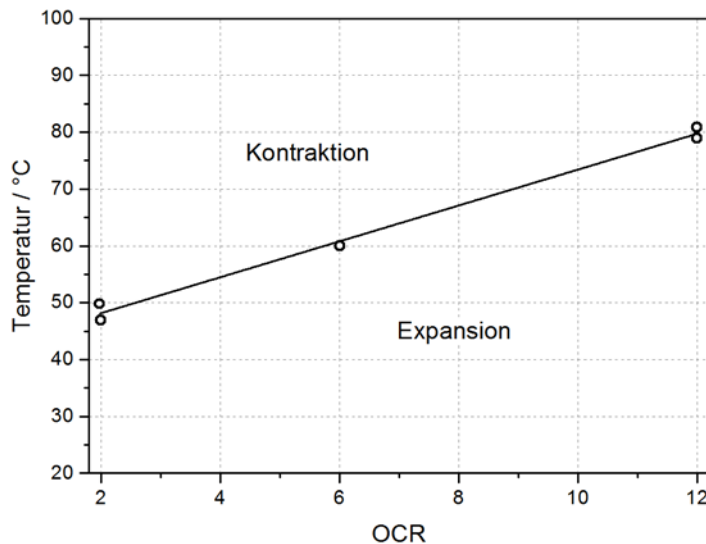


Abb. 6.4: Temperatur des Expansion-Kontraktion-Übergangs als eine Funktion des Konsolidierungsverhältnisses (OCR) für Boom Clay (Sultan et al. 2002, Baldi et al. 1991).

Es wurde auch in Laborversuchen an einen spanischen Ton mit einem hohen Karbonatgehalt eine Expansion bei 22°C und 50°C gefolgt von einer Kontraktion bei 80°C, 100°C und 120°C beobachtet (Hueckel et al. 2009). Im großskaligen In-situ-Versuch ATLAS im HADES-Untertagelabor wurden entlang desselben Temperaturpfades (im Bereich von 20–95°C) eine Verschiebung von einer Expansion bei OCR=6 zu einer Kompaktion bei OCR=2 und einer noch stärkeren Expansion bei OCR=2 festgestellt (François et al. 2009). Als Resultat dieser Kompaktion erhöhten sich irreversibel die Festigkeit und der Vorkonsolidierungsdruck des Tons. In einem weiteren Beispiel wurde für eine tonige Störungslette (engl.: clayey gouge) in der Teufe von 760m in der seismisch aktiven Zone des Golf von Korinth eine Kompaktion beim Erhitzen festgestellt (Sulem et al. 2007).

Allerdings wird das volumetrische Verhalten eines ungesättigten Tonsteins bei Erhitzung nicht nur durch das Konsolidierungsverhältnis, sondern auch durch die Saugspannung gesteuert. So findet eine Tonsteinexpansion bei hohen Saugspannungen auch oberhalb der zuvor erwähnten Übergangstemperatur statt (Tang et al. 2008). Während thermische Tonsteinexpansion aufgrund einer thermischen Ausdehnung von Tonmatrix und Tonporenwasser zustande kommt, resultiert thermische Tonsteinkontraktion aus der mechanischen Schwächung der intergranularen Reibung. Zhang et al. (2010) haben experimentell gezeigt, dass der Konsolidierungsprozess trotz verschiedener Porenwasserdruckbelastungen stetig fortschreitet.

Der Abb. 6.5 kann entnommen werden, dass die mechanische Schwächung der intergranularen Reibung durchaus mit der Freisetzung des in Schichtzwischenräumen und an Oberflächen der Tonminerale adsorbierten Wassers einhergehen kann (Jobmann & Polster 2007). Der anfänglichen Expansion des Materials bei steigender Temperatur durch Expansion von Mineralmatrix und Porenwasser folgt eine Phase, bei der Expansion und

Wasserfreisetzung sich zunächst kompensieren bis dann die Wasserfreisetzung überwiegt. Dies führt dann zu einer Kontraktion des Materials. Bei weiter steigender Temperatur, beginnend bei etwa 110°C, erfolgt dann eine pulsweise Freisetzung von Wasser, das jetzt aus den Zwischenschichten in den Porenraum gelangt und anschließend freigesetzt wird. Eine Freisetzung von Wasser führt zu einem Porenkollaps, was zu einer Konsolidierung des Tongesteins führt.

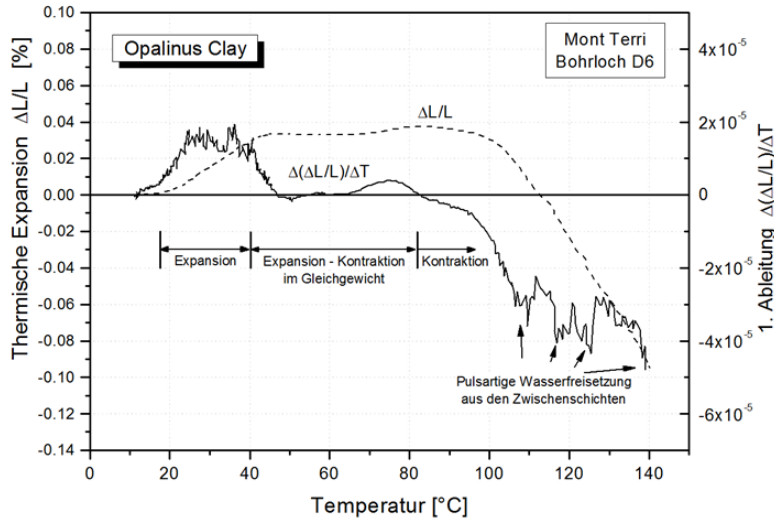


Abb. 6.5:
Expansion, Kontraktion und Wasserfreisetzung im Opalinuston als eine Funktion der Temperatur (vereinfacht nach Jobmann & Polster 2007).

Weitere Untersuchungen zeigen, dass der Expansions-Kontraktionspunkt auch spannungsabhängig ist. Das volumetrische Verhalten eines aus einer Störungslette entnommenen Tonsteinprobe (Abb. 6.6) zeigt, dass die Temperatur des Expansion-Kontraktion-Übergangs mit steigender effektiver Spannung abnimmt (Faulkner & Rutter 2003). Während sie bei einer niedrigeren effektiver Spannung von 25 MPa bei etwa 80°C liegt, verschiebt sie sich zu etwa 40°C bei der effektiven Spannung von 50 MPa und etwa 30°C bei der effektiven Spannung von 75 MPa.

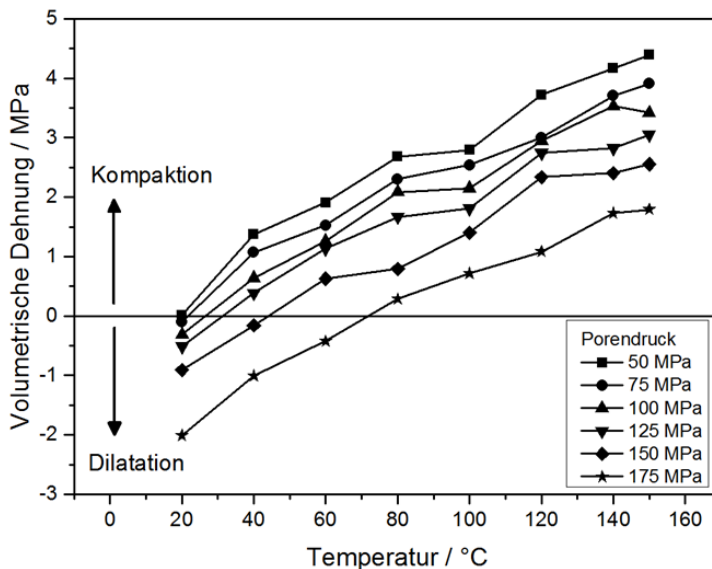


Abb. 6.6:
Volumetrisches Verhalten des aus einer Störungslette entnommenen Tons über Temperatur in Abhängigkeit vom Fluidruck bei einem Manteldruck von 200 MPa (Reproduziert nach Faulkner & Rutter 2003).

Untersuchungen von Zhang et al. (2010) machen deutlich, dass unter ungesättigten bzw. drainierten Bedingungen eine durch Erhitzung bedingte Porenwasserfreisetzung zu einem Porenkollaps und somit zu einer Tonsteinkonsolidierung führt. Aber auch unter annähernd gesättigten bzw. annähernd undrainierten Bedingungen findet eine Tonsteinkontraktion nach Überschreiten der Temperatur des Expansion-Kontraktion-Übergangs statt (Abb. 6.7).

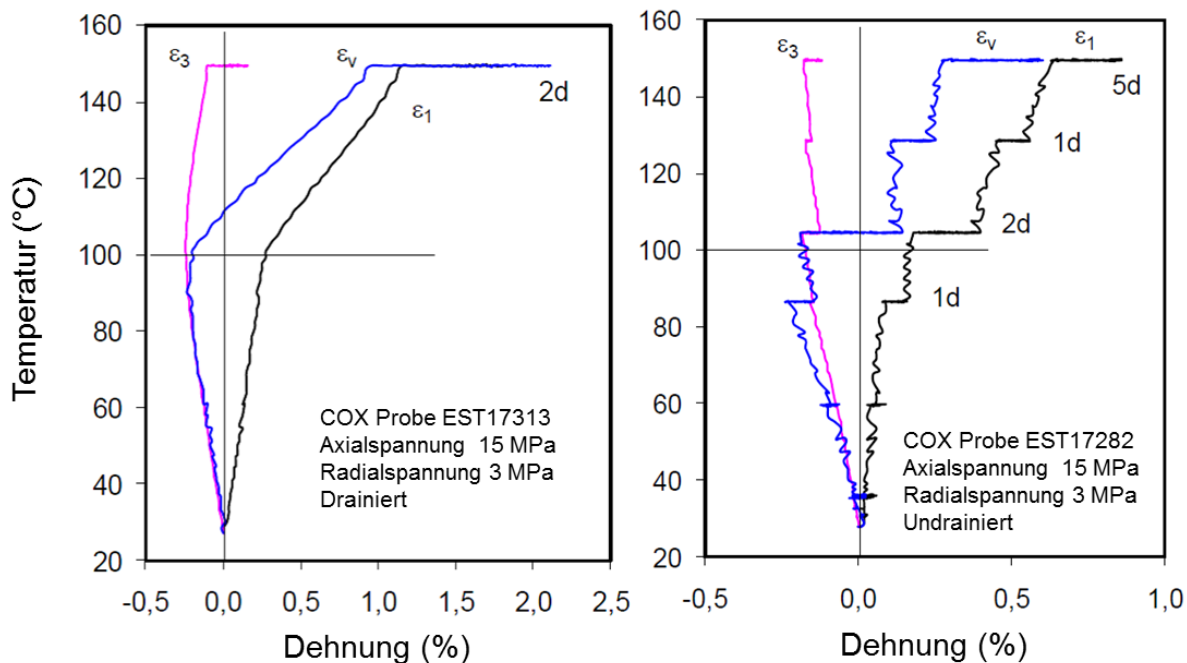


Abb. 6.7: Expansion und Kontraktion des Callovo-Oxfordian-Argillit als eine Funktion der Temperatur in drainierten (links) und annähernd undrainierten (rechts) triaxialen Deformationsversuchen (Zhang et al., 2010); (d=days); positive Werte entsprechen hier einer Kompaktion.

Da eine hohe Saugspannung im Tonstein die intergranulare Reibung erhöht, verschiebt sich die Temperatur des Expansion-Kontraktion-Übergangs zu höheren Werten (Tang et al. 2008). Im Einklang mit diesen Untersuchungen steht die Beobachtung aus Triaxialversuchen mit Bohrkernen aus dem Callovo-Oxfordian Tonstein (Zhang et al. 2010), in denen bei 90°C unter drainierten Bedingungen (höhere Saugspannung) eine thermische Expansion und unter undrainierten Bedingungen (niedrigere Saugspannung) eine thermische Kontraktion des Tonsteins stattfand (s. Abb. 2.57 dort). In diesem Zusammenhang ist ferner zu berücksichtigen, dass sich die Saugspannung eines kompaktierten Bentonites beim Erhitzen von 25°C auf 120°C je nach Wassergehalt um 20 bis 40% vermindern kann (Jacinto et al. 2009).

Des Weiteren wurde aus experimentellen Ergebnissen geschlossen, dass thermische Tonkontraktion auch nach einer anschließenden Abkühlung bestehen bleibt, während thermische Tonexpansion reversibel ist (Tang et al. 2008). Im In-situ-Versuch HE-D im Untertagelabor Mont Terri, in dem die Temperatur an der Grenzfläche zwischen einem Erhitzer und dem Opalinuston den Höchstwert von 100°C erreichte, wurde eine reversible thermische Expansion des Opalinustons beobachtet (Zhang et al. 2007). Hierzu ist allerdings anzumerken, dass die im Opalinuston während des HE-D-Versuchs erreichten Temperaturen bereits bei Entfernungen von über ca. 0,8 m vom Erhitzer nicht den Wert von 51°C überstiegen (Kull et al. 2007, Zhang et al. 2007). Im Hinblick auf den zuvor erwähnten Wertebereich der Temperatur des Expansion-Kontraktion-Übergangs und seine Abhängigkeit von der Saugspannung ist das Auftreten einer Tonkontraktion im gleichen Tonstein bei höheren Temperaturen nicht ausgeschlossen.

6.1.2 Thermische Eigenschaften

Die Kontraktion von Opalinuston machte sich auch in einer geringen Erhöhung der Wärmeleitfähigkeit bei Temperaturen von über 110°C bemerkbar (Abb. 6.8). Die leicht verbesserte Wärmeleitfähigkeit ist bedingt durch den besseren Kontakt der Mineralmatrix und den verringerten Porenraum, der mit schlecht wärmeleitenden Fluiden gefüllt ist.

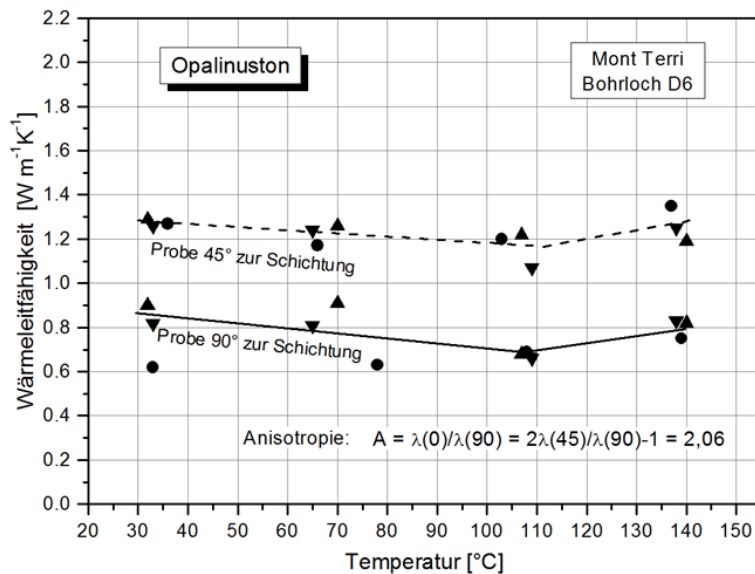


Abb. 6.8: Wärmeleitfähigkeit des Opalinustons als eine Funktion der Temperatur (vereinfacht nach Jobmann & Polster 2007).

6.1.3 Mechanische Eigenschaften

Hinsichtlich der mechanischen Eigenschaften des Opalinuston wurde im Rahmen von Laborversuchen folgendes beobachtet (Gräsele 2012, Gräsele & Plischke 2010):

Bei Temperaturen von 60 bis 80°C wurde für Opalinuston im Vergleich zu Untersuchungen im Temperaturbereich von 20 bis 35°C eine Reduzierung der Bruchfestigkeit sowie der Restfestigkeit und des E-Moduls im gesättigten und trockenen Zustand festgestellt (Abb. 6.9 bis Abb. 6.11), (Bem.: die in den drei Abbildungen als „dry“ markierten Proben bezeichnen gegenüber dem In-situ-Zustand deutlich ausgetrockneten Proben, wobei ein Wassergehalt von 6,3 Gew-% als Grenze zwischen „dry“ und „moist“ verwendet wurde). Allerdings waren diese Laborversuche, ähnlich wie zuvor diskutierter HE-D-Versuch im Opalinuston, noch im Temperaturwertebereich unterhalb des Expansion-Kontraktion-Übergangs und somit noch im Expansionszustand.

Eine thermische Tonsteinkontraktion hingegen erhöht generell die Festigkeit und Steifigkeit des Tonsteins. Zhang et al. (2010) haben Gesteinsproben aus dem Callovo-Oxfordian Tonstein im Temperaturbereich von 90 bis 150°C, welcher oberhalb des Expansions-Kontraktions-Übergangs liegt, untersucht und festgestellt, dass die Festigkeit des Tonstein unter der thermischen Belastung deutlich größer geworden ist.

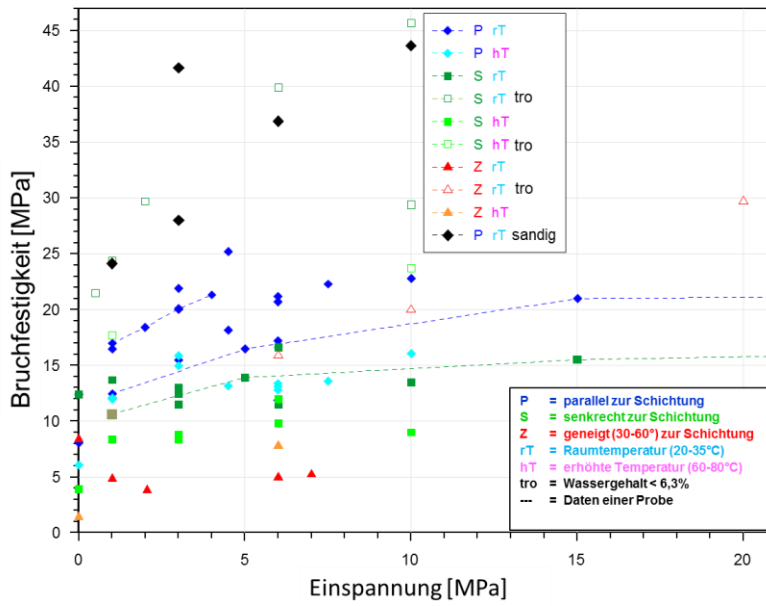


Abb. 6.9: Bruchfestigkeit des Opalinustons als eine Funktion des Manteldruckes (Gräsle 2012).

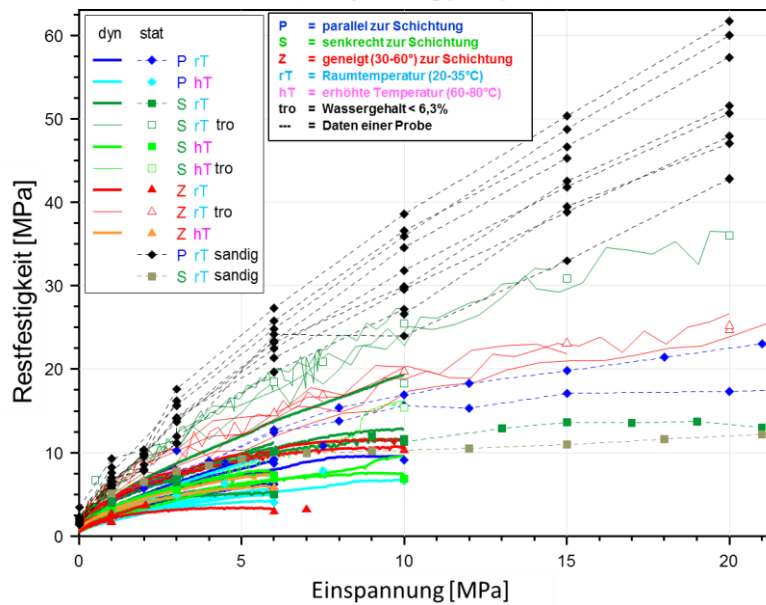


Abb. 6.10: Restfestigkeit des Opalinustons als Funktion des Manteldruckes (Gräsle 2012).

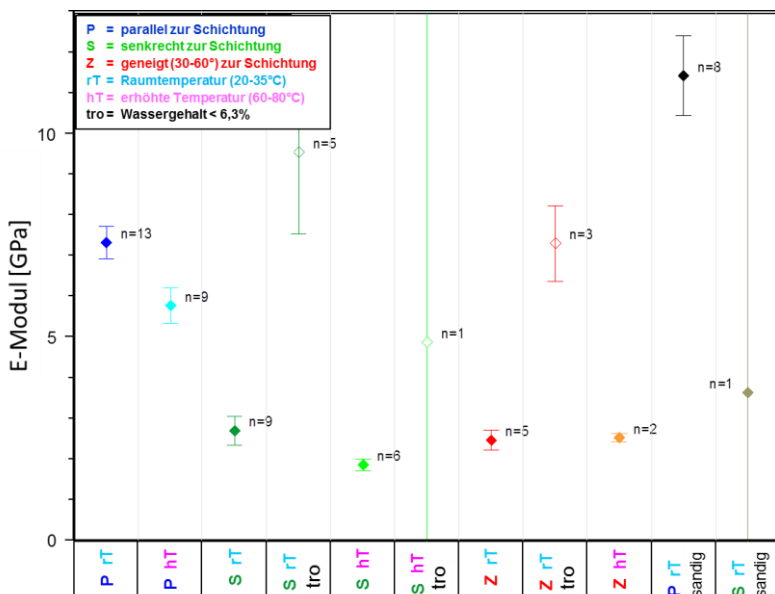


Abb. 6.11: E-Modul des Opalinustons (Gräsle 2012).

Auch die rheologischen Eigenschaften von Tongestein sind abhängig von der Temperatur. Seitens GRS wurden sowohl einaxiale als triaxiale Kriechversuche durchgeführt (Zhang et al. 2007, Zhang et al. 2013). Es zeigte sich, dass neben dem Kurzzeiteffekt der thermischen Expansion und Kontraktion auch eine Langzeitverformung also ein Kriechen stattfindet. In Abb. 6.12 sind die Kriechraten von Proben des Callovo-Oxfordian Tonstein dargestellt. Die Messungen wurden bis zu einer Temperatur von 110°C durchgeführt und zeigen ein Ansteigen der Kriechrate mit steigender Temperatur.

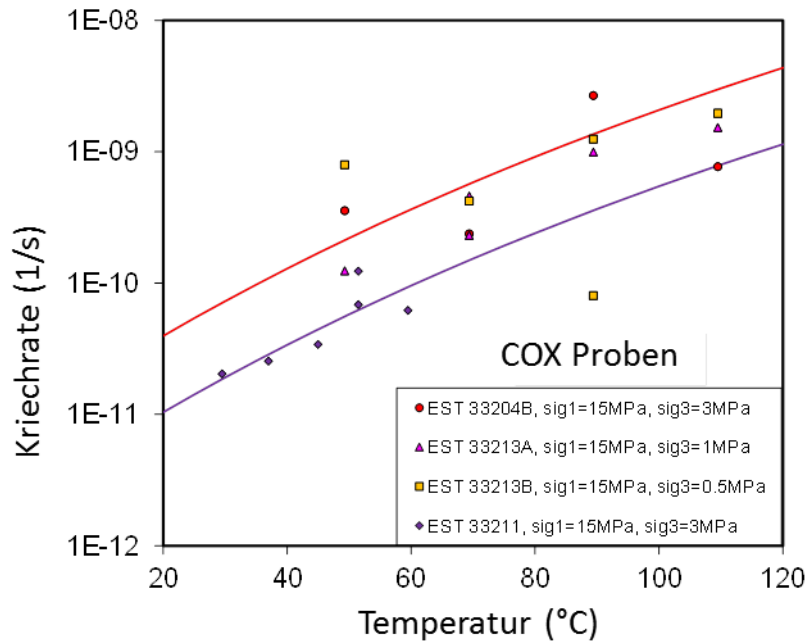


Abb. 6.12:
Scheer-Kriechrate von Callovo-Oxfordian Tonstein in Abhängigkeit von der Temperatur (Zhang et al. 2013)

Das Ansteigen der Kriechrate deutet darauf hin, dass die Duktilität des Materials und damit die Verformbarkeit mit steigender Temperatur zunimmt. Zhang et al. (2007) deutet das so, dass die Reibung durch die sich verringernde Viskosität des Porenfluides mit steigender Temperatur herabgesetzt wird. Er deutet aber auch an, dass wenn das Porenfluid migriert und das Gestein sich konsolidiert und somit seine Festigkeit verbessert, sich die Kriechfähigkeit wieder reduzieren kann (Zhang et al. 2007, Zhang et al. 2013).

6.1.4 Hydraulische Eigenschaften

Ein Versuch mit natürlichen Tonproben aus einer Störungslette (*engl.*: clayey gouge) bei Temperaturen von bis zu 150°C zeigte für von 20°C bis auf 80°C steigende Temperaturen eine zunehmende Wasserpermeabilität (Faulkner & Rutter 2003). Bei weiterem Temperaturanstieg über 80°C hinaus nahm jedoch die Wasserpermeabilität stetig ab (Abb. 6.13). Das Verhalten bei Temperaturen <80°C wurde der zunehmenden Destabilisierung und Desorption von an Mineraloberflächen adsorbierten Wasserschichten, die die Wasserpermeabilität verhindern, zugewiesen. Bei höheren Temperaturen dominiert dann die Tonkompaktion, die zu einer Porositätsabnahme und infolgedessen zu einer Permeabilitätsabnahme führt. Bei effektiven Spannungen ≤ 75 MPa wurde keine zunehmende sondern eine konstante Wasserpermeabilität bei Temperaturen <80°C beobachtet, das durch eine über die adsorbierten Wasserschichten hinaus reichende Porenaufweitung zurückgeführt wurde. Auch bei diesen niedrigeren effektiven Spannungen wurde die stetige Abnahme der Wasserpermeabilität bei Temperaturen >80°C verzeichnet.

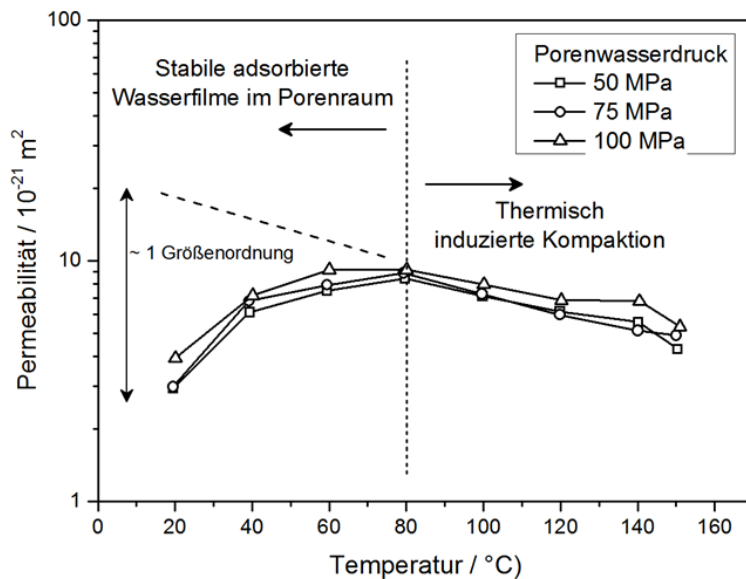


Abb. 6.13: Permeabilität der aus einer Störungslette entnommenen Tonsteinprobe in Abhängigkeit von der Temperatur und dem Fluidruck bei einem Manteldruck von 200 MPa. Gestrichelte Linie zeigt den Permeabilitätstrend für Argon unter gleichen Versuchsbedingungen (Faulkner & Rutter 2003).

Diese Beobachtungen stehen im Einklang mit Laboruntersuchungen an Callovo-Oxfordian Tonstein, Boom Clay und Opalinuston. Eine Erhitzung des nahezu gesättigten Callovo-Oxfordian Tonsteins auf bis zu 150°C führte im Rahmen von Laborversuchen zu keiner Rissbildung (axiale Spannung 15 MPa, radiale Spannung 3 MPa). Dabei sank seine Wasserpermeabilität innerhalb von 1,5 Jahren von 10^{-17} m^2 auf den Wert von 10^{-19} m^2 , der mit dem Wert für den intakten Tonstein vergleichbar ist (Zhang 2011, Zhang et al. 2010). Die thermische Vorbehandlung bis 150°C verursachte keinen messbaren Einfluss. Für Opalinuston-Proben wurde von Monfared et al. (2014) eine Reduzierung der Permeabilität bei erhöhten Temperaturen festgestellt, die auf die Effekte zurückgeführt wurden, die in Kapitel 6.1.1 beschrieben sind. Chen et al. (2014) stellten keine Änderung der Permeabilität von Opalinuston-Proben fest bei Temperaturerhöhungen bis 80°C, lediglich eine Erhöhung der hydraulischen Durchlässigkeit aufgrund der Reduzierung der Viskosität des Porenfluides.

Ferner wurde aus der Stetigkeit von Druckveränderungen im HE-D-Versuch im URL Mt. Terri geschlossen, dass weder die Erhitzung noch die anschließende Abkühlung eine thermisch induzierte Rissbildung im Tonstein verursachte (Kull et al. 2007, Zhang et al. 2007). Eine Auswertung von Druckabfallkurven ergab zudem für den erhitzten Tonstein Wasserpermeabilitätswerte von $10^{-20} - 10^{-19} \text{ m}^2$, die denen des intakten Tonsteins ähnlich sind.

In-situ-Permeabilitätsmessungen, die im Rahmen des TED Erhitzerversuches im Bure-URL zu verschiedenen Zeiten wiederholt durchgeführt wurden, wiesen keine messbare Änderung der Permeabilität aufgrund der Erhitzung des Callovo-Oxfordian Tonsteins aus (Conil 2012). Dabei ist zu bemerken, dass der Tonstein auf nicht mehr als 70°C erhitzt wurde, so dass der Versuch innerhalb des Expansionsbereiches verlief.

6.1.5 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 Porendruckanstieg auf 0,6 MPa umgewandelt werden (Huang et al. 1994). Ein weiterer Temperaturanstieg auf 313°C führte zwar zu einem Porendruckanstieg 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 Porendruck 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. Der Zwischenschichtwasserverlust in diesem geschlossenen System führte zu einem Anstieg des Porendruckes 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, zu einer leichten temporären Erhöhung des Porendruckes und insgesamt zu einer Konsolidierung des Tonsteins.

6.1.6 Erzeugung hydraulischer Gradienten

Die Erhitzung eines gesättigten Tonsteins führt zu einer Erhöhung des Porendruckes durch die thermische Ausdehnung des Porenfluides. Dadurch werden hydraulische Druckgradienten im Tonstein erzeugt, die dazu führen, dass Fluide, die sich in den Poren befinden, beginnen, in Richtung des geringeren Druckes zu migrieren. Dieser Prozess kann in allen bisher durchgeführten In-situ-Erhitzeversuchen in den Untertagelaboratorien und auch in Laborexperimenten beobachtet werden. Die Geschwindigkeit des Druckabbaus und damit des Migrationsprozesses ist abhängig von der Permeabilität des Tonsteins (Jobmann et al. 2007a, Zhang et al. 2010). Dieser Prozess ist zeitlich begrenzt und reversibel, solange das Fluidruck-Kriterium nicht verletzt wird. Erfahrungen aus den durchgeführten In-situ-Erhitzeversuchen zeigen, dass der Druckabbau in einem Zeitraum von etwa 1 Jahr erfolgt.

Durch die annähernd gleichmäßige Erwärmung eines kompletten Einlagerungsfeldes sind die zu erwartenden Druckgradienten innerhalb des Feldes gering, sodass von einer geringen induzierten Fluidbewegung ausgegangen werden kann. Druckgradienten werden dann nur noch im Randbereich eines Einlagerungsfeldes vorhanden sein. Kühlt der Tonstein aufgrund der nachlassenden Wärmeleistung der Behälter wieder langsam ab, so kontrahiert das Porenfluid wieder und der Druck wird entsprechend abgebaut. Dieser zusätzliche Druckabbau durch Kontraktion beschleunigt den Druckabbau durch Migration. Zusätzlich wird der Druck noch durch Reibungskräfte abgebaut, so dass auch die räumliche Ausdehnung der „Druckstörung“ begrenzt ist. Ist der Druck abgebaut, endet auch der dadurch bedingte Migrationsprozess.

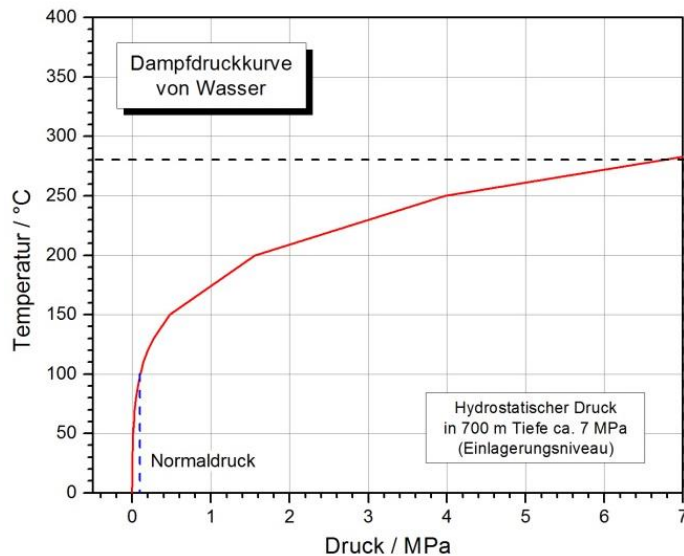
Die räumliche und zeitliche Ausdehnung der thermisch induzierten Drainage sollte im Rahmen von gekoppelten THM-Berechnungen quantifiziert werden. Aus jetziger Sicht wird davon ausgegangen, dass eine Beeinträchtigung der Barrierewirkung des Wirtsgesteins durch Erzeugung hydraulischer Gradienten solange nicht erfolgt, wie das Fluidruck-Kriterium erfüllt ist. In diesem Zusammenhang wird das Fluidruck-Kriterium als abdeckend angesehen.

6.1.7 Verdampfen von Wasser

Nach Auffahrung der Einlagerungsbohrlöcher (Standortmodell NORD) bzw. der Einlagerungsstrecken (Standortmodell SÜD) kommt es bedingt durch die Bewitterung vor dem Einbringen der Behälter und des Versatz- und Verschlussmaterials zu einer teilweisen Austrocknung am Rand der Bohrlöcher bzw. Strecken. Dieser ungesättigte Bereich besteht nicht nur aus der Auflockerungszone, sondern kann auch einen kleinen Teil des sich anschließenden ungeschädigten Gebirges einnehmen. Nach Verschließen der Bohrlöcher bzw. Strecken

kommt es zu einer langsamen Wiederaufsättigung des ungesättigten Bereiches und es stellt sich das ursprüngliche hydrostatische Druckniveau wieder ein.

Ein Verdampfen von Wasser erfolgt spätestens nach Überschreiten des Siedepunktes. Abb. 6.14 zeigt die Dampfdruckkurve von Wasser. Berücksichtigt man den hydrostatischen Druck im Einlagerungsniveau, so wird deutlich, dass der Siedepunkt unter Endlagerbedingungen



bei etwa 280°C liegt. Deutlich wird auch, dass es bereits bei nur kleinen Druckerhöhungen zu einem deutlichen Anstieg der Siedetemperatur kommt. Eine Erhöhung um 0,5 MPa bedeutet beispielsweise eine Siedepunkterhöhung auf etwa 150°C.

Abb. 6.14: Dampfdruckkurve von Wasser im Bereich von 0 bis 7 MPa.

Unter diesen Bedingungen und der Tatsache, dass Temperaturen von mehr als ca. 80°C nur innerhalb der ersten 5 m Entfernung vom Bohrloch oder der Strecke auftreten, ist ein signifikantes Verdampfen von Wasser nur in diesem begrenzten Gesteinsbereich zu erwarten solange das ursprüngliche hydrostatische Druckniveau noch nicht wieder erreicht ist.

6.1.8 Gaseindringdruck

Die Erhitzung eines gesättigten Tonsteins führt zu einer Erhöhung des Porendruckes durch die thermische Ausdehnung des Porenfluides. Durch die Erhöhung des Porendruckes im Wirtsgestein erhöht sich auch der Widerstand gegen das Eindringen von Gas aus dem Grubengebäude, da das Gas diesen erhöhten Widerstand erst überwinden muss, bevor es in das Gestein eindringen kann.

6.2 Chemische, biologische und mineralogische Effekte

6.2.1 Illitisierung von Smektiten

Die spezifische Oberfläche und die Kationenaustauschkapazität von Smektiten sind sehr viel höher als die von Illiten. Der Reaktionsumsatz Smektit zu Illit kann also Auswirkungen auf das Retentionsverhalten des entsprechenden Tonsteins haben. 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% I in I/S (Illit in Illit/Smektit-Wechselagerungen) 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).

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

$$S^4 = S_0^4 / (1 + 4 \cdot 74,2 \cdot t \cdot S_0^4 \cdot A \cdot e^{(-2490/T - E_a/RT)}) \quad (6.1)$$

$A = 5,2 \cdot 10^7 \text{ sec}^{-1}$, E_a = Aktivierungsenergie (33 kcal/Mol), S_0 = Ausgangswert im Smektit, S = erreichter S-Anteil in I/S, t = Zeit, T = Temperatur, R = Allg. Gaskonstante. Unter der Annahme von initial 90% Smektit in I/S wurden mittels Gleichung (6.1) die bei Temperaturen von 200, 150, 100 und 75°C erreichten Smektit-Gehalte als Funktion der Zeit berechnet und die Ergebnisse in Abb. 6.15 dargestellt.

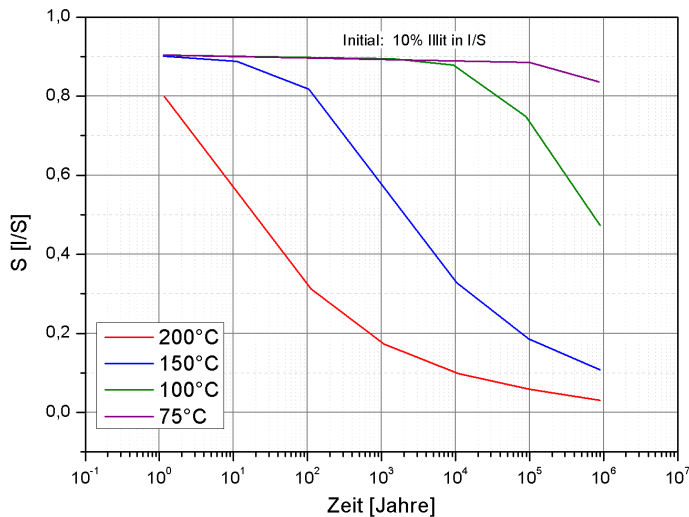


Abb. 6.15:
Zusammenhang zwischen Gebirgstemperatur und Smektit in I/S-Wechselagerungen als Funktion der Zeit in einer durch externen Wärmeeintrag beeinflussten Tonsteinformation (nach Pytte & Reynolds 1989).

Man erkennt in Abb. 6.15, 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. Für Temperaturen von 100°C und von 75°C setzt eine sichtbare Illitisierung jedoch frühestens nach 10.000 bzw. nach 100.000 Jahren ein. Bedenkt man, dass der durch ein Endlager induzierte Temperaturimpuls nach etwa 10.000 Jahren abgeklungen ist und der Zeitbereich der Temperatur oberhalb von 75°C größenordnungsmäßig nur wenige hundert Jahre beträgt, und bedenkt man außerdem, dass dieser Bereich erhöhter Temperatur sich auf einen Bereich von wenigen Metern um einzelnen Einlagerungsbohrlöcher oder Einlagerungsstrecken beschränkt, so kann man davon ausgehen, dass keine nennenswerten Illitisierungen innerhalb der geologischen Barriere zu erwarten sind. Diese Aussage wird durch Laboruntersuchungen von Huang et al. (1993) bestätigt, die in einer sehr gründlichen und häufig zitierten Arbeit 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 selbst bei geringen K-Gehalten 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 (Abb. 6.16).

Gemäß der mineralogischen Zusammensetzung des mittleren Apt im Norddeutschen Becken hat dieser einen Anteil von 34 Gew.-% Illit und 11 Gew.-% Smektit (Mengel 2006). Der Anteil von Alkalifeldspäten, die die Quelle von Kalium für Illitisierung von Smektit darstellen, liegt unter der Nachweisgrenze von 1 bis 3 Gew.-% der verwendeten röntgenographischen Methode. Unter den konservativen Annahmen, dass kein Albit vorliegt und Illit einen niedrigen Kalium-Gehalt aufweist, wurde aus dem gesamten K₂O-Gehalt der Alkalifeldspat-Anteil von < 0.6 Gew.-% im Apt-Tonstein abgeleitet. Daraus ergab sich ein maximal möglicher Illitisierungsgrad von 10% Illit in Illit/Smektit-Wechselagerung, d.h. aus dem Gesamtanteil von 11 Gew.-% Smektit würden 11 Gew.-% Wechselagerungsminerale mit einem 10-prozentigen Illitisierungsgrad entstehen (Mengel 2006). Dies alles setzt genügend hohe Temperaturen

über einen genügend langen Zeitraum voraus: Bei einer Temperatur von 120°C und 200 ppm Kalium im Porenwasser (5 mM, wahrscheinliche K-Konzentration) sind dafür ca. 20.000 Jahre erforderlich, bei 150°C oder 100°C etwa 2.000 bzw. 200.000 Jahre (s. Abb. 4.8 und 4.9 dort) (Mengel 2006).

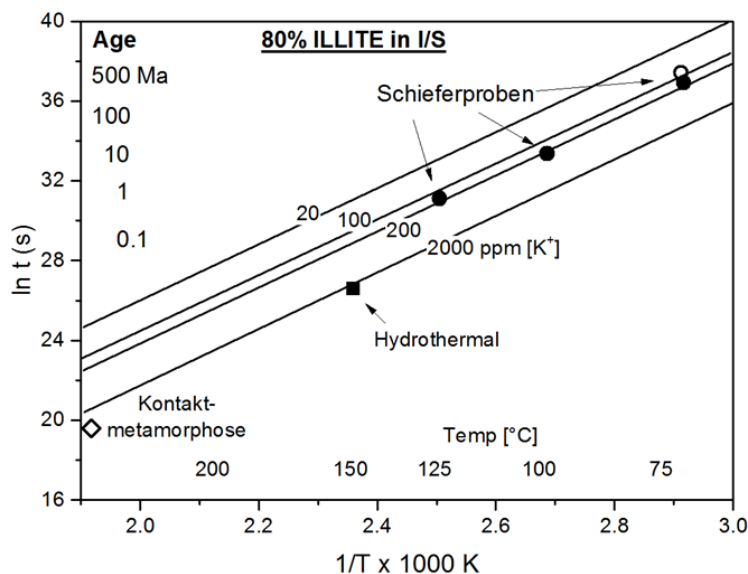


Abb. 6.16:
Entwicklung des Smektitgehaltes innerhalb von Illit/Smektit-Wechselagerungen als Funktion der Zeit in Abhängigkeit von der Temperatur und dem Kaliumgehalt (reproduziert nach Huang et al. 1993).

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 für Bentonit. Es wird dabei festgestellt, dass eine Erhitzung des gesättigten Bentonites für 200 Jahre bei 150°C und einem unbegrenzten K-Angebot nur zu einer maximal fünfprozentigen Illitisierung führen wird.

6.2.2 Smektitisierung von Illiten

Für die Betrachtung der Tonalteration unter Temperatureinfluss kann das Beispiel von Pliozän-Tonstein in Orciatice (Italien) (Leoni et al. 1986, Hueckel & Pellegrini 2002), der eine magmatische Intrusion in Form eines Lakkolith und eine Temperaturerhöhung auf geschätzte 400 – 800°C erfahren hat, herangezogen werden. Diese Temperatureinwirkung führte zu einer Destabilisierung von Illit sowie zu einer Smektit- und Kaliumfeldspat-Neubildung, die vermutlich aufgrund einer beschleunigten Abkühlung und damit verbunden durch eine Rissbildung im Tonstein und eine konvektive Wasserzirkulation in den Rissen herbeigeführt wurde (Leoni et al. 1986, Hueckel & Pellegrini 2002). Dieser Prozess resultierte in einem lokalen Anstieg des Smektitgehaltes im Ton von 0 auf bis zu 25% und einer Abnahme des Illitgehaltes von ca. 35% auf 10 – 20%.

Neuere Untersuchungen von Herbert et al. (2011) zeigen zudem, dass Smektitisierung von Illiten auch bei Temperaturen von unter 70°C in einem Tonstein ablaufen kann.

6.2.3 Zementierung durch Silica- und Illit-Neubildung

Als ein weiterer möglicher Effekt der Erhitzung wird in der Arbeit von Wersin et al. (2007) die Auflösung von SiO₂ im Tonstein genannt, gefolgt von seiner Repräzipitierung bei Abkühlung, die mit einer Porenzementierung einhergeht und sowohl die Plastizität, die hydraulische Leitfähigkeit als auch die Quellfähigkeit des Tonsteins beeinflussen kann. Die vorliegenden Erkenntnisse aus experimentellen Untersuchungen und Naturanalogie-Studien wurden jedoch dahingehend interpretiert, dass der Effekt keine oder nur geringfügige Veränderungen dieser Tonsteineigenschaften bei Temperaturen von bis zu 130°C hervorruft. Obwohl die Veränderungen durch Zementierung und Illitisierung bei 150°C signifikanter werden, bleiben die günstigen hydraulischen Eigenschaften des Tonsteins erhalten. Bezeichnend in dieser Hinsicht ist das Beispiel einer Gotland-Bentonit-Probe, die für 10 Millionen Jahre bis etwa 100°C erhitzt war und in der der Illit-Anteil 100% betrug: Trotz des fehlenden Quelldrucks wies sie eine hydraulische Leitfähigkeit von $2 \cdot 10^{-11}$ m/s auf (Wersin et al. 2007).

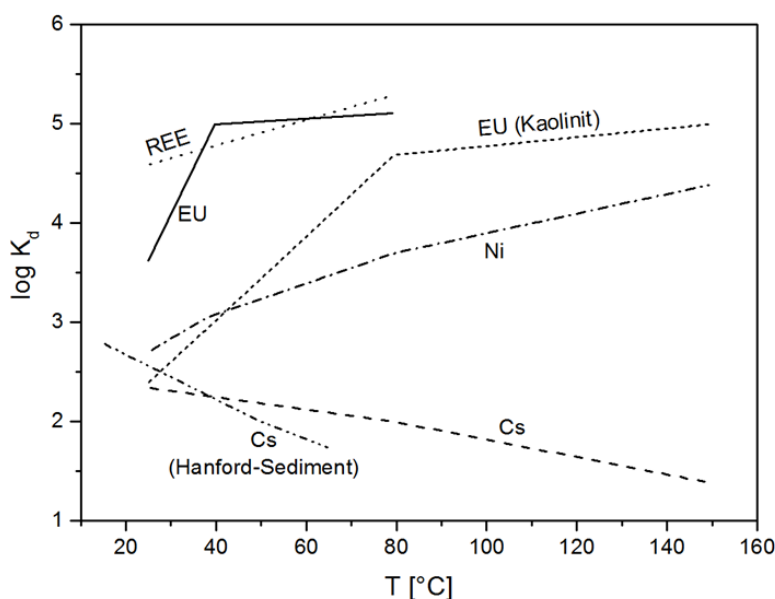
6.2.4 Thermochemische Sulfatreduktion

Nachgewiesen ist dieser Prozess über geologische Zeiträume für Temperaturen ab 80°C. Auf der Grundlage experimenteller Befunde 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. Bei 90°C beträgt die extrapolierte Halbwertszeit des Sulfats ca. 210.000 Jahre, falls keine anderen limitierenden Faktoren vorliegen (Truche et al. 2009). Nach Cross et al. (2004) kann die Hälfte des Sulfats im Tonporenwasser zu korrosivem Hydrogensulfid innerhalb von ca. 1.650 Jahren bei einer Temperatur von 150°C oder innerhalb von ca. 20.000 Jahren bei einer Temperatur von 125°C umgewandelt werden.

Durch die anfängliche Temperaturerhöhung im Einlagerungsbereich auf mehr als 80°C, die möglicherweise bei Anwesenheit von Wasser durch Metallkorrosion oder Radiolyse verursachte Produktion von molekularem Wasserstoff sowie die Anwesenheit von Kohlenwasserstoffen in den Wirtsgesteinsschichten, liegen im Nahfeld bzw. der Auflockerungszone prinzipiell Voraussetzungen für den Ablauf des Prozesses der thermochemischen Sulfatreduktion vor. Weiter entfernt vom Nahfeld und vom angrenzenden aufgelockerten Gesteinsbereich sind zwar die Edukte in meist geringen Mengen vorhanden, doch wird die Mindesttemperatur von ca. 80°C in mehr als 5 m Entfernung von Einlagerungsbohrlöchern oder -strecken (Abb. 6.2) nicht mehr erreicht.

6.2.5 Sorptionseigenschaften

Quantifizierbare Aussagen für das Retentionsverhalten von Tonsteinen für erhöhte Gebirgstemperaturen lassen sich am ehesten aus experimentell bestimmten Werten der Sorption bzw. der Verteilungskoeffizienten (K_d) von Elementen bzw. Radionukliden gegenüber einzelnen Schichtsilikaten ableiten. Diese können dann gemäß ihrer Häufigkeit im Tongestein zu einem Gesamtbild für das Retentionsverhalten einer tiefen Formation formuliert werden. Die entsprechende Datenlage in der derzeit zugänglichen Literatur ist allerdings unvollständig, auf wenige Radionuklide bzw. Schwermetalle begrenzt und nicht für alle Schichtsilikate gleichermaßen aussagekräftig. Mengel (2006) hat die verfügbaren experimentellen Daten zur Sorptionsfähigkeit verschiedener Tonminerale als Funktion der Temperatur zusammen-



getragen. Abb. 6.17 zeigt den Verteilungskoeffizienten (K_d) als Funktion der Temperatur für verschiedenen Radionuklide und Tonminerale.

Abb. 6.17:
Experimentell bestimmte Temperatur-abhängigkeit von Verteilungskoeffizienten (K_d) des Cs, Eu, Ni und der REE gegenüber Montmorillonit und Kaolinit (Tertre et al. 2005, Tertre et al. 2006) sowie für Cs gegenüber dem Sediment der Hanford-Site, USA (Liu et al. 2003).

Unter der Bezeichnung 'REE' sind Lanthanoidenelemente zusammengefasst, die in ihrem chemischen Stoffbestand und Eigenschaften sehr ähnlich den dreiwertigen Transuranen

sind. Die Grafik macht deutlich, dass für Europium, Nickel und die Gruppe der dreiwertigen Transurane mit einer erhöhten Sorption gerechnet werden kann, wenn sich die Temperatur des Tonsteins erhöht. Allein für Cäsium ist eine Verringerung der Sorptionsfähigkeit zu erwarten. In Summe betrachtet, werden die Sorptionsfähigkeit und damit das Rückhaltevermögen mit steigender Temperatur vergrößert.

6.2.6 Kerogenumwandlung in Erdöl

Jobmann et al. (2013 und 2007b) führten Berechnungen zur Umwandlung von organischem Material zu Erdöl bzw. Erdgas durch. Ein Index für diese Umwandlung ist die Vitrinitreflexion. Mit Hilfe numerischer Berechnungen wurden Temperaturfelder und daraus Vitrinitreflexionswerte in der Umgebung basaltischer Intrusionen im Niedersächsischen Becken simuliert. Die Nachberechnung der Intrusionen und der damit verbundenen Reifeentwicklung des organischen Materials erlaubte eine Modellkalibrierung und damit anschließend eine Berechnung der Reifeentwicklung organischen Materials bedingt durch den Wärmeeintrag der radioaktiven Abfälle. Für die Modellkalibrierung wurden Vitrinit-Isoliniendiagramme und Vitrinitreflexionswerte von vier Bohrungen im Niedersächsischen Becken genutzt. Die Lage und Größe der basaltischen Intrusionen wurden anhand der Vitrinit-Isoliniendiagramme und anhand von Gravimetrie- und Magnetikmessungen abgeschätzt. Die Berechnungszeit war 100 Millionen Jahre (Zeitalter Apt bis heute). Die Vitrinitreflexionswerte der Bohrungen konnten im Modell mit Einzelabweichungen von 18 % nachgebildet werden. Chemische Umwandlungsprozesse und explizit die Erdölbildung werden in der Nähe basaltischer Intrusionen (Einflussbereich im 10er Kilometer Bereich) stark begünstigt. Temperaturen größer 90°C wurden noch in 40 km Entfernung im betrachteten Beispiel (in -2.000 m Tiefe) erreicht. Der thermische Einfluss der basaltischen Intrusionen ist über 100 Millionen Jahre vorhanden.

Basierend auf dem so kalibrierten Modell wurden Berechnungen zur Wärmeentwicklung eines generischen Endlagers durchgeführt. Der thermische Impuls von HAW-Abfällen eines Endlagers ist mit einer Dauer von etwa 10.000 Jahren und maximalen Temperaturen von 100-150°C im Vergleich zum Wärmeimpuls einer Basaltintrusion mit mehreren 10er Kilometer Ausdehnung und ca. 1.200°C Anfangstemperatur äußerst gering. Dies zeigte sich in den Berechnungsergebnissen zu den Vitrinitreflexionen. Die Änderungen der Vitrinitreflexionen aufgrund des Wärmeimpulses eines HAW-Endlagers sind äußerst gering und absolut vernachlässigbar. Daraus wird geschlossen, dass eine bedeutsame chemische Umwandlung von organischem Material zu Erdöl bzw. Erdgas aufgrund des Wärmeeintrags der wärmeentwickelnden HAW-Abfälle eines Endlagers ausgeschlossen werden kann. Die Temperaturänderung aufgrund des Wärmeeintrags ist zu gering und die Zeitdauer des Wärmeeintrags bei weitem zu kurz.

6.2.7 Mikrobielle Aktivitäten

Ergebnisse umfangreicher experimenteller Untersuchungen zu mikrobiellen Aktivitäten im Tonstein lassen fünf mikrobielle Prozesse identifizieren, die das Langzeitverhalten eines Endlagers für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle im Tonstein beeinflussen können (Meleshyn 2014).

Im ersten Prozess führt die mikrobielle Reduktion von Fe(III) in der Tonmineralstruktur des Tonsteins zum Anstieg der Schichtladung der Tonminerale, was zu einer Reduzierung der spezifischen Oberfläche und damit des Sorptionsvermögens führt. Weiterhin kann ab einem bestimmten Fe(III)-Reduktionsumfang die Kationenaustauschkapazität des Tonsteins deutlich zurückgehen, was zu einer Verringerung der Rückhalteeigenschaften führt. Im zweiten Prozess wird die mikrobielle Reduktion von Fe(III) in der Tonmineralstruktur durch Auflösung von Tonmineralen begleitet, wobei Mikroben diese Auflösung auch ohne den Zwischenschritt Fe(III)-Reduktion durch Erzeugung von niedrigmolekularen Verbindungen mit hoher Fe(III)-

Affinität erzwingen können. Zusätzlich wird auch die Anionenaustauschkapazität reduziert. Die Fe(III)-reduzierenden Mikroben sind in Tonsteinformationen einheimisch und können bis etwa 122°C aktiv bleiben.

Die Fe(III)-reduzierenden Mikroben können aber auch Endosporen bilden, die in der Lage sind, ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber widrigen Umgebungsbedingungen zu erhöhen. Die tödliche Temperatur für Endosporen liegt etwa 30-40°C höher als für aktive Mikroben (Nicholson et al. 2000). Das Temperaturlimit für Sulfat und Fe(III) reduzierende Mikroben liegt bei 95°C bzw. 122°C. Für diese Mikroben wäre eine kurzzeitige Erhitzung bis 150°C notwendig, um deren Endosporen abzutöten. Je länger eine thermische Behandlung dauert, desto mehr ist davon auszugehen, dass das Temperaturlimit sinkt. Colwell et al. (1997) haben festgestellt, dass in Sedimentgesteinen, die Paläotemperaturen von 140°C-145°C ausgesetzt waren, so gut wie keine mikrobielle Biomasse vorhanden ist.

Diese Mikroben sind nicht auf organische Kohlenstoffverbindungen als Energiequelle angewiesen und können für diesen Zweck das Wasserstoffgas verwerten, das in einem Endlager durch Metallkorrosion, Radiolyse oder mikrobielle Umsetzung von Mineralen erzeugt wird.

Mikrobiell beeinflusste Korrosion und Gasproduktion stellen zwei weitere mikrobielle Prozesse dar, deren Relevanz für ein Endlager für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle im Tonstein seit einiger Zeit bekannt ist. Die Aktivität von Sulfat-reduzierenden Bakterien kann die Korrosion von eisenhaltigen Materialien um mindestens zwei Größenordnungen – bis hin zu einer Rate von 700 µm pro Jahr – erhöhen (Sherar et al. 2011). Des Weiteren kann sie eine gleichmäßige Korrosion in einen Lochfraß überführen. Ein wichtiges Produkt dieser Aktivität ist das Hydrogensulfid, in dessen Gegenwart in millimolaren Konzentrationen eine vollständige Umwandlung von quellfähigen Tonmineralen in nicht-quellfähige Minerale einige Jahrhunderttausende bis Jahrtausende betragen kann (Raiswell & Canfield 1996). Solche Hydrogensulfid-Konzentrationen wurden bei ausreichendem Angebot an Elektronendonatoren im Opalinuston und im Boom-Clay beobachtet. Aufgrund der Tonmineralauflösung infolge der Reaktion von Fe(III) mit Hydrogensulfid kann sich die Aktivität von Sulfat reduzierenden Bakterien negativ in der oben beschriebenen Weise auf die dort erwähnten Tonsteineigenschaften auswirken.

Im Opalinuston wurde – ebenfalls bei einem ausreichenden Angebot an Elektronendonatoren – eine relativ hohe Methanproduktion festgestellt, die vergleichbar mit der eines Kohlenwasserstoff-kontaminierten und Methanogenese-geprägten Sediments ist. Zusammen mit den anderen mikrobiellen und abiotischen Gasproduktionsprozessen kann Methanproduktion zu einem Überdruckaufbau und schließlich zur Rissbildung und damit zu Gas- und Lösungsaustritt aus einem Endlager führen. 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 optimales Wachstum im Temperaturbereich von 80–95°C. Beide Mikrobenarten sind nicht auf CO₂ (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.

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 Bentonites verworfen, da der Porenraum so deutlich reduziert werden kann.

Weil die Anforderungen der Rückholbarkeit und Bergung von Wärme entwickelnden radioaktiven Abfällen mit spezifischen Endlagerkonzeptmerkmalen einhergehen, wie z. B. Verwendung der Sandverfüllung innerhalb des Innenliners (Konzept NORD) mit der im Vergleich zum Buffer oder Tonstein deutlich erhöhten Porosität, kann eine Erhitzung der Nahfeldbarrieren und des Tonsteins über 122°C hinaus zu einer bedeutenden Verringerung der Mikrobenpopulation bzw. der mikrobiellen Aktivität im Nahfeld eines Endlagers führen. Im Hinblick auf den oben diskutierten signifikanten negativen Einfluss der mikrobiellen Aktivität auf das Langzeitverhalten eines Endlagers für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle im Tonstein ist eine entsprechende Erhitzung als positiv zu bewerten.

6.3 Bewertung der Effekte

Im Folgenden wird eine Bewertung der einzelnen Effekte zunächst getrennt nach thermo-hydro-mechanischen (THM) Effekten und chemisch-biologisch-mineralogischen (CBM) Effekten vorgenommen.

6.3.1 Bewertung THM-Effekte

Gemäß den oben beschriebenen Untersuchungsergebnissen lässt sich folgendes festhalten: Eine Erhitzung des Tonsteins auf Temperaturen, die noch unterhalb des Expansions-Kontraktions-Übergangs (50 bis 80°C je nach OCR) liegen, wirkt sich prinzipiell negativ auf die mechanischen Eigenschaften aus. Eine Erhitzung auf Temperaturen oberhalb des Expansions-Kontraktions-Übergangs bis etwa 150°C (darüber hinaus sind keine Daten bekannt), wirkt sich prinzipiell positiv auf die Wärmeleitfähigkeit, die Festigkeit und die Steifigkeit des Tonsteins aus. Durch die Einbringung der Wärme entwickelnden Abfälle wird der Nahbereich um die Bohrlöcher bzw. Strecken auf jeden Fall auf Temperaturen unterhalb des Expansions-Kontraktions-Übergangs aufgeheizt. Das heißt, die damit einhergehenden Veränderungen der mechanischen Eigenschaften des Tonsteins sind nicht zu vermeiden und müssen im Nachweis berücksichtigt werden. Durch eine weitere Erhöhung der Temperaturen am Rand der Einlagerungsbohrlöcher bzw. -strecken wird dieser so temperierte Gesteinsbereich sich etwas weiter in das Gebirge ausdehnen. Durch die Temperaturen oberhalb des Expansions-Kontraktions-Übergangs wird der negative Effekt der thermischen Expansion durch die Konsolidierung kompensiert. Die Konsolidierung kann als irreversibel angesehen werden und führt prinzipiell zu einer Verringerung der Permeabilität des Tongesteins.

Die Erhitzung beeinträchtigt nicht das Selbstabdichtungsvermögen und die (messbare) Wasserpermeabilität. Durch die Erhitzung erhöht sich der Druck, der notwendig ist, damit Gase aus dem Grubengebäude in den Tonstein eindringen können. Eine Verdampfung von Wasser findet, zeitlich begrenzt, in der Phase der Wiederaufsättigung statt. Anschließend erhöht sich der Siedepunkt des Wassers auf ca. 280°C eine Temperatur, die weit über die zu erwartenden Temperaturen hinausgeht. Eine Temperaturerhöhung kann dazu führen, dass Wassermoleküle aus den Zwischenschichten der quellfähigen Tonminerale in den Porenraum wandern und so zu einer Verringerung des Quelldruckes, zu einer Konsolidierung und zu einer temporären Erhöhung des Porendruckes führen. Diese Erhöhung ist allerdings gering gegenüber der Porendruckerhöhung durch die Wärme selbst bzw. durch die thermische Expansion des Porenfluides. Die Porendruckerhöhung führt temporär zu Druckgradienten und damit zu einer temporären Migrationsbewegung, durch die der Druck wieder abgebaut wird.

Aus der Analyse thermo-hydro-mechanischer Effekte lässt sich, aus heutiger Sicht, keine Beeinträchtigung der Barrierewirkung im untersuchten Temperaturbereich bis 150°C ableiten. Andersherum kann festgestellt werden, dass eine Erhöhung der Temperatur über den Expansions-Kontraktions-Übergang hinaus sich positiv auf relevante Gesteinseigenschaften auswirkt.

6.3.2 Bewertung CBM-Effekte

Der Zeitbereich der durch ein Endlager im Wirtsgestein induzierten Temperatur oberhalb von 80°C beträgt nur etwa 1000 Jahre (Abb. 6.2) und ist beschränkt auf einen Bereich bis etwa 5 m in das Wirtsgestein hinein. In diesem Zeitraum sind keine nennenswerten Illitierungen, thermochemischen Sulfatreduktionen und Kerogenumwandlungen in Erdöl zu erwarten. Die Auswirkungen der Zementierung durch Silica- und Illitneubildung auf die Barrierewirkung des Wirtsgesteins bei Temperaturen von bis zu 150°C kann als vernachlässigbar gering beurteilt werden. Die als positiv zu bewertende Smektitisierung von Illiten ist in dieser Zeit zwar möglich, aber nur in unbedeutendem Ausmaß. In einer weiteren positiven Auswirkung wird eine Temperaturerhöhung über 95°C bzw. über 122°C die Population und Aktivität von jeweils Sulfat reduzierenden bzw. Fe(II)-reduzierenden und Methan produzierenden Mikrobenarten signifikant verringern. Die Erhitzung sorgt für eine gewisse Sterilisierung. Sterilisierung durch Erhitzen ist eine gängige Methode zur Verringerung der mikrobiellen Population und wird i.d.R. bei 122 °C durchgeführt. Dabei werden nicht alle Mikroben ausgelöscht, ihre Anzahl nimmt mit der Zeit der thermischen Behandlung jedoch stark ab.

Fazit: Je länger die Erhitzung über 122°C dauert und je höher die Temperatur ist, desto geringer wird die verbleibende Population der Mikroben sein. Es ist jedoch nicht auszuschließen, dass eine geringe Restpopulation überlebt (z.B. durch das Aussporen, auf das Sulfat-reduzierenden Bakterien fähig sind). Sie siedeln in diesem Bereich dann als erste wieder ein. Wenn keine entsprechenden Migrationspfade mit Porendurchmessern von mindestens ein paar Hundert Nanometern aus angrenzenden Bereichen vorhanden sind, werden keine weiteren Mikroben in diesen Bereich einwandern können.

Es sollte zudem berücksichtigt werden, dass der Gehalt an Smektiten im Wirtsgestein des Endlagerstandortmodells NORD (Hauterivium und Barremium) nur 2 bis 4% beträgt, wobei ein zusätzlicher Beitrag durch einen nicht spezifizierten Smektitanteil in der Illit-Smektit-Wechselagerung mit einem Gehalt von 4 bis 8% kommen kann (Jahn und Sönke 2013). Smektite im Opalinuston, der als Wirtsgestein im Endlagerstandortmodell SÜD fungiert, sind nur durch einen 30%-igen Anteil in der Illit-Smektit-Wechselagerung mit einem Gehalt von 4 bis 12% vertreten und tragen somit etwa 1 bis 4% zur Gesamtmasse des Tons bei (Cuss et al. 2012). Smektite stellen daher einen als gering einzuschätzenden Anteil im Wirtsgestein dar, so dass Illitierung, thermochemische Sulfatreduktion und Kerogenumwandlung in Erdöl sowie eine eventuelle Veränderung ihrer Sorptionseigenschaften durch die Temperaturen von bis zu 150°C auch aus diesem Grund als unbedeutend betrachtet werden können, insbesondere, da die Zeitdauer einer erhöhten Temperatur im Wirtsgestein zu gering ist, um überhaupt signifikante Veränderungen zu bewirken.

6.3.3 Abschließende Bewertung

In der nachfolgenden Tabelle werden die oben beschriebenen Effekte, die durch eine Temperaturerhöhung des Wirtsgesteins entstehen können, aufgelistet und hinsichtlich einer Beeinträchtigung der Barrierewirkung bewertet (Tab 6.1). Im Rahmen der Bewertung können zwei Prozesse als bedeutsam identifiziert werden, wobei anzumerken ist, dass die meisten Untersuchungen nur bis zu einer Temperatur von etwa 150°C durchgeführt wurden, so dass über diesen Punkt hinaus kaum Aussagen gemacht werden können. Bei den Prozessen handelt es sich um die thermische *Expansion und Kontraktion* aus dem Bereich der THM-Effekte sowie die *Begrenzung der Mikrobiellen Aktivität* aus dem Bereich der CBM-Effekte.

Tab 6.1: Temperaturinduzierte Effekte im Tonstein und die Bewertung im Hinblick auf eine Beeinträchtigung der Barrierewirkung (Untersucht im Temperaturbereich von ca. 20°C bis 150°C)

Nr	Temperatureffekte	Bewertung
Thermo-hydro-mechanische Effekte (THM)		
1	Expansion/Kontraktion des Tonsteins	T < EKÜ ¹ : negativ (aber unbedenklich, solange Fluidruck-Kriterium eingehalten wird) T > EKÜ: positiv (solange Fluidruck-Kriterium eingehalten wird)
2	Mechanischen Gesteinseigenschaften	T < EKÜ: negativ T > EKÜ: positiv
3	Hydraulische Gesteinseigenschaften	T < EKÜ: negativ T > EKÜ: positiv
4	Thermische Eigenschaften	T < EKÜ: negativ T > EKÜ: positiv
5	Dehydrierung quellfähiger Tonminerale	vernachlässigbar
6	Erzeugung hydraulischer Gradienten	vernachlässigbar
7	Verdampfen von Wasser	vernachlässigbar
8	Veränderung des Gasdruckes, der notwendig ist, damit Gas in das Wirtsgestein eindringen kann	vernachlässigbar
Chemisch-biologisch-mineralogische Effekte (CBM)		
9	Illitisierung von Smektiten	vernachlässigbar
10	Smektitisierung von Illiten	positiv (aber vernachlässigbar)
11	Zementierung durch Silica- und Illit-Neubildung	vernachlässigbar
12	Thermochemische Sulfatreduktion	vernachlässigbar
13	Sorptionseigenschaften	vernachlässigbar
14	Kerogenumwandlung in Erdöl	tritt nicht auf
15	Mikrobielle Aktivitäten	T < 122°C: negativ T > 122°C: positiv

¹ EKÜ = Expansions-Kontraktions-Übergang

Bei der *Expansion und Kontraktion* ist es zwar als positiv zu bewerten, wenn die Temperatur des Tonsteins über den Expansions-Kontraktions-Übergang ansteigt ($T > EKÜ$), aber das ist nur solange als positiv zu sehen, wie der Porendruck durch thermische Expansion des Porenfluides, evtl. in Kombination mit der thermisch bedingten Kontraktion, nicht zu einer Rissbildung führt. In diesem Zusammenhang wäre das „Fluidruck-Kriterium“ verletzt.

Außerdem sind bei insgesamt höheren Temperaturen ggf. größere Bereiche mit erhöhter Temperatur unterhalb des EKÜ zu erwarten in denen Gesteinseigenschaften ggf. negativ beeinflusst werden. Diese Zonen sind aber unvermeidlich und müssen bei der Endlagerauslegung berücksichtigt werden.

Im Zuge der *Begrenzung der Mikrobiellen Aktivität* würde eine Temperaturerhöhung über 122°C die Population und Aktivität von jeweils Sulfat reduzierenden bzw. Fe(II)-reduzierenden und Methan produzierenden Mikrobenarten signifikant verringern. Neben der mikrobiellen Gasproduktion kann auch die Korrosion eisenhaltiger Materialien um mehr als

zwei Größenordnungen durch mikrobielle Aktivität erhöht werden. Dies würde die Behälterstandzeiten signifikant reduzieren was bezüglich der in den Sicherheitsanforderungen geforderten Bergbarkeit über 500 Jahre ein Problem darstellen kann. Eine temporäre „Sterilisierung“ im Nahbereich der Einlagerungsbohrlöcher durch erhöhte Temperatur wäre daher vorteilhaft.

Mit Blick auf diese Bewertung wird das „Temperatur-Kriterium“ wie folgt definiert

Das Temperatur-Kriterium:

ist eingehalten,
wenn eine Temperatur von 150 °C im Gestein nicht überschritten wird.

Dieses Kriterium ist für den gesamten ewG nachzuweisen.

Dieses Temperaturlimit erlaubt es, ein Einlagerungskonzept zu entwickeln, das die Möglichkeit zur Sterilisierung im Nahbereich der Behälter bietet. Bei den genannten 150°C handelt es sich um eine Festlegung, die darauf beruht, dass für einen höheren Temperaturbereich zu wenige Kenntnisse über Materialverhalten vorliegen. Neben dem Temperatur-Kriterium, das die direkten Auswirkungen von erhöhten Temperaturen auf die Barriereigenschaften betrachtet, werden durch örtliche und zeitliche Temperaturänderungen Prozesse ausgelöst, die die Integrität der geologischen Barriere beeinflussen können. Diese Effekte werden bei der Auswertung von thermisch, hydraulisch, mechanisch gekoppelten Modellberechnungen durch andere Kriterien abgedeckt.

7 Zusammenfassung

Zur Erfüllung der in den Sicherheitsanforderungen beschriebenen Kriterien besteht die Notwendigkeit, diese soweit zu quantifizieren, dass sie im Rahmen von rechnerisch zu führenden Nachweisen abgehandelt werden können. Aus diesem Grund wurden in diesem Bericht die Integritätskriterien quantitativ formuliert, soweit dies nach dem heutigen Kenntnisstand möglich ist.

Für das Fluiddruck-Kriterium ist das Auftreten von effektiven Zugspannungen innerhalb des ewG auszuschließen bzw. auf den Nahbereich zu begrenzen; für das Advektions-Kriterium ist nachzuweisen, dass durch Bewegung des Wassers allein kein Schadstoff bis zum Rand des ewG transportiert wird; bei dem Dilatanz-Kriterium wurde die Schädigungsgrenze als Grenzbedingung festgelegt. Im Zuge der Quantifizierung des Temperatur-Kriteriums war zunächst eine detaillierte Recherche notwendig, um alle Prozesse zu untersuchen, die im Zuge einer Temperaturerhöhung im Wirtsgestein ablaufen. Um zu identifizieren, was als eine „unzulässige“ Temperaturerhöhung im Sinne der Sicherheitsanforderungen anzusehen ist, wurden alle temperaturindizierten Prozesse auf Basis der zu erwartenden Temperaturerhöhung und ihrer Dauer und der zur Verfügung stehenden Untersuchungsergebnisse hinsichtlich einer Veränderung der Barriereigenschaften bewertet. Hierbei ist hervorzuheben, dass eine Temperaturerhöhung sich auch positiv auswirken kann, insbesondere durch Konsolidierung und damit Reduzierung der Permeabilität und zur Begrenzung der mikrobiellen Aktivität, die signifikant die Barriereigenschaften beeinträchtigen kann. Als Kriterium wurde eine maximale Temperatur im Gestein von 150°C festgelegt.

Die Integrität der geologischen Barriere bzw. des einschlusswirksamen Gebirgsbereiches (ewG) ist dann gewährleistet, wenn:
das Advektions-Kriterium und das Temperatur-Kriterium im ewG eingehalten werden sowie das Fluiddruck-Kriterium und das Dilatanz-Kriterium innerhalb des ewG in einem Bereich eingehalten werden, der das Endlager mit einer Mindestausdehnung umschließt.

8 Literatur

- ANDRA (2005): Dossier 2005 Argile, Tome 2 Chapitre 25.
- AkEnd (2002): Auswahlverfahren für Endlagerstandorte. Empfehlungen des AkEnd – Arbeitskreis Auswahlverfahren Endlagerstandorte
- Akesson, M. (2012). Temperature Buffer Test. Technical Report, SKB and Clay Technology.
- Baldi, G., Hueckel, T., Peano, A., & Pellegrini, R. (1991). Developments in modelling of thermo-hydro-geomechanical behaviour of Boom clay and clay-based buffer materials. Tech. rep., EC.
- Blümling, P. (2005). Vortrag i.R.d. 2. NF-PRO- Workshop, Cardiff
- BMU (2010). Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle. Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit.
- Chen, G.J., Maes, T., Vandervoort, F., Sillen, X., Van Marck, P., Honty, M., Dierick, M. & Vanderniepen, P. (2014). Thermal impact on damaged Boom Clay and Opalinus Clay: Permeameter and isostatic tests with μ CT Scanning. Rock Mech. Rock Eng. 47, 87-99, Springer-Verlag, Wien.
- Colwell, F. S., Delwiche, M. E., Chandler, D., Fredrickson, J. K., Yao, Q. J., McKinley, J. P., et al. (1997). Microorganisms from deep, high temperature sandstones: constraints on microbial colonization. FEMS Microbiology Reviews, 20, 425-435.
- Conil, N., Armand, G., Fillipi, M., Garitte, B., Jellouli, M., Jobmann, M., Morel, J. & De La Vaissière, R. (2012). In situ heating test in the Callovo Oxfordian clay : Measurement and interpretation. Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement, 5th International meeting, Montpellier, France.
- Cristescu, N. & Hunsche, U. (1998): Time effects in Rock Mechanics. Wiley & Sons, Chichester.
- 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.
- Cuss, R. J., Harrington, J. F., Graham, C. C., Sathar, S., & Milodowski, A. E. (2012). Observations of heterogeneous pore pressure distributions in clay-rich materials. Mineralogical Magazine, 76, 3115–3129.
- Czaikowski, O. (2011). Laborative und rechnerische Untersuchungen zu geomechanisch-geohydraulischen Wechselwirkungen im Tongestein im Hinblick auf die Endlagerung radioaktiver Abfälle. Dissertation, TU Clausthal.
- Domenico, P. A., & Schwartz, F. W. (1997). Physical and Chemical Hydrogeology. John Wiley & Sons: New York.
- Faulkner, D., & Rutter, E. (2003). The effect of temperature, the nature of the pore fluid, and subyield differential stress on the permeability of phyllosilicate-rich fault gouge. Journal of Geophysical Research, 108(B5).
- François, B., Laloui, L., & Laurent, C. (2009). Thermo-hydro-mechanical simulation of ATLAS in-situ large scale test in Boom Clay. Computers and Geotechnics, 36, 626–640.
- Gräsle, W. (2012). Schriftliche Mitteilung über mechanische Eigenschaften von Opalinuston (BGR Hannover), unpublished.
- Gräsle, W. & Plischke, I. (2010): Laboratory Testing (LT) Experiment: Mechanical Behavior of Opalinus Clay, Final report from Phases 6 – 14. – Technical Report TR 2009-07, 63 p + 19 p App., Federal Institute for Geosciences and Natural Resources (BGR), Hannover.
- 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.
- 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., & Wu, T.-C. (1994). Dehydration and hydration of montmorillonite at elevated temperatures and pressures monitored using synchrotron radiation. American Mineralogist, 79, 683-691.
- Hueckel, T., François, B., & Laloui, L. (2009). Explaining thermal failure in saturated clays. Géotechnique, 59, 197–212.
- Hueckel, T., & Pellegrini, R. (2002). Reactive plasticity for clays: application to a natural analog of longterm geomechanical effects of nuclear waste disposal. Engineering Geology, 64, 195-215.
- Hunsche, U., Naumann, M. & Schulze, O. (2005). Application of the dilatancy concept on the behaviour of Opalinus Clay. 2nd International meeting „Clays in Natural & Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement“. Tours 14 - 18. März 2005, Poster P/THMN/24.

- Hunsche, U., Schulze, O., Walter, F. & Plischke, I. (2003). Projekt Gorleben – Thermomechanisches Verhalten von Salzgestein, BGR Abschlussbericht, AP 9G2138110000, Hannover.
- IfG (2007): Untersuchungen zur Barriereintegrität im Hinblick auf das Ein-Endlager-Konzept. Ergebnisbericht zum Forschungsvorhaben SR 2470, Institut für Gebirgsmechanik GmbH Leipzig.
- 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.
- Jahn, S., & Sönke, J. (2013). Endlagerstandortmodell Nord – Teil II: Zusammenstellung von Gesteinseigenschaften für den Langzeitsicherheitsnachweis, Technischer Bericht, FuE-Projekt ANSICHT: Methodik und Anwendungsbezug eines Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein HAW-Endlager im Tonstein, BGR, Hannover.
- Jobmann, M. (2005). Laboratory investigation on drill core samples from Mont Terri URL (Borehole BHE-D6). Tech. rep., DBE TECHNOLOGY.
- Jobmann, M. & Polster, M. (2007). The response of Opalinus clay due to heating: A combined analysis of in-situ measurements, laboratory investigations and numerical calculations. *Physics and Chemistry of the Earth* 32, 929-936.
- Jobmann, M., Amelung, P., & Uhlig, L. (2007). Berechnungen von Paläotemperaturen und Vitritreflexionen im Niedersächsischen Becken und die Anwendung dieser Methodik auf generische Endlager. Tech. rep., DBE TECHNOLOGY.
- Jobmann, M., Polster, M., & Schonebeck, M. (2007). Investigation on thermal expansion effects in clay formations. Final Report. DBE TECHNOLOGY.
- Jobmann, M., Breustedt, M., Li, S., Polster, M., & Schirmer, S. (2013). Investigations on THM effects in buffer, EDZ and argillaceous host rock. Final Report. FKZ 02E10086, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine.
- Jobmann, M. & Lommerzheim, A. (2015). Endlagerkonzept sowie Verfüll- und Verschlusskonzept für das Endlagerstandortmodell SÜD, Technischer Bericht, F&E-Projekt ANSICHT: Methodik und Anwendungsbezug eines Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein HAW-Endlager im Tonstein, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine.
- 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.
- Kull, H., Jockwer, N., Zhang, C. L., Wileveau, Y., & Pepa, S. (2007). Measurement of thermally induced pore-water pressure increase and gas migration in the Opalinus Clay at Mont Terri. *Physics and Chemistry of the Earth*, 32, 937-946.
- Leoni, L., Polizzano, C., & Sartori, F. (1986). Nuclear waste repositories in clays: the Orciatto metamorphic aureole analogy. *Applied Clay Science*, 1, 385-408.
- Liu, C., Zachara, J., Qafoku, O., & Smith, S. (2003). Effect of temperature on Cs sorption and desorption in subsurface sediments at the Hanford Site, USA. *Environ. Sci. Technol.*, 37, 2640-2645.
- Lommerzheim, A. & Jobmann, M. (2015). Endlagerkonzept sowie Verfüll- und Verschlusskonzept für das Endlagerstandortmodell NORD, Technischer Bericht, F&E-Projekt ANSICHT: Methodik und Anwendungsbezug eines Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein HAW-Endlager im Tonstein, DBE TECHNOLOGY GmbH, Peine.
- Lux et al. (2005). Gebirgsmechanische Beurteilung von Tonsteinformationen im Hinblick auf die Endlagerung radioaktiver Abfälle. Abschlussbericht, im Auftrag des BfS. TU Clausthal.
- 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.
- Meleshyn, A. (2014). Microbial processes relevant for the long-term performance of radioactive waste repositories in clays. *Clays in Natural and Engineered Barriers for Radioactive Waste Confinement*, Geological Society, London, Special Publications, 400, <http://dx.doi.org/10.1144/SP400.6>.
- Mengel, K. (2006). Einfluss der Temperaturerhöhung auf die mineralogischen und anorganisch-chemischen Eigenschaften von Kreide-Tonformationen (Apt). Tech. rep., TU Clausthal.
- Monfared, M., Sulem, J., Delage, P. & Mohajerani, M. (2014). Temperature and damage impact on the permeability of Opalinus Clay. *Rock Mech. Rock Eng.* 47, 101-110, Springer-Verlag, Wien.
- NAGRA (2002). Projekt Opalinuston, Synthese der geowissenschaftlichen Untersuchungsergebnisse, Technischer Bericht 02-03, Wettingen, Schweiz.

- Naumann, M., Hunsche, U. & Schulze, O. (2007). Experimental investigations on anisotropy in dilatancy, failure, and creep of Opalinus Clay. Proceedings International Symposium: "Using Natural and Engineered Clay-based Barriers for the Containment of Radioactive Waste", Tours, 14-18 March 2005. *Physics and Chemistry of the Earth* 32 (2007), p. 889-895.
- Nicholson, W. L., Munakata, N., Horneck, G., Melosh, H., Melosh, J. & Setlow, P. (2000). Resistance of *Bacillus* endospores to extreme terrestrial and extraterrestrial environments. *Microbiology and Molecular Biology Reviews*, 64, 548-572.
- Popp, T., Salzer, K. & Minkley, W. (2009). Hydro-mechanical rock properties of Opalinus clay. In: Impact of Thermo-Hydro-Mechanical- Chemical (THMC) processes on the safety of underground radioactive waste repositories, Proc. EC TIMODAZ-THERESA Int. Conf. Luxembourg, 29 Sep. – 1 Oct., p. 447-452.
- Popp, T. & Salzer, K. (2007). Anisotropy of seismic and mechanical properties of Opalinus clay during triaxial deformation in a multi-anvil apparatus. Proceedings International Symposium: "Using Natural and Engineered Clay-based Barriers for the Containment of Radioactive Waste ", Tours, 14-18 March 2005. *Physics and Chemistry of the Earth* 32 (2007), p. 879 - 888.
- 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.
- Sherar, B. W. A., Power, I. M., Keech, P. G., Mitlin, S., Southam, G. & Shoesmith, D. W. (2011). Characterizing the effect of carbon steel exposure in sulfide containing solutions to microbially induced corrosion. *Corrosion Science* 53, 955–960.
- Sulem, J., Lazar, P., & Vardoulakis, I. (2007). Thermo-poro-mechanical properties of clayey gouge and application to rapid fault shearing. *International Journal for Numerical and Analytical Methods in Geomechanics*, 31, 523–540.
- Sultan, N., Delage, P., & Cui, Y. (2002). Temperature effects on the volume change behaviour of Boom clay. *Engineering Geology*, 64, 135-145.
- Tang, A.-M., Cui, Y.-J., & Barnel, N. (2008). Thermo-mechanical behaviour of a compacted swelling clay. *Géotechnique*, 58, 45-54.
- Tertre, E., Berger, G., Castet, S., Loubet, M., & Giffaut, E. (2005). Experimental sorption of Ni, Cs and Ln onto a montmorillonite up to 150°C. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69(21), 4937-4948.
- Tertre, E., Berger, G., Simoni, E., Castet, S., Giffaut, E., Loubet, M., et al. (2006). Europium retention onto clay minerals from 25 to 150°C: Experimental measurements, spectroscopic features and sorption modelling. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, 4563-4578.
- Terzaghi, K., & Fröhlich, O. (1936). *Theorie der Setzung von Tonschichten. Eine Einführung in die analytische Tonmechanik*. Franz Deuticke, Wien.
- Truche, L., Berger, G., Destigneville, C., Pages, A., Guillaume, D., Giffaut, E., et al. (2009). Experimental reduction of aqueous sulphate by hydrogen under hydrothermal conditions: implication for the nuclear waste storage. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 73, 4824-4835.
- Wersin, P., Johnson, L., & McKinley, I. (2007). Performance of the bentonite barrier at temperatures beyond 100 °C: A critical review. *Physics and Chemistry of the Earth*, 32, 780-788.
- Zhang, C.-L., Czaikowski, O., Rothfuch, T. & Wieczorek, K. (2013). *Thermo-Hydro-Mechanical Processes in the Nearfield around a HLW Repository in Argillaceous Formations, Volume I, Laboratory Investigations*. GRS-312. ISBN 978-3-939355-91-5, Braunschweig.
- Zhang, C.-L. (2011). Experimental evidence for self-sealing of fractures in claystone. *Physics and Chemistry of the Earth*, 36, 1972-1980.
- Zhang, C.-L., Czaikowski, O., & Rothfuchs, T. (2010). Thermo-hydro-mechanical behaviour of the Callovo-Oxfordian clay rock, GRS-266. Final report, FKZ-02 E 10045 and F16W-FP6-036449, GRS.
- Zhang, C.-L., Rothfuchs, T., Jockwer, N., Wieczorek, K., Dittrich, J., Müller, J., et al. (2007). Thermal effects on the Opalinus Clay. A joint Heating Experiment of ANDRA and GRS at the Mont Terri URL (HE-D Project), GRS-224. Final report, FKZ-02 E 9773, GRS.