



Stilllegung des ERA Morsleben

Prüfung der Langzeitbeständigkeit von Asphalten und Bitumen zur Abdichtung der Schächte

(Rev. 1)

BS-Projekt-Nr. 0108-03/26

erstellt im Auftrag der

IHU Geologie und Analytik
Dr.-Kurt-Schumacher-Str. 23
39576 Stendal

durch die

Brenk Systemplanung GmbH
Heider-Hof-Weg 23
52080 Aachen

Aachen, 28.11.2014

Anmerkung:

Dieser Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers (BS) wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers (IHU) übereinstimmen.



AUTOREN

Dieser Bericht wurde von folgenden Bearbeitern erstellt:

- Dipl.-Phys. S. Kistingner
- Dipl.-Phys. G. Hoppe

Es wird versichert, dass dieser Bericht nach bestem Wissen und Gewissen, unparteiisch und ohne Ergebnisweisung angefertigt worden ist.

Unterschrift Projektleiter	Unterschrift Geschäftsleitung
----------------------------	-------------------------------

ZUSAMMENFASSUNG

Für den Verschluss der Schächte Bartensleben und Marie sowie eines Rollochs zwischen dem Südfeld und dem Zentralteil der Grube Bartensleben des ERAM ist der Einsatz von Bitumen bzw. Asphalt als Dichtmaterial vorgesehen. Ein wesentlicher Aspekt für die Eignung von Bitumen bzw. Asphalt als Dichtbaustoff ist seine Langzeitbeständigkeit gegenüber physikalischen, chemischen und mikrobiellen Einwirkungen. Hierzu wurden vom Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) in den Unterlagen [P 177] und [P 182] ein Nachweis vorgelegt. Gegenstand des vorliegenden Gutachtens ist die Überprüfung dieses Nachweises und die Bewertung der Langzeitbeständigkeit. Nicht Gegenstand der Prüfungen ist die Standsicherheit der Füllsäulen. Es wird vorausgesetzt, dass die Schotter-Bitumen-Gemische lagebeständig eingebaut werden und weder eine Verschiebung der Füllsäule noch ein Auslaufen des Bitumens erfolgt.

Unter den im ERAM vorherrschenden Bedingungen sind die wesentlichen potentiellen Angriffsmechanismen mikrobieller Abbau und aerobe Oxidation. Auf der Basis einer umfangreichen Literaturstudie kommen wir zu den folgenden Ergebnissen:

- Aufgrund der begrenzten Anzahl der Untersuchungen zum mikrobiellen Abbau von Bitumen, der zeitlichen Limitierung dieser Versuche auf maximal 1 Jahr und den möglichen Abweichungen des im ERAM eingesetzten Bitumens von den in der Literatur untersuchten Bitumen ist eine Übertragung der im Labor ermittelten mikrobiellen Abbauraten auf die Verhältnisse im ERAM in ferner Zukunft mit großen Ungewissheiten verbunden. Da die Verhältnisse im ERAM für die Aktivität der Mikroorganismen wesentlich ungünstiger als in den Laborversuchen sind, ist jedoch zu erwarten, dass der Bitumenabbau im ERAM deutlich geringer als in den Laborversuchen ist. Es liegen keine Anhaltspunkte dafür vor, dass die Abbauraten im ERAM über denen in den Laborversuchen liegen könnten.
- Der mikrobielle Abbau von Bitumen wird durch drei unabhängige Prozesse limitiert:
 - Stofffluss außerhalb des Abdichtkörpers aus Bitumen (Zufluss von Sauerstoff und Nährstoffen, Abfluss von Reaktionsprodukten),
 - Stofffluss innerhalb des Abdichtkörpers aus Bitumen und
 - dem eigentlichen Bitumenabbau.

Es ist plausibel, dass schon jeder einzelne Prozess so limitierend wirkt, dass er eine signifikante Beeinträchtigung der Dichtelemente innerhalb des Betrachtungszeitraums von 30.000 Jahren verhindert.

- Eine signifikante Beeinträchtigung der Dichtelemente aus Bitumen durch anaeroben mikrobiellen Abbau ist schon aufgrund der geringen Geschwindigkeit dieses Prozesses ausgeschlossen.
- Eine signifikante Beeinträchtigung der Dichtelemente aus Bitumen durch aerobe Oxidation oder aeroben mikrobiellen Abbau dürfte schon alleine aufgrund der Begrenzung des Sauerstoffflusses zu den Dichtelementen hin ausgeschlossen sein. Zur Vervollständigung dieses Nachweises empfehlen wir:

E1: Im Rahmen der geomechanisch-hydraulischen Nachweisführung sollte auch der konvektive und diffusive Sauerstoffzutritt zur Bitumenabdichtung abgeschätzt werden.



INHALTSVERZEICHNIS

Seite:

ZUSAMMENFASSUNG

1. EINLEITUNG	1
2. BERICHTSAUFBAU.....	2
3. ANGABEN DES BFS	3
3.1. Schachtverschlussystem ERAM.....	3
3.2. Angaben zur Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalten.....	4
4. CHARAKTEISIERUNG VON BITUMEN UND ASPHALTEN	6
4.1. Anwendung.....	6
4.2. Einteilung.....	6
4.3. Typische Merkmale	7
4.4. Chemische Zusammensetzung	8
4.5. Veränderungsprozesse.....	9
4.5.1. Innere Strukturänderungen	10
4.5.2. Einwirkung radioaktive Strahlung	10
4.5.3. Wasseraufnahme	11
4.5.4. Einwirkung chemisch reaktiver Stoffe	12
4.5.5. Aerobe Oxidationsprozesse	14
4.5.6. Biodegradation.....	16
5. NATÜRLICHE ANALOGA	27
5.1. Entstehung.....	27
5.2. Vorkommen.....	28
5.3. Veränderungsprozesse.....	29
5.3.1. Wechselwirkung von Bitumen mit salzhaltigen Wässern.....	29
5.3.2. Biodegradation von Bitumen.....	29
5.3.3. Langzeitbeständigkeit von Bitumen.	Fehler! Textmarke nicht definiert.
5.4. Fazit.....	31
6. BEWERTUNG DER LANGZEITBESTÄNDIGKEIT	33
7. LITERATUR.....	36
7.1. Antragsunterlagen	36
7.2. Zitierte Literatur.....	36
7.3. Sonstige verwendete Literatur	41

1. EINLEITUNG

Das Bundesamt für Strahlenschutz (BfS) hat beim zuständigen Ministerium für Landwirtschaft und Umwelt des Landes Sachsen-Anhalt (MLU) die Durchführung des Planfeststellungsverfahrens nach § 9 b Atomgesetz (AtG) zur Stilllegung des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben (ERAM) beantragt. Zur Planfeststellung der Stilllegung legt der Antragsteller Unterlagen vor, die den Gegenstand des Vorhabens beschreiben und die Voraussetzungen für die Planfeststellung nachweisen sollen. Vom MLU, in seiner Eigenschaft als Planfeststellungsbehörde, werden diese Unterlagen sogenannten „Prüfkomplexen“ zugeordnet, um gegenüber einer Einzelprüfung von Unterlagen der Komplexität des Vorhabens gerecht zu werden.

Die Prüfung der Unterlagen zum Prüfkomplex 6 „Schachtverschluss der Schächte Bartensleben und Marie“ erfolgt in drei Prüfphasen, wobei die Phasen A und B bereits abgeschlossen wurden. In der sich nunmehr anschließenden Prüfphase C ist zu klären, ob die vom Antragssteller BfS bisher vorgelegten rein konzeptionellen Planungen durch untersetzende Unterlagen im Detail umgesetzt und bestätigt sowie alle geforderten Belege für bisher getroffene Annahmen durch den Antragssteller beigebracht werden können.

Die IHU Geologie und Analytik GmbH (IHU) wurde mit Phase C der Prüfung der dem Prüfkomplex 6 zugeordneten Unterlagen beauftragt. Im Rahmen dieser Prüfphase ist die chemische Langzeitbeständigkeit des zur Schachtabdichtung vorgesehenen Bitumens bzw. des aus ihm hergestellten Asphalts zu prüfen. Mit dieser Prüfung wurde die Brenk Systemplanung GmbH (BS) als Unterauftragnehmer der IHU beauftragt.

Gegenstand des vorliegenden Berichts ist die Prüfung der mit den Unterlagen [P 177] und [P 182] vom BfS vorgelegten Nachweisführung zur Langzeitbeständigkeit von Asphalten und Bitumen als Schachtverschlussmaterial für die Schächte Bartensleben und Marie des ERAM. Nicht Gegenstand der Prüfungen ist die Standsicherheit der Füllsäulen. Es wird vorausgesetzt, dass die Schotter-Bitumen-Gemische lagebeständig eingebaut werden und weder eine Verschiebung der Füllsäule noch ein Auslaufen des Bitumens erfolgt.

2. BERICHTSAUFBAU

In Kapitel 3 werden nach einer kurzen Darstellung des für die Schächte Bartensleben und Marie vorgesehenen Schachtverschlussystems unter Verwendung von Bitumen die Angaben des BfS zur Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalt wiedergegeben.

In Kapitel 4 werden die wesentlichen Merkmale und Eigenschaften von Bitumen und Asphalten zusammengestellt und es wird untersucht, welchen Veränderungsprozessen sie unterliegen können. Auf der Basis einer umfangreichen Literaturstudie werden die Veränderungsprozesse qualitativ und soweit wie möglich auch quantitativ beschrieben. Es wird analysiert, welche Relevanz sie für die im ERAM vorgesehenen Bitumenabdichtungen haben können unter Berücksichtigung der dort später vorherrschenden Bedingungen.

In Kapitel 5 gehen wir kurz auf natürliche und historische Analoga ein. Aufgrund der im Einzelfall geringen vorliegenden spezifischen Informationen und der schwierigen Übertragbarkeit auf die Verhältnisse im ERAM können aus diesen nur wenige qualitative Aussagen abgeleitet werden.

In Kapitel 6 erfolgt eine Bewertung der Langzeitbeständigkeit des Bitumens bei seinem Einsatz zur Abdichtung der Schächte des ERAM.

In Kapitel 7 ist die verwendete Literatur aufgeführt. Aufgrund des zu manchen Fragestellungen nur geringen Kenntnisstands sahen wir es als erforderlich an, eine Vielzahl an Unterlagen zu sichten um sicherzustellen, dass wir den Stand von Wissenschaft und Technik ausreichend berücksichtigen. Um dies zu dokumentieren, haben wir in Kapitel 7.3 auch die Unterlagen zusammengestellt, die wir im Rahmen der Literaturstudie gesichtet und ausgewertet haben, auch wenn wir sie im Einzelnen nicht im Gutachten zitieren.

3. ANGABEN DES BFS

3.1. Schachtverschlussystem ERAM

Für die Schachtverschlussysteme der Schächte Bartensleben und Marie ist gemäß dem Plan Stilllegung des ERAM [A 281] der Einsatz von Bitumen bzw. Asphalt als Dichtmaterial für die Konstruktion der kombinierten Widerlager-Dichtelemente 2 und 3 sowie eines asphaltgedichten Kerns vorgesehen. Abbildung 3-1 zeigt den gestuften Aufbau des für die beiden genannten Schächte vorgesehenen Verschlussystems.

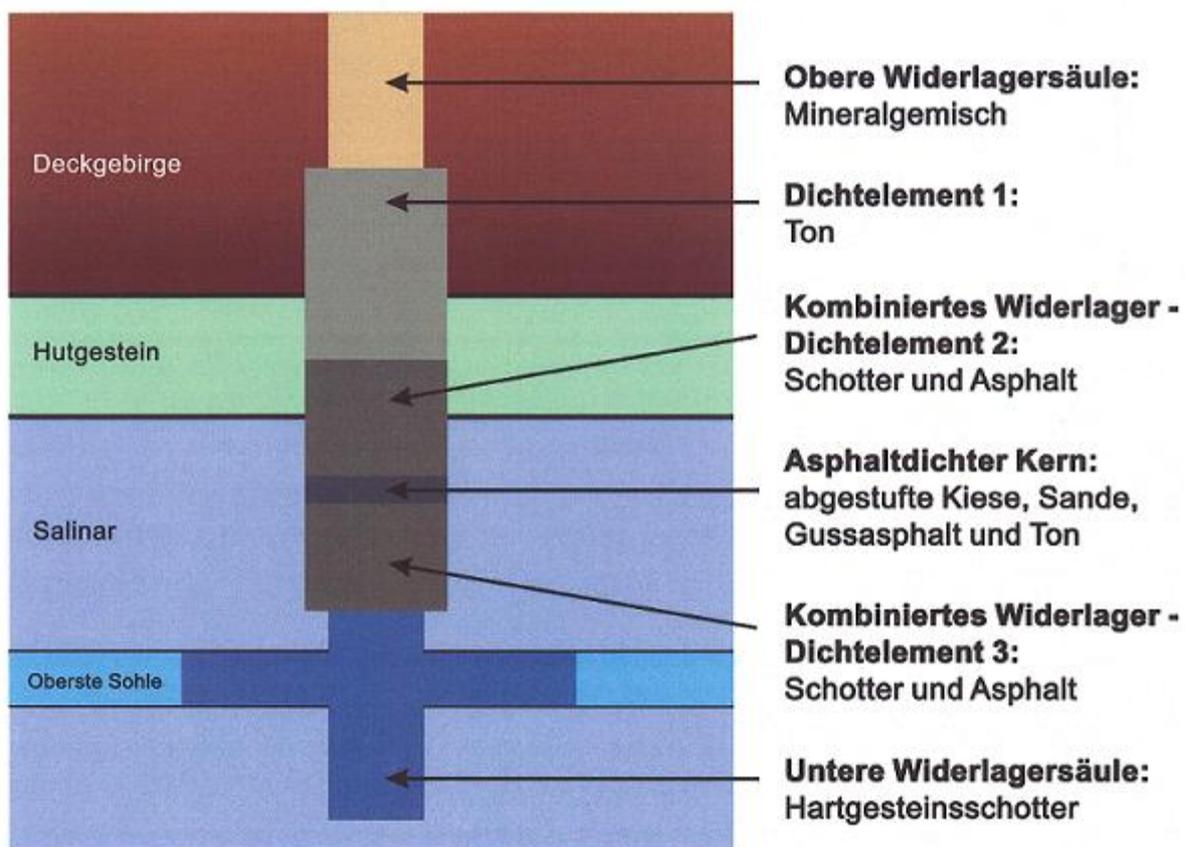


Abbildung 3-1: Prinzipskizze Schachtverschlussystem ERAM [A 281]

Entsprechend der Prinzipskizze liegen das Widerlager-Dichtelement 3 und der asphaltgedichtete Kern vollständig im Salinar, während sich das Widerlager-Dichtelement 2 über die oberen Bereiche des Salinars bis in das Hutgestein erstreckt.

Eine wichtige Voraussetzung für die Eignung von Bitumen bzw. Asphalt als Dichtmaterial zur Konstruktion der genannten Schachtverschlusselemente ist die Langzeitbeständigkeit dieser Baumaterialien unter den sich zukünftig einstellenden Endlagerbedingungen.

3.2. Angaben zur Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalten

Angaben zur Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalten sind in den Planunterlagen [P 177] und [P 182] enthalten. Im Folgenden werden diese Angaben zusammen mit den zugehörigen in [P 177] angegebenen Literaturverweisen wiedergegeben¹.

Anforderungen an die Langzeitbeständigkeit und ihren Nachweis

Ein Material gilt nach [P 177] als langzeitstabil, wenn seine Eigenschaften unter den – zeitlich veränderlichen – Umgebungsbedingungen

- konstant in einem gewissen Toleranzbereich bleiben,
- nur kurzzeitig und reversibel diesen Toleranzbereich in einem akzeptierbaren Umfang verlassen oder
- sich zeitlich so ändern, dass diese Veränderungen über Sicherheitsreserven innerhalb des Nachweiszeitraums kompensiert werden.

In [P 177] wird als hierbei zugrunde zu legender Betrachtungszeitraum 30.000 Jahre angegeben.

Bemerkung: In [P 177] werden für die Dichten der Asphalte (Bitumen mit Füller) in den Dichteelementen DE 2 bzw. DE 3 die Werte 1,300 g/cm³ bzw. 1,000 g/cm³ gefordert. Für die Viskositäten der Asphalte werden die Werte 41.291 Pa·s bzw. 52.982 Pa·s angegeben. Weiterhin wird vollständige Dichtheit gegenüber Wasser angesetzt. Es werden jedoch keine Toleranzbereiche für diese Asphalteigenschaften angegeben.

Der Nachweis der Langzeitbeständigkeit stützt sich nach [P 177] in erster Linie auf die Auswertung von Untersuchungen zu natürlichen und historischen Analoga. Weiterhin wird der Stand der Technik in Bezug auf chemische und thermodynamische Modellierungen „in die Betrachtungen integriert“.

Bemerkung: Aus den vorliegenden Unterlagen ist nicht erkennbar, dass im Zusammenhang mit der Langzeitbeständigkeit der Bitumen bzw. der Asphalte chemische und thermodynamische Modellierungen durchgeführt bzw. betrachtet wurden.

Angaben zur Langzeitbeständigkeit

Bitumen und Asphalten sind gemäß [P 177] beständig gegenüber

- Wasser,
- organischen und anorganischen Salzen sowie schwachen Säuren und Basen und
- ionisierender Strahlung².

¹ In [P 177] angegebene Literaturverweise werden in diesem Kapitel mit „Verweis auf“ angeführt.

² Für die einzelnen Aussagen werden keine spezifischen Belege angegeben. Am Anfang des Abschnitts, der u. a. diese Aussagen zur Beständigkeit enthält, wird pauschal auf die Literaturstellen [ELE 83, OEL 83, BAC 84, IAEA 86, WOL 89, KRA 90, KRA 91, DVWK 96, STE XX] verwiesen. Die Unterlage [STE XX] liegt uns nicht vor.

Sie sind insbesondere unlöslich in Wasser (Verweis auf [KRA 90, KRA 91, SCH 99]) und salinaren Lösungen (Verweis auf [BAC 84]).

Der Kontakt mit Licht und Sauerstoff führt zur oxidativen Bitumenalterung. Dieser Prozess ist durch eine sehr langsam ablaufende Versprödung und Verhärtung gekennzeichnet (Verweis auf [BAC 84, KRA 93]). Durch den Entzug von Licht kann dieser Vorgang wesentlich reduziert werden, so dass er auf die Materialoberfläche beschränkt bleibt.

Der Abbau von Bitumen und Asphalt kann durch Mikroorganismen (Bakterien, Pilze)³ sowohl unter aeroben als auch unter anaeroben Bedingungen erfolgen (Verweis auf [BAC 84, WOL 89]). Bitumen abbauende Mikroorganismen sind allgegenwärtig (Verweis auf [KRA 93]).

Unter aeroben Bedingungen passen sich die Mikroorganismen zunächst an die bestehenden Verhältnisse an (Adaptionsphase) und vermehren sich dann (Wachstumsphase). Schließlich erreichen sie einen Zustand konstanter Aktivität, in der die Aktivität i. W. von der Größe der Bitumenoberfläche abhängt (Verweis auf [WOL 89]). In Laborversuchen betrug die Abbaurate in diesem Zustand 20 bis 50 g m⁻² a⁻¹ (Verweis auf [WOL 89]) bzw. dringt der Abbau mit einer Geschwindigkeit von 5,5 µm/a vor (Verweis auf [KRA 93]).

Unter anaeroben Bedingungen kann ein Abbau durch anaerobe Atmung oder Gärung erfolgen. Die Abbauraten sind aber um einen Faktor 100 geringer als unter aeroben Bedingungen und liegen unter Verweis auf [WOL 89] zwischen 0,2 und 0,6 g m⁻² a⁻¹.⁴ Diese Raten wurden jedoch unter idealen Laborbedingungen, die im Normalfall in keinem Endlager herrschen, erzielt.

Unter Verweis auf [JAC 95] wird angegeben, dass sich das salinare Umfeld (im ERAM) hemmend auswirkt und keine Bakterien bekannt sind, die in Lösungen mit >10 Gew.-% NaCl überleben können.

Mit den obigen Abbauraten ergäbe sich in 30.000 Jahren ein Bitumenabbau von 0,6 t (bei 0,2 g m⁻² a⁻¹) bis 150 t (bei 50 g m⁻² a⁻¹). Mit der Abbaugeschwindigkeit von 5,5 µm/a würden in 30.000 Jahren 0,17 m Bitumen abgebaut. Diese Größen sind klein gegenüber der in der Schottersäule vorgesehenen Bitumen-/Asphaltmenge.

Qualitativ sprechen für eine Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalten

- die Bildung und heutige Existenz von Bitumen- und Asphaltlagerstätten und
- die Tatsache, dass historische Bitumenanwendungen über mehrere Jahrtausende erhalten geblieben sind.

Diese Beobachtungen können auf Destillationsbitumen (technisches Bitumen aus der Erdölaufbereitung) übertragen werden, da dieses die gleichen Eigenschaften wie natürliches Bitumen aufweist. Weiterhin sind die Milieufaktoren (Druck, Temperatur, Mikrobiologie) in einer Erdöllagerstätte ähnlich denen in einem Endlager.

³ In [P 177] und [P 182] werden zusätzlich auch Actinomyceten und Hefen genannt. Wir haben diese hier nicht separat aufgeführt, da erstere Bakterien und letztere (einzellige) Pilze sind.

⁴ In [P 178] und [P 182] wird in diesem Zusammenhang auch auf [KRA 93] verwiesen. Diese Literaturstelle gibt jedoch nur die Untersuchungen aus [WOL 89] wieder.

4. CHARAKTERISIERUNG VON BITUMEN UND ASPHALTEN

In den nachfolgenden Unterabschnitten erfolgt auf Basis des derzeitigen Kenntnisstands eine Zusammenstellung bekannter Sachverhalte zur Charakterisierung von Bitumen und Asphalten im Hinblick auf die Beurteilung ihre Langzeitbeständigkeit bei Verwendung als Schachtverschlussmaterial im ERAM.

4.1. Anwendung

Wegen seiner leichten Verarbeitbarkeit und seiner spezifischen Eigenschaften gehören Bitumen bzw. Asphalte zu den ältesten natürlichen Baustoffen, die für Abdichtungs- und Klebezwecken verwendet wurden. Die Verwendung von Bitumen in der Neuzeit setzte etwa Mitte des 19. Jahrhunderts ein. Seitdem werden Bitumen und Asphalte insbesondere beim Straßenbau, Tunnelbau, Wasserbau, Deich- und Dammbau, Deponiebau und auch im Bergbau eingesetzt. Ihr Anwendungsbereich ist breit gefächert und umfasst insbesondere (vgl. [PAR 11])

- Beläge (Straßenbeläge, Dichtungsbeläge, Sperrschichten im Gleisbau, Schotterersatz im Eisenbahnbau, Bodenbeläge und Industrieböden, Bodenverfestigung),
- Bitumenbahnen (Flachdächer, Brückenabdichtungen, Gleitschichten, Bodenabdichtungen, Deponienabdichtungen, Pumpspeicherbecken),
- Dächer (Unterdachbahnen, Dachziegel, Wellplatten),
- Fugen (Fugenvergussmassen, Fugenabdichtungen, Dichtungsbänder, Fahrbahnübergänge, Spachtel- und Füllmassen),
- Anstriche zum Bautenschutz sowie
- Binde- und Klebemittel.

Im Zusammenhang mit der Endlagerung von radioaktiven Abfällen ist der Einsatz von Bitumen bzw. Asphalt zur Immobilisierung von Radionuklide, zur Abdichtung von Wasserwegsamkeiten und zum Verschluss von Schächten, Strecken und Bohrlöchern vorgesehen.

4.2. Einteilung

Ein in der Literatur häufig verwendetes Klassifizierungsschema von Bitumen und Asphalten ist das von Abraham [ABR 60]. Nach diesem Schema ist Bitumen eine kohlenstoffbasierte Substanz, die mit einem organischen Lösungsmittel extrahiert werden kann. Unterschieden werden flüssige und feste Bitumen, wobei feste Bitumen schmelzbar sein können oder auch nicht. In diesem Sinne wäre beispielsweise Rohöl auch als Bitumen aufzufassen. Ein schmelzbares festes Bitumen wird nach der Klassifizierung von Abraham auch Asphalt genannt.

Im Rahmen dieses Berichts werden unter Bitumen natürlich vorkommende oder künstlich hergestellte Gemische aus hauptsächlich hochmolekularen Kohlenwasserstoffverbindungen verstanden (natürliches bzw. technisches Bitumen). Asphalte hingegen stellen natürlich vorkommende oder künstliche hergestellte Gemische aus Mineralstoffen und Bitumen als Bindemittel dar (natürlicher bzw. technischer Asphalt).

Bitumen kommt in der Natur als Bestandteil natürlicher Asphalte vor. Ein Beispiel ist der bekannte Asphaltsee auf der Insel Trinidad. Es kommt auch in Asphaltgesteinen vor, die sich über lange geologische Zeiträume aus Erdöl durch Verdunsten der leicht flüchtigen Anteile gebildet haben.

Der weitaus größte Teil des industriell eingesetzten Bitumens fällt bei der Mineralölverarbeitung an. Es ist die Fraktion des Erdöls, die nach dem Abdestillieren der verdampfbaren Anteile zurückbleibt. Entsprechend der Herstellungsverfahren lassen sich u. a. unterscheiden [PAR 11]:

- Destillationsbitumen, durch Destillation von Erdöl unter vermindertem Druck bei ca. 360 °C gewonnene weiche bis harte Bitumen;
- Hochvakuumbitumen, durch weitere Destillation von Destillationsbitumen unter erhöhtem Vakuum als letzte nichtflüchtige Fraktion hergestellte harte Bitumen;
- Oxidationsbitumen, durch Einblasen von Luft in geschmolzenes, weiches Destillationsbitumen bei ca. 250 °C hergestelltes hochschmelzendes Bitumen mit höherer Plastizitätsspanne (höherer Erweichungspunkt, tieferer Kältebrechpunkt);
- Modifizierte Bitumen, durch Additive chemisch-physikalisch modifiziertes Bitumen. Hierzu gehört als eine der wichtigsten Arten Polymerbitumen, ein durch chemische Vernetzung von Destillationsbitumen mit polymeren Kunststoffen hergestelltes Bitumen mit hohen Modifikationsmöglichkeiten.

4.3. Typische Merkmale

Die physikalischen und chemischen Eigenschaften bitumenhaltiger Baumaterialien wie Asphalt werden wesentlich durch die typischen Merkmale von Bitumen bestimmt [BEN 11, PAR 11]. Hierzu gehören insbesondere

- Dichte von 1,00 - 1,06 g/cm³ (im Bereich von Wasser);
- praktisch unlöslich in Wasser und geringe Absorption von Wasser;
- gute Beständigkeits- und Abdichtungseigenschaften (Diffusionswiderstand⁵ $\mu = 10^5$) gegenüber Wasser;
- starke Temperatur- und Zeitabhängigkeit von Viskosität, Elastizität und Plastizität;
- niedrige thermische Leitfähigkeit (0,16 W/mK);
- große thermische Ausdehnung ($6,1 \cdot 10^{-4} \text{ K}^{-1}$);
- geringe Wärme- und Feuerbeständigkeit;
- hohe Haftfestigkeit und starkes Klebevermögen;
- gute chemische Beständigkeit gegenüber den meisten anorganischen Säuren (Ausnahmen: Salpetersäure und Schwefelsäure), Basen, stark polaren Lösemitteln wie Alkohol und Wasser sowie salzhaltigen Lösungen;

⁵ Der μ -Wert ist dimensionslos und gibt an, um wieviel mal größer der Diffusionswiderstand der Schicht gegenüber einer gleich dicken stehenden Luftschicht unter gleichen Rahmenbedingungen ist.

- schlechte chemische Beständigkeit gegenüber Ölen und Fetten sowie artverwandten unpolaren organischen Lösungsmitteln wie Benzin, Toluol, Trichloräthan;
- gute Beständigkeit gegenüber Alterungs- und Abbauprozessen;
- abnehmende Beständigkeit gegenüber Alterung unter Einwirkung von radioaktiver Strahlung, Licht, Wärme und Luftsauerstoff (d. h. Erhöhung der Viskosität und damit verbunden auftretende Verhärtung);
- variierbare Einstellmöglichkeit der Eigenschaften.

Bei der Verwendung von Bitumen bzw. Asphalt als Baumaterial können die genannten typischen Merkmale von Bitumen durch Zugabe geeigneter Füll- und Zuschlagsstoffe in gewünschter Weise über weite Bereiche modifiziert werden.

4.4. Chemische Zusammensetzung

Bitumen ist ein komplexes kolloidales System bestehend aus einer Mischung von hauptsächlich hochmolekularen aliphatischen⁶, alizyklischen⁷ und aromatischen⁸ Kohlenwasserstoffen. Daneben enthalten Bitumen noch unterschiedliche Mengen an heterozyklischen⁹ Verbindungen mit Sauerstoff, Schwefel, Stickstoff und Spuren von Metallen (z. B. Eisen, Nickel). Die chemische Zusammensetzung von Bitumen ist stark abhängig von der Gewinnungs- bzw. Herstellungsart und liegt zumeist in folgenden Bereichen [PAR 11, PET 01]:

- Kohlenstoff: 80 – 88 Gew.-%,
- Wasserstoff: 7 – 11 Gew.-%,
- Sauerstoff: 1 – 12 Gew.-%,
- Schwefel: 0,5 – 7 Gew.-%,
- Stickstoff: 0 – 1,5 Gew.-%.

In vereinfachter Weise kann Bitumen als ein kolloides 2-Phasensystem aus höhermolekularen Partikeln (Mizellen) und einem niedermolekularen Gel (aus Maltenen) aufgefasst werden. In dieser klassischen Modellvorstellung werden folgende wesentlichen Komponenten unterschieden [PAR 11]:

- Mizellen: Kolloidale Teilchen, jeweils gebildet aus Asphalt mit einer umgebenden Schicht aus Harzen; Durchmesser > 25 nm.

⁶ Aliphatische Verbindung: Organische Verbindung, deren C-Atome in geraden oder verzweigten Ketten angeordnet sind.

⁷ Alizyklische Verbindung: Organische Verbindung mit mindestens einem Ring aus C-Atomen, die jedoch nicht sp²-hybridisiert sind (spezielle Elektronenbindungsform).

⁸ Aromatische Verbindung: Organische Verbindung mit mindestens einem Ring aus C-Atomen, die alle sp²-hybridisiert sind (spezielle Elektronenbindungsform).

⁹ Heterozyklische Verbindung: Ringförmige Verbindung, deren ringbildende Atome aus mindestens zwei verschiedenen Elementen bestehen.

- Asphaltene: Formbestimmende, unlösliche, schwere, feste rußartige Phase; Molekulargewicht eines Asphaltes 5.000 – 100.000 g/mol; Durchmesser ca. 5 nm.
- Harz: Schmelzbar machende, in Abhängigkeit der Temperatur feste oder flüssige Phase.
- Maltene: Weichmachende, in n-Heptan (Benzinbestandteil) lösliche, leichte, flüssige ölige Phase, in der die Mizellen kolloidal dispergiert und stabil sind; Molekulargewicht eines Malten 500 – 1.000 g/mol.

Im Rahmen fortgeschrittenerer Modelle besteht Bitumen vom inneren Kern einer Mizelle ausgehend und nach außen fortschreitend aus dem zentralen Teil der Asphaltene, aromatischen hochmolekularen Verbindungen, überwiegend aromatischen Verbindungen mit niedrigerem Molekulargewicht, gemischt aromatisch-alizyklischen Verbindungen, gemischt alizyklisch-aliphatischen Verbindungen und überwiegend aliphatischen Verbindungen.

4.5. Veränderungsprozesse

Die Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalt kann in Abhängigkeit der Zusammensetzung, der Verwendungsart und der Umgebungsbedingungen durch verschiedene sogenannte Alterungs- und Abbauprozesse (kurz: Veränderungsprozesse) negativ beeinflusst werden. Dies führt zu einer Zersetzung der im Bitumen enthaltenen Kohlenwasserstoffe unter Entstehung von niedermolekularen Verbindungen und Gasen. Als Folge kommt es zur Änderung der Eigenschaften des Bitumens, beispielsweise der Viskosität, Elastizität und Plastizität.

Nachfolgend werden potentielle Veränderungsprozesse kurz erläutert und hinsichtlich ihrer Relevanz für die hier vorliegende Problemstellung – Langzeitbeständigkeit von Bitumen bzw. Asphalt bei Verwendung als Schachtverschlussmaterial im ERAM – bewertet. Unterschieden werden in diesem Zusammenhang folgende Veränderungsprozesse:

- Innere Strukturänderungen,
- Einwirkung radioaktiver Strahlung,
- Wasseraufnahme,
- Einwirkung chemisch reaktiver Stoffe,
- Oxidationsprozesse,
- Biodegradation.

Dabei ist zu beachten, dass sich die verschiedenen o. g. Prozesse häufig gegenseitig beeinflussen und ggf. auch verstärken können. Als grundlegende Informationsquellen seien die Literaturstellen [BAC 84, WOL 89, KRA 93, PET 01] genannt.

4.5.1. Innere Strukturänderungen

Prozess

Innerhalb einer Bitumenmatrix können im Laufe der Zeit auch ohne äußere Einwirkungen Strukturänderungen auftreten. Es können flüchtige Kohlenwasserstoffe verdampfen und es können Moleküle in höhermolekularen Kohlenwasserstoffen umgeordnet werden. Durch derartige Prozesse, die insbesondere durch thermische Einwirkungen und – untergeordnet – durch hohe Drücke gefördert werden, sind über die gesamte Bitumenmatrix zeitliche Veränderungen der Bitumenstruktur und damit der Bitumeneigenschaften potentiell möglich. Dies kann zu folgenden Auswirkungen führen:

- Erhöhung der Viskosität sowie zunehmende Verhärtung des Bitumens und
- Verringerung des Volumens des Bitumens.

In [SNE 85] wird berichtet, dass die Viskosität von Bitumen innerhalb von 1 Jahr um einen Faktor 2 zunahm und dass innerhalb von 3 Monaten eine Volumenabnahme von 0,05 % bis 0,1 % erfolgte. Die Raten der Viskositätszunahme bzw. der Volumenabnahme verringerten sich mit der Zeit.

Einschätzung

Nach Einbau des Asphalts in die Schachtröhre wird es zu einer Erhöhung der Viskosität und zu einer Abnahme des Asphaltvolumens kommen. Zunächst wird dies durch die Temperaturabnahme des heiß eingebauten Asphalts dominiert sein, längerfristig kann es durch bei konstanter Temperatur ablaufender Strukturänderungen in sehr geringem Umfang weiter erfolgen. Sofern es zu einem Nachfließen des Bitumens aufgrund seines Eigengewichts bzw. des hydraulischen Drucks durch überlagerndes Grundwasser kommt, führt die Volumenabnahme zu einer Teilentleerung des asphaltgefüllten Schotters in den oberen Bereichen der Dichtelemente 2 und 3.

Um auszuschließen, dass die Volumenabnahme zur Ausbildung von Vorzugsfließwegen am (seitlichen) Kontaktbereich Schotter/Asphalt-Füllung und Hutgestein bzw. Salzgestein führt, sind entsprechende experimentelle Nachweise erforderlich.

4.5.2. Einwirkung radioaktive Strahlung

Prozess

Eigenschaften und Struktur von Bitumen können durch Wechselwirkung mit radioaktiver Strahlung verändert werden. In Abhängigkeit von der bestrahlten Bitumenart, der Energiedosisleistung und der absorbierten Energiedosis kann die Einwirkung von radioaktiver Strahlung insbesondere zu folgenden Effekten führen:

- Blasenbildung durch entstehende Radiolysegase (z. B. H₂, CO, CO₂, NO_x, CH₄);
- Anschwellen der Bitumenmatrix;
- Entstehung von Rissen und Bildung von Poren;
- Erhöhung der Wasserdurchlässigkeit und –aufnahme;
- Bildung organischer Abbauprodukte (z. B. Oxalate unter aeroben Bedingungen);

- Erhöhung des Erweichungspunktes und damit Verhärtung des Bitumens;
- Erniedrigung des Flammpunktes;
- Abnahme der Beständigkeit gegenüber Auslaugung.

Einschätzung

Die im ERAM endgelagerten radioaktiven Abfälle stellen die einzige signifikante Quelle für radioaktive Strahlung dar. Aufgrund der räumlichen Entfernung der Einlagerungsbereiche von den bitumen- bzw. asphalhaltigen Verschlusselementen wird die von den radioaktiven Abfällen ausgehende Direktstrahlung durch das dazwischenliegende Gebirgs- bzw. Salzgestein auf ein vernachlässigbares Niveau abgeschirmt.

Im Zuge der Verschlussarbeiten werden vorhandene Wasserwegsamkeiten weitestgehend blockiert. Aus den endgelagerten radioaktiven Abfällen potentiell freigesetzte Radionuklide (z. B. durch Auslaugung) können deshalb nur über sehr langsam ablaufende Transportprozesse und in hinsichtlich ihrer Strahlungseinwirkung vernachlässigbaren Konzentrationen in den Bereich der Schachtverschlussysteme gelangen.

Die Langzeitbeständigkeit der zur Konstruktion der Verschlussysteme der Schächte Marie und Bartensleben als Dichtmaterial verwendeten Bitumen bzw. Asphalte wird deshalb durch radioaktive Strahlung der im ERAM endgelagerten Abfälle nicht beeinträchtigt.

4.5.3. Wasseraufnahme

Prozess

Die Wasseraufnahme von Bitumen wird als Diffusionsprozess beschrieben. Der Diffusionskoeffizient von Wasser in reinem Bitumen wird in [SNE 85] mit Verweis auf [BRO 83] mit $2 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ bei $20 \text{ }^\circ\text{C}$ angegeben. In der neueren Arbeit von [PET 01] wird ebenfalls auf diesen Wert verwiesen. Der Wert wurde in [BRO 83] an einer 0,25 mm und einer 0,59 mm dicken Folie aus Bitumen bestimmt. In [EUR 91] wird die Diffusion von tritiumhaltigem Wasser durch Membran aus Bitumen unterschiedlicher Dicke (1,3 mm bis 10 mm) bestimmt und es werden Diffusionskoeffizienten im Bereich von $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ angegeben.

Weiter wird in [BRO 83] die Löslichkeit von Wasser in Bitumen durch zwei unterschiedliche Versuche bestimmt und mit 0,2 % bzw. 0,5 % angegeben. Beim ersten Wert wurde die Gewichtszunahme einer 1,2 cm mächtigen Bitumenschicht nach 180 Tagen in Kontakt mit Wasser bestimmt. Der zweite Wert wurde aus der Tritiumaufnahme einer ca. 0,2 mm mächtigen Bitumenschicht nach 14 Tagen Kontakt mit tritiumhaltigem Wasser ermittelt.

In [FUH 76] wird von einem Versuch berichtet, in dem „*handelsübliche Bitumen*“ in 5 mm Schichtdicke 10 Jahre lang mit Wasser in Berührung gebracht wurden. Ihre Wasseraufnahme betrug zwischen 1 % und 3 %, größtenteils nahe der Oberfläche. In [ESC 80] wird angegeben, dass eine 5 mm dicke Schicht aus geblasenem Bitumen nach 10 Jahren in Kontakt mit Leitungswasser 3 bis 4 % Wasser aufgenommen habe. Für ein anderes Bitumen werden weniger als 1 % angegeben. Die Quelle für diese Angaben wird in beiden Literaturstellen nicht benannt.

In Abhängigkeit von Art und Menge verwendeter Füll- und Zuschlagsstoffe – insbesondere wenn diese hygroskopisch sind (z. B. Salze) – kann sich die Wasseraufnahme in Bitumen erhöhen. Infolge von Sorptionsprozessen kommt es dabei ggf. zu einem Anschwellen der Inhaltsstoffteilchen mit folgenden möglichen Auswirkungen für die Bitumenmatrix:

- Erzeugung innerer Spannungen;
- Vergrößerung des Volumens;
- Ausbildung feiner Risse und offener Porenvolumina;
- Erhöhung der Wasserdurchlässigkeit und –aufnahme.

Eine Reihe von Untersuchungen an in Bitumen eingegossenen hygroskopischen Stoffen zeigen, dass diese bei Kontakt mit Wasser deutlich an Volumen zunehmen. Dies ist nur erklärbar, wenn Wasser durch die Bitumenschicht eindringt.

Die Wasseraufnahme von Bitumen ist von der Temperatur abhängig. Die Wasseraufnahme von Bitumen kann ebenfalls mit zunehmenden pH-Wert ansteigen.

Die natürlichen Bitumenvorkommen zeigen ebenfalls die Fähigkeit von Bitumen, Wasser aufzunehmen bzw. sich mit Wasser homogen zu durchmengen. Der Trinidad Naturasphalt ist eine homogene zähe Masse, bestehend aus 40 % Bitumen, ca. 30 % mineralische Bestandteile und ca. 30 % Wasser (<http://de.wikipedia.org/wiki/Trinidad-Naturasphalt>; Stand 21.11.2014).

Ob bzw. in welchem Umfang sich Quelldrücke bei der Einlagerung von Wasser in Bitumen aufbauen können, ist uns nicht bekannt. Die uns vorliegenden diesbezüglichen Untersuchungen wurden ausschließlich mit Mischungen aus Bitumen und hygroskopischen Inhaltsstoffen (typischerweise NaNO_3) durchgeführt (z. B. in [EUR 91]).

Einschätzung

Insbesondere über lange Betrachtungszeiträume ist eine Wasseraufnahme der in den kombinierten Widerlager-Dichtelementen als Dichtmaterial eingebauten Bitumen bzw. Asphalte grundsätzlich nicht auszuschließen. Aus einem Diffusionskoeffizient von $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ und einer Diffusionszeit von 30.000 Jahren ergibt sich eine Eindringtiefe in der Größenordnung von 1 m. Mit der Wasseraufnahme wird eine Volumenzunahme verbunden sein, die der im vorigen Abschnitt beschriebenen Volumenabnahme durch Strukturänderungen entgegenwirkt. Ob die Wasseraufnahme durch die Einspannung der Schotter-/Asphaltelemente behindert wird und ob sich durch die Wasseraufnahme Quelldrücke aufbauen, können wir auf der vorliegenden Datenlage nicht einschätzen. Aufgrund der Homogenität der Naturasphalte und der Tatsache, dass sie schon seit Jahrtausenden zur Abdichtung gegenüber Wasser verwendet werden, vermuten wir, dass die Wasseraufnahme nicht zur Ausbildung von Fließwegen innerhalb des Bitumens führt.

4.5.4. Einwirkung chemisch reaktiver Stoffe

Prozess

Bitumen kann durch physiko-chemische Wechselwirkungen mit reaktiven Stoffen in seinen Eigenschaften und seiner Struktur – bis hin zum Abbau – verändert werden. Hierzu gehören auch Oxidationsprozesse, auf die jedoch in einem späteren Abschnitt separat eingegangen wird. Die

Beständigkeit gegenüber chemischen Einwirkungen ist insbesondere abhängig von der Art des Bitumens, der Konzentration der angreifenden Stoffe und der Zeitdauer der Einwirkung.

Bitumen sind bei Normaltemperaturen weitestgehend beständig gegenüber Einwirkungen von organischen und anorganischen Salzlösungen, schwachen Säuren und Basen sowie stark polaren Lösungsmitteln (z. B. Alkohol, Wasser). Speziell in Wasser sind Bitumen nur in sehr geringem Umfang löslich. Bei intensivem Kontakt mit Wasser liegt nach [BEN 11, PAR 11] die Löslichkeit von Bitumen bei 0,001 % bis 0,1 %, nach [ESC 80, FUH 76] bei 0,001 % bis 0,01 %.

Bitumen sind insbesondere gegenüber Salzen stabil. Dies zeigen sowohl langjährige praktische Beobachtungen (z. B. beim Einsatz von Streusalz auf Straßen) als auch geologische Beobachtungen (wie die Existenz bituminöser Salztone und mariner Bitumenlagerstätten oder die Tatsache, dass die mineralischen Bestandteile des Trinidad Naturasphalts Salze enthalten).

Fette, Öle und artverwandte unpolare Lösungsmittel (z. B. Benzin, Toluol, Trichloräthan) vermögen hingegen Bitumen wesentlich stärker anzugreifen. Ebenso wird Bitumen durch starke Säuren angegriffen. Neben der Temperatur und Konzentration ist hierbei von großer Bedeutung, ob die Säure oxidierend wirkt. Mit zunehmender Temperatur verliert Bitumen seine Beständigkeit gegenüber den meisten dieser Substanzen. Härtere Bitumen sind im Allg. resistenter gegenüber chemischen Einwirkungen als weichere Sorten.

Einschätzung

Es ist nicht auszuschließen, dass langfristig salzhaltiges Wasser (salzhaltiges Grundwasser oder Salzlösung aus dem Grubengebäude) in den Bereich der Schachtverschlüsse des ERAM gelangt und dort in Kontakt mit dem in den kombinierten Widerlager-Dichtelementen einbauten Bitumen bzw. Asphalt kommt. Eine Exposition mit starken Säuren und Laugen oder mit nichtwässrigen Lösungsmitteln ist dagegen nicht möglich.

Unter den im ERAM zu erwartenden moderaten Temperaturbedingungen (ca. 20 °C) sind Bitumen bzw. Asphalte beständig gegenüber den Einwirkungen von Salzlösungen. Uns liegen aus der gesichteten Literatur keine Erkenntnisse vor, dass die chemische Beständigkeit gegenüber Salzlösungen nicht auch für lange Kontaktzeiträume (30.000 Jahre) gegeben wäre.

Wir erachten deshalb die durch Salzlösungen unmittelbar verursachten chemischen Auswirkungen auf die Langzeitbeständigkeit dieser Dichtmaterialien für den zugrunde gelegten Betrachtungszeitraum (30.000 Jahre) als vernachlässigbar gering.

Allerdings können Salzlösungen den Abbau von Bitumen bzw. Asphalten indirekt beeinflussen. Im Zusammenhang mit der Biodegradation von Rohöl wurden in [ZEK 05] Versuche mit unterschiedlichen NaCl-Gehalten in der Nährlösung durchgeführt. Bis zu einem NaCl-Gehalt von 6 Gew.-% stieg die mikrobielle Aktivität an, oberhalb von 6 Gew.-% nahm sie wieder ab. Bei einem NaCl-Gehalt von 10 Gew.-% war sie auf das Niveau der NaCl-freien Lösung abgesunken. Ein derartiger Einfluss der Salinität auf den mikrobiellen Abbau ist auch bei Bitumen bzw. Asphalten nicht auszuschließen.

4.5.5. Aerobe Oxidationsprozesse

Prozess

Bei Anwesenheit von Sauerstoff kann Bitumen im Bereich der Kontaktflächen chemisch oxidieren. Der Prozess beschleunigt sich mit steigender Temperatur und zunehmendem Druck. Bei Gegenwart von Licht (Photooxidation) verläuft die Oxidationsreaktion zudem wesentlich schneller als bei Dunkelheit.

Die chemische Oxidation von Bitumen ist i. Allg. ein zeitlich begrenzter Prozess, der direkt nach dem Kontakt mit Sauerstoff einsetzt und im Laufe der Zeit – sofern entstehende Oxidationsprodukte nicht abtransportiert werden – mit einer sich ausbildenden Oxidationsschicht allmählich abnimmt. Gemäß [SHE 03] (Seite 164) sind die Oxidationsprodukte wasserlöslich.

In [P 177] wird unter Verweis auf [KRA 93] angegeben, dass die Oxidation von Bitumen durch Luftsauerstoff bei Abwesenheit von Licht auf die Materialoberfläche beschränkt bleibt. In [KRA 93] wird unter Verweis auf [FUH 76] angegeben, dass die oxidative Bitumenalterung auf eine maximale Eindringtiefe von 0,1 mm beschränkt bleibt. In [FUH 76] (Seite 56) wird jedoch die Eindringtiefe von Sauerstoff in Bitumen im Dunkeln mit „*nicht viel tiefer als 2,5 mm*“ angegeben. In [ESC 80] wird ohne Angaben von Quellen angegeben, dass Messungen und Berechnungen eine Eindringtiefe für Sauerstoff von 2,5 bis 5 mm gezeigt hätten, wobei die Eindringtiefe langfristig („*in the long run*“) etwas ansteigen würde. In der neueren Arbeit von [PET 01] wird auf [ESC 80] verwiesen. Die den Angaben aus [FUH 76] und [ESC 80] zugrunde liegenden Untersuchungen und damit die zeitlichen und sonstigen Randbedingungen für die Gültigkeit dieser Aussagen konnten wir nicht identifizieren. Auch bleibt unklar, in wieweit die berichteten Ergebnisse auf rein chemische bzw. auch auf mikrobielle Prozesse zurückzuführen sind.

Mit fortschreitender Oxidation resultieren im Bereich der betroffenen Oberflächenschicht der Bitumenmatrix u. a. folgende Auswirkungen:

- Verdampfung niedermolekularer Komponenten und Ablauf von Polymerisationsreaktionen;
- Erhöhung der Viskosität sowie zunehmende Versprödung und Verhärtung des Bitumens;
- Entstehung von Rissen in der Bitumenoberfläche;
- Bildung wasserlöslicher Oxidationsprodukte (z. B. Kohlenhydrate).

Einschätzung

Die bitumenhaltigen Dichtelemente sollen in einem mittleren Bereich der Schachtröhren eingebaut werden. Sie sollen durch ein ca. 50 m (Schacht Bartensleben) bzw. ca. 80 m (Schacht Marie) mächtiges Abdichtelement aus Ton und darüber ein ca. 200 m mächtiges Element aus mineralischem Materialgemisch überdeckt werden. Beide überdeckenden Elemente werden sich nach ihrem Einbau mit Grundwasser aufsättigen. Seitlich sind die bitumenhaltigen Dichtelemente unmittelbar von Hutgestein und Salzgestein umgeben. Nach unten hin schließen sich an die bitumenhaltigen Dichtelemente eine 3 m mächtige Filterschicht aus Kies, Sand und Feinsand sowie ein mehrere Meter mächtiges Element aus mit Zement vergossenem Schotter an. Ein direkter Kontakt mit Luftsauerstoff besteht somit nicht. Die Sauerstoffzufuhr kann von oben und von der Seite her nur über das Grundwasser erfolgen. Von unten her kann der Sauerstoffzutritt nur über

Diffusion durch die Schachtverfüllung erfolgen, solange in der (lokalen) Grubenluft noch freier Sauerstoff vorhanden ist.

Die folgenden Gründe sprechen für einen nur geringen Umfang an (aeroben) Oxidationsprozessen im Bitumen der Schachtverschlüsse:

- Der Grundwasseraustausch an der Oberseite des Dichtelements 2 wird nur sehr gering sein.
- Der Grundwasserfluss durch die (potentielle) Auflockerungszone entlang der mit Bitumen verfüllten Schachtabsnitte wird nur sehr gering sein.
- Der Sauerstoffgehalt dieser Grundwässer wird nur gering sein.
- Der Sauerstoffzutritt an der Unterseite des Dichtelements 3 wird durch die langen Diffusionswege und die vergleichsweise geringe Diffusion durch den vergossenen Beton stark limitiert sein.

Im Folgenden schätzen wir das Potential von Oxidationsprozessen aufgrund eines Sauerstoffzutritts mit dem Grundwasser ab.

Als Auslegungswert für den Grundwasserfluss durch die Schachtabdichtung und die umgebende Auflockerungszone des Salzgesteins werden in [P 177] und [P 182] 2 m³/a angegeben. Die für die Schächte Bartensleben und Marie berechneten Grundwasserflüsse liegen weit unter diesem Auslegungswert.

Die Sättigungsgrenze von Sauerstoff beträgt im hier relevanten Temperaturbereich unter atmosphärischem Partialdruck in Süßwasser ca. 10 mg/l. Zwar nimmt die Löslichkeit mit zunehmendem NaCl-Gehalt des Grundwassers ab (in gesättigter NaCl-Lauge beträgt sie unter atmosphärischem Partialdruck ca. 2 mg/l¹⁰). Allerdings nimmt die Löslichkeit mit dem Druck und damit mit der Tiefe zu, so dass sie am Salzspiegel etwa 25-fach über dem Wert an der Erdoberfläche liegt. Es ist davon auszugehen, dass der Sauerstoffgehalt in den tiefen Grundwässern bei Erreichen der mit Bitumen verfüllten Schachtabsnitte schon teilweise abgebaut wurde. Bei der folgenden Abschätzung vernachlässigen wir konservativ einen solchen Abbau. Andererseits gehen wir davon aus, dass es in größeren Tiefen unterhalb des Grundwasserspiegels in Ermangelung eines Sauerstoffangebots nicht zu einem Lösen von Sauerstoff kommt, trotz der hier erhöhten Löslichkeiten. Wir setzen deshalb die Sauerstoffkonzentration in den Grundwässern, die mit dem Bitumen in Kontakt kommen, mit anfänglich 10 g/m³ an.

Mit diesen Annahmen ergibt sich ein maximaler Sauerstofftransport von 20 g/a oder 600 kg in 30.000 Jahren.

Da unklar ist, welche Reaktionen bei der Oxidation von Bitumen im Detail ablaufen, können wir die Menge des durch diese Sauerstoffmenge oxidierbaren bzw. durch Oxidation zerstörbaren Bitumens nicht ermitteln. Unterstellt man, dass 1 g Sauerstoff 10 cm³ Bitumen in seiner Funktion

¹⁰ Die Löslichkeit von Sauerstoff unter atmosphärischem Partialdruck in NaCl-gesättigter Lösung beträgt 2 mg O₂ je kg H₂O [GEN 10] bzw. 2,2 g O₂ je m³ NaCl-gesättigter Lösung.

zerstören kann, ergäbe sich eine zerstörbare Bitumenmenge von 6 m³. Dies entspricht in der verfüllten Schachtröhre einer Schichtmächtigkeit von 30 cm.¹¹

In [P 177] werden die Fluidströme durch die Schachtabdichtungen (einschließlich Auflockerungszonen) mit 0,02 bis 0,03 m³/a abgeschätzt, in [P 500] und [P 501] mit 2·10⁻⁵ bis 3·10⁻⁵ m³/a. Der grundwassergetragene konvektive Sauerstoffeintrag wäre damit vernachlässigbar.

Wir schätzen deshalb ein, dass die Auswirkungen auf die Langzeitbeständigkeit der in den Verschlusssystemen des ERAM als Dichtmaterial eingebauten Bitumen bzw. Asphalt durch chemische Oxidationsprozesse mit Sauerstoff als Oxidans für den zugrunde gelegten Betrachtungszeitraum (30.000 Jahre) vernachlässigbar gering sind.

4.5.6. Biodegradation

Prozess

Nach heutigem Kenntnisstand sind bitumenabbauende Mikroorganismen praktisch allgegenwärtig (ubiquitär). Notwendige Voraussetzungen für das Wachstum bitumenabbauender Mikroorganismen sind hinreichend feuchte Umgebungsbedingungen und die Verfügbarkeit lebenswichtiger Elemente wie Kohlenstoff (wird vom Bitumen bzw. Asphalt geliefert), Sauerstoff, Wasserstoff, Stickstoff, Schwefel, Phosphor, Kalium, Calcium, Magnesium, Eisen und weitere Spurenelemente. Infolge des mikrobiellen Abbauprozesses kommt es zur Bildung von Gasen (hauptsächlich CO₂, nachgeordnet ggf. auch CH₄, H₂, H₂S, NO_x) und organischer Abbauprodukte.

In der Literatur wird die mikrobielle Degradation von Bitumen (Biodegradation) als ein relativ langsam ablaufender Prozess charakterisiert, der maßgeblich durch die Art der Mikroorganismen, die chemische Zusammensetzung und den physikalischen Zustand des Bitumens sowie durch die vorherrschenden Umgebungsbedingungen kontrolliert wird. Hierbei sind insbesondere folgende Aspekte von Bedeutung:

- **Mikrobielles Ökosystem:**

Bitumenabbauende Mikroorganismen sind ubiquitär und bilden in der Natur immer Lebensgemeinschaften unterschiedlicher Spezies mit entsprechend unterschiedlichen Stoffwechseleigenschaften. Dies wurde insbesondere auch für Naturasphaltvorkommen nachgewiesen [KIM 07]. Die notwendige Energie zur Aufrechterhaltung ihrer Lebensvorgänge erhalten die Mikroorganismen durch Oxidation organischer Bitumenkomponenten. Untergeordnet kann die Energiegewinnung auch – bei Fehlen geeigneter Oxidationsmittel – durch Gärung erfolgen.

Jede Spezies ist dabei auf den Abbau bestimmter organischer Bitumenbestandteile spezialisiert, unterschiedliche Spezies greifen daher unterschiedliche Bestandteile an. Während Reinkulturen nur bestimmte Teilschritte des Bitumenabbaus ausführen, kann der Abbau durch Mischkulturen i. Allg. vollständig erfolgen. Von verschiedenen Autoren wird die Auffassung vertreten, dass Bitumen durch Mischkulturen unterschiedlicher Herkunft und somit unterschiedlicher

¹¹ Wir gehen bei dieser Abschätzung von einem Schachtquerschnitt von 50 m² und einer Porosität des Schotterers von 40 % aus.

Spezieszusammensetzung unter gleichen Bedingungen nach einer vergleichsweise kurzen Adaptionsphase ungefähr mit der gleichen mikrobiellen Aktivität metabolisiert wird.

- Chemische Zusammensetzung des Bitumens

Entsprechend der unterschiedlichen Verfahren zur Gewinnung bzw. Herstellung können unterschiedliche Bitumen (entsprechend auch Asphalte) in ihrer chemischen Zusammensetzung stark variieren (vgl. Abschnitte 4.2 und 4.4). Dies betrifft sowohl die Gehalte und Anteile an Haupt- und Spurenelementen als auch die Verteilung der verschiedenen Kohlenwasserstoffverbindungen und -fraktionen im Bitumen. Da niedermolekulare Kohlenwasserstoffe leichter mikrobiell abgebaut werden können als höhermolekulare und aliphatische Verbindungen leichter als aromatische, ferner bestimmte chemische Komponenten die mikrobielle Aktivität fördern, andere hingegen hemmen können, hat die chemische Zusammensetzung von Bitumen einen wesentlichen Einfluss auf den Umfang und die Geschwindigkeit des mikrobiellen Abbauprozesses.

- Physikalischer Zustand des Bitumens

Der mikrobielle Abbau von Bitumen erfolgt bei direktem Kontakt der Mikroorganismen mit dem organischen Material. Die mikrobielle Aktivität wird daher maßgeblich durch die zur Verfügung stehende Bitumenoberfläche bestimmt. Bei intakter Bitumenmatrix ist die für mikrobielle Aktivität verfügbare Oberfläche minimal. Sofern sich durch Alterungs- und Abbauprozesse – ggf. in Verbindung mit mechanischen Beanspruchungen – an der Oberfläche, aber auch im Inneren der Bitumenmatrix offene Poren und Risse ausbilden, vergrößert sich die für mikrobielle Aktivität verfügbare Bitumenoberfläche und die Abbaugeschwindigkeit kann sich erhöhen.

Die mit Alterungs- und Abbauprozessen häufig einhergehende Verhärtung von Bitumen wirkt sich hingegen aufgrund der relativen Zunahme schwerer abbaubarer, höhermolekularer Kohlenwasserstofffraktionen hemmend auf die mikrobielle Aktivität aus.

- Umgebungsbedingungen

Feuchtigkeit: Das Wachstum bitumenabbauender Mikroorganismen setzt das Vorhandensein hinreichend feuchter Umgebungsbedingungen voraus. Unter trockenen Bedingungen ist ein Wachstum bitumenabbauender Mikroorganismen nicht möglich. Sind hinreichend feuchte Umgebungsbedingungen vorhanden, kann auch unter extremen Umgebungsbedingungen (hinsichtlich Sauerstoffgehalt, Temperatur, Druck, Salinität und pH-Wert) ein mikrobieller Abbau von Bitumen nicht ausgeschlossen werden.

Sauerstoff: Der mikrobielle Abbauprozess kann sowohl unter aeroben als auch unter anaeroben Bedingungen erfolgen, wobei der Abbau unter aeroben Bedingungen zumeist deutlich schneller als unter anaeroben Verhältnissen verläuft.

- *Aerobe Biodegradation:* Notwendige Voraussetzung für mikrobiellen Abbau von Bitumen unter aeroben Bedingungen ist die Anwesenheit von Sauerstoff. Ihre Energie erhalten die Mikroorganismen durch Oxidation organischer Bitumenverbindungen, wobei Sauerstoff als Oxidationsmittel fungiert (aerobe Atmung). Unter Bildung von CO₂ werden insbesondere gesättigte Kohlenwasserstoffe abgebaut.

- *Anaerobe Biodegradation:* Bei Abwesenheit von Sauerstoff können zur Energiegewinnung durch Oxidation organischer Bitumenverbindungen an die Stelle von Sauerstoff alternative Oxidationsmittel wie Nitrat, Mangan, Eisen, Sulfat etc. treten (anaerobe Atmung), siehe Abbildung 4-1 (aus [WOL 89]). Sind keine entsprechenden Elektronenakzeptoren vorhanden, kann die Energiegewinnung auch durch Gärungsprozesse erfolgen. Abgebaut werden hauptsächlich gesättigte und aromatische Kohlenwasserstoffe, hingegen bleiben Harze und Asphaltene nahezu unbeeinflusst.

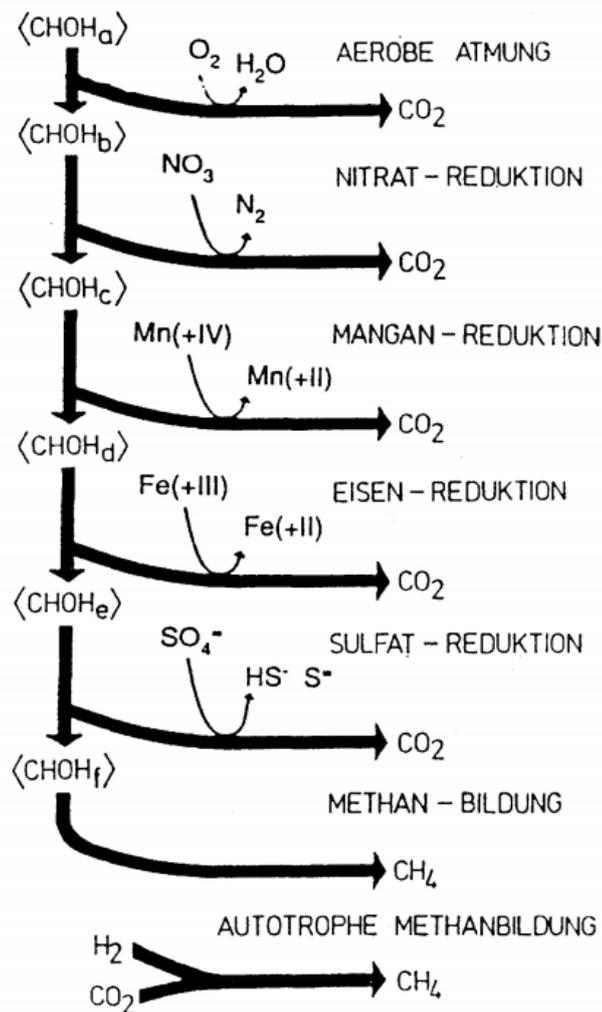


Abbildung 4-1: Abbau von organischen Substraten durch aerobe und anaerobe Atmung (aus [WOL 89]).

Temperatur: Mit zunehmender Temperatur erhöht sich die mikrobielle Aktivität in dem für das ERAM relevanten Temperaturbereich (ca. 10 – 30 °C). In tiefliegenden Rohöllagerstätten und in Laborversuchen zur Biodegradation von Rohöl konnte mikrobielle Aktivität für Temperaturen bis zu ca. 80 °C nachgewiesen werden [HEA 03, ZEK 05].

Druck: Die mikrobielle Aktivität ist praktisch unabhängig von den vorherrschenden Druckverhältnissen und bleibt auch unter sehr hohen Drücken unbeeinflusst.

Salinität: In einem salinaren Umfeld mit Salzgehalten von mehr als 10 Gew.-% kann davon ausgegangen werden, dass die mikrobielle Aktivität deutlich gehemmt wird. Die Aussage in [P 177], dass keine Bakterien bekannt sind, die in Lösungen mit >10 Gew.-% NaCl überleben können, können wir dagegen nicht bestätigen. Zwar sind nach [JAC 95] keine Bakterien bekannt, die gleichzeitig erhöhte Temperaturen (>> 50 °C) und Salzgehalte (>> 10 Gew.-% NaCl) dauerhaft überleben können. Dagegen werden in [ZEK 05] Untersuchungen zur Biodegradation von Rohöl mit einem Bakterienstamm durchgeführt, der bei einem Salzgehalt von 6 Gew.-% die höchste Abbaurate erzielte und bei einem Salzgehalt von 10 Gew.-% immer noch die gleiche Abbaurate aufwies wie bei Süßwasser¹². Die Versuche wurden bei 50 °C durchgeführt. In den gesättigten Salzlaugen von Salinen finden sich ebenfalls Mikroorganismen, so dass die Aussage in [JAC 95] zu hinterfragen bzw. hinsichtlich der Angabe „>>“ zu präzisieren ist.

pH-Wert: Die mikrobielle Aktivität bleibt i. a. über weite Bereiche des pH-Wertes relativ unbeeinflusst. Erst bei extremen pH-Werten im alkalischen oder sauren Bereich ist mit einem deutlichen Rückgang der mikrobiellen Aktivität zu rechnen. In der Literatur werden mikrobielle Aktivitäten bis pH 12 beobachtet.

Stofftransport: Neben der Zufuhr neuer Nährstoffe ist auch der Abtransport von Stoffwechsel- und Abbauprodukten wichtige Voraussetzung für das Wachstum bitumenabbauender Mikroorganismen. Signifikante mikrobielle Aktivität findet daher insbesondere an zugänglichen Bitumenoberflächen statt, die von Lösungswasser und/oder Umgebungsluft angeströmt werden können. Ist der Wasser- bzw. Luftstrom unterbunden, werden einerseits vorhandene Nährstoffe (sofern sie nicht wie Kohlenstoff aus der Bitumenmatrix bezogen werden können) verbraucht, andererseits Abbau- und Stoffwechselprodukte (insbesondere letztere können ggf. toxisch auf die Mikroorganismen wirken) angehäuft. Die Folge ist i. Allg. eine deutliche Abnahme der mikrobiellen Aktivität.

Angaben zu Abbauraten

Im Rahmen der durchgeführten Literaturrecherche identifizierten wir 8 unabhängige Untersuchungen zur Ermittlung von Abbauraten von Bitumen. Zwar werden in einer Vielzahl weiterer uns vorliegender Unterlagen mikrobielle Abbauraten von Bitumen angegeben, diese konnten jedoch stets auf diese 8 Untersuchungen zurückgeführt werden.

Als Maß für den mikrobiellen Abbau wurde meist die CO₂-Bildung gemessen, in zwei Arbeiten wurde (bei Untersuchungen zum aeroben mikrobiellen Abbau) der O₂-Verbrauch gemessen. Da die mikrobielle Aktivität proportional zur zugänglichen Substratoberfläche ist, wird die CO₂-Bildung (bzw. der O₂-Verbrauch) pro Zeiteinheit auf die zugängliche Substratoberfläche normiert. Im Folgenden geben wir die Ergebnisse zum Zweck der leichteren Vergleichbarkeit in einer einheitlichen Einheit an. Häufig geben die Autoren die Ergebnisse in Form einer Abbaugeschwindigkeit an. Diese wird berechnet aus abgebautem Bitumenvolumen pro Fläche und Zeiteinheit. Das Bitumenvolumen wird seinerseits aus der CO₂-Bildung (bzw. dem O₂-Verbrauch), dem Kohlenstoffgehalt des Bitumens (80 – 90 %) und der Dichte des Bitumens (ca. 1 g/cm³) berechnet, meist unter der Annahme, dass der gesamte

¹² Der Salzgehalt gesättigter NaCl-Lösung beträgt 26 Gew.-%.

Kohlenstoff in (zunächst) gasförmiges CO₂ umgewandelt wird. In drei Arbeiten [AIT 91, JAC 97, WOL 89] wird allerdings berücksichtigt, dass ein Teil des Kohlenstoffs in die Biomasse eingebaut wird, so dass das tatsächlich abgebaute Bitumenvolumen höher ist als das aus der CO₂-Bildung ermittelte.

Die am häufigsten zitierte und auch in [P 177] und [P 182] berücksichtigte Arbeit ist eine Dissertation am Institut für Pflanzenbiologie der Universität Zürich [WOL 89, WOL 91A, WOL 91B]. Bitumen wurde zur Vergrößerung der zugänglichen Substratoberfläche (in tiefgefrorenem Zustand) aufgemahlen, dann mit einer Nährlösung versetzt und mit zuvor gezüchteten Mikroorganismen geimpft. Es wurden verschiedene Kulturen von Mikroorganismen verwendet. Die Versuche wurden unter aeroben und anaeroben Bedingungen durchgeführt und dauerten bis zu 4 Monate bzw. 2 Monate. Die Temperatur während der Versuche betrug 30 °C bzw. 35 °C. Die Versuche unter aeroben Bedingungen erfolgten unter konstanter (CO₂-freier) Luftzufuhr und Rühren der Lösung. Es wurde das gasförmig freigesetzte CO₂ gemessen¹³. Nach einer anfänglichen Adaptionszeit lagen die Bildungsraten unter aeroben Bedingungen nahezu konstant bei ca. 1 mol m⁻² a⁻¹ CO₂ (es wird eine Bandbreite von 0,7 bis 1,8 mol m⁻² a⁻¹ CO₂ angegeben). Für die anaeroben Bedingungen (unter He-Atmosphäre) wird eine Bandbreite von 0,007 bis 0,02 mol m⁻² a⁻¹ CO₂ angegeben, wobei diese Werte einen Aufschlag für die (geschätzte) Bildung gelösten organischen Kohlenstoffs beinhalten. Unter der Annahme, dass ca. 50 % des aus dem Bitumen stammenden Kohlenstoffs in Biomasse eingebaut und nur der Rest (i. W. als CO₂) freigesetzt wurde, berechnet Wolf **unter aeroben Bedingungen** einen Bitumenabbau von 20 bis 50 g m⁻² a⁻¹, was (bei einer Bitumendichte von 1 g/cm³ und 90 Gew.-% C) einer Abbaugeschwindigkeit von etwa **22 bis 55 µm/a** entspricht. **Unter anaeroben Bedingungen** liegt die Abbaurrate um den **Faktor 100 niedriger**.

Am RISØ (Dänemark) wurden mit zwei verschiedenen Versuchsvorrichtungen Untersuchungen zur Ermittlung von Abbauraten von Bitumen **unter oxidierenden Bedingungen** durchgeführt [AIT 84]. Bei der ersten Versuchsvorrichtung wurde Sand mit heißem Bitumen im Verhältnis von 10:1 gemischt, so dass ein mit Bitumen umhüllter Sand entstand. Für das Bitumen wird eine spezifische Oberfläche von 20 cm²/g angegeben. Nach Abkühlen wurde dieser Sand in einer Schale mit destilliertem Wasser gelagert und mit Mikroorganismen geimpft. Die Schale wurde in ein Gefäß gestellt, in dem sich ein Reservoir mit NaOH-Lauge befand, und das Gefäß wurde verschlossen. Durch die mikrobielle Tätigkeit wurde Sauerstoff verbraucht. Da das entstehende CO₂ in der NaOH-Lauge gebunden wurde, sank der Druck in dem Gefäß ab. Eine Belüftung des Wassers (z. B. durch Rühren) erfolgte nicht. Als Ergebnis wird für diese erste Versuchsreihe eine Abbaugeschwindigkeit von **0,07 µm/a bis 0,25 µm/a** angegeben. Die zweite Versuchsvorrichtung war ähnlich aufgebaut. Bei den hier durchgeführten Untersuchungen wurde als Substrat ein monolithischer Probenkörper verwendet, der aus einer Mischung aus Bitumen (60 %) und NaNO₃ (40 %) hergestellt wurde. Als Ergebnis wird eine Abbaugeschwindigkeit **6,5 µm/a** angegeben. Die Ergebnisse können wir aufgrund fehlender und sich teilweise widersprechender Angaben nicht nachvollziehen.

¹³ Bei den anaeroben Versuchen wurden zusätzlich das entstandene (gasförmige) CH₄ sowie der in der Nährlösung gelöste organische Kohlenstoff bestimmt. Die entstandene CH₄-Menge war vernachlässigbar gering. Die Messungen zum gelösten organischen Kohlenstoff konnten nicht ausgewertet werden, da sie durch Einträge bei der Impfung der Nährlösung und durch Sorption verfälscht wurden.

In [EUR 86] wird angegeben, dass mit der ersten Versuchseinrichtung unter aeroben und optimalen Nährstoffbedingungen Abbaugeschwindigkeiten von 0,7 bis 7 $\mu\text{m/a}$ ermittelt wurden. Der Grund für diese abweichenden Angaben konnten wir nicht ermitteln.

In [ROF 91] wird berichtet, dass am FOI (Umea, Schweden) Untersuchungen zur CO_2 -Produktion durch mikrobiellen Abbau von Bitumen unter aeroben und anaeroben Bedingungen durchgeführt wurden. 1 g bitumenüberzogene Glasperlen (mit 1 mg Bitumen und einer Oberfläche von 10 cm^2) wurden mit 10 ml Flüssigkeit versetzt, die mit zuvor gezüchteten Mikroorganismen geimpft war. Die Versuche wurden mit verschiedenen Flüssigkeiten (Grundwasser und mit Nährstoffen angereicherte Lösung) durchgeführt. Es wurde das CO_2 in der Gasphase und der Flüssigphase berücksichtigt. Die Versuche unter aeroben Bedingungen dauerten 5 Monate und lieferten eine Produktionsrate von 0,6 bis 7,9 $\mu\text{mol CO}_2$ je mg Bitumen und Monat (entsprechend 7,2 bis 95 $\text{mmol m}^{-2} \text{a}^{-1}$). Die Versuche unter anaeroben Bedingungen dauerten 4 Monate und lieferten eine Produktionsrate von 0 bis 2,1 $\mu\text{mol CO}_2$ je mg Bitumen und Monat (entsprechend 0 bis 25 $\text{mmol m}^{-2} \text{a}^{-1}$).¹⁴ Dies entspricht Abbaugeschwindigkeiten in der Größenordnung von **0,1 bis 2,7 $\mu\text{m/a}$ (aerobe Bedingungen)** bzw. **0 bis 0,7 $\mu\text{m/a}$ (anaerobe Bedingungen)**.¹⁵

In [AIT 91] wird berichtet, dass am CEN (Cadarahe, Frankreich) Untersuchungen zum mikrobiellen Abbau von Bitumen unter **aeroben Bedingungen** durchgeführt wurden. 100 mg Bitumen wurde mit 200 ml Nährlösung versehen und mit Bakterien geimpft. Die Oberfläche der Bitumenproben wird nicht angegeben, lässt sich aber aus den Angaben in [AIT 91] zu ca. 3 cm^2 berechnen¹⁶. Im Gegensatz zu den zuvor wiedergegebenen Studien wurden hier reine Bitumen abbauende Bakterienstämme eingesetzt. Die Behältnisse wurden belüftet und es wurden der O_2 -Verbrauch und die CO_2 -Freisetzung in die Luft gemessen. Die Menge des in der Nährlösung in Lösung gegangenen CO_2 wurde rechnerisch bestimmt. O_2 -Verbrauch und CO_2 -Freisetzung waren in den ersten ein bis zwei Wochen am höchsten und nahmen dann ab. Nach 2.400 Stunden wurden die Versuche beendet. Nach dieser Zeit waren zwischen 7 % und 11 % des Bitumens abgebaut. Die CO_2 -Produktion innerhalb von 2.400 h wird mit 64,8 bis 95,2 ml CO_2 pro g Bitumen angegeben, was – bei einer von uns unterstellten Temperatur von 25 °C – Raten zwischen 3,23 und 4,75 $\text{mol m}^{-2} \text{a}^{-1} \text{CO}_2$ entspricht. Unter der in [AIT 91] getroffenen Annahme, dass nur ca. 60 % des aus dem Bitumen stammenden Kohlenstoffs als CO_2 freigesetzt wird (der Rest wird z. B. in Biomasse eingebaut oder geht als organischer Kohlenstoff in Lösung), einer Bitumendichte von 1 g/cm^3 und einem Kohlenstoffanteil von 84 Gew.-% ergeben sich Bitumenabbauraten von **77 bis 113 $\mu\text{m/a}$** . Aus den Abbildungen in [AIT 91] entnehmen wir, dass die CO_2 -Produktion in den ersten zwei Wochen 2 bis 3-mal so hoch ist wie im Mittel des Gesamtzeitraums von 2.400 Stunden, was Raten bis 0,03 $\text{mol m}^{-2} \text{d}^{-1} \text{CO}_2$ bzw. ca. 0,7 $\mu\text{m/d}$ entspricht.

In [JAC 97] wird von Versuchen zur Bestimmung der Abbauraten von Bitumen unter **anaeroben Bedingungen** berichtet, die im Auftrag der ANDRA (Agence Nationale pour la Gestion des Déchets Radioactifs) in Frankreich durchgeführt wurden. Es wurden Probekörper aus 60 % Bitumen und 40 %

¹⁴ In [ROF 91] werden in der Zusammenfassung Produktionsraten von 0,6 bis 1,5 $\mu\text{mol CO}_2$ je mg Bitumen und Monat (aerob) bzw. 1,1 bis 1,5 $\mu\text{mol CO}_2$ je mg Bitumen und Monat (anaerob) angegeben. Diese wurden bei einem pH von 10 ermittelt, was in [ROF 91] als für die Einlagerungskammern eines schwedischen Endlagers repräsentativ angesehen wird.

¹⁵ Wir unterstellen hier als Bandbreite, dass 50 % bis 100 % des umgesetzten C als gasförmiges CO_2 freigesetzt wird.

¹⁶ Es wird angegeben, dass durch den Bakterienstamm *S. lipolytica* 9 % des Bitumens (also 9 mg) abgebaut wurde, was einem Abbau von 3,2 mg/cm^2 entspräche.

nitrat- und sulfathaltigen (aber kohlenstofffreien) Rückständen mit einem Durchmesser von 80 mm und einer Dicke von 5 mm hergestellt. Je Versuchsbehälter wurden zwischen 5 und 10 solcher Scheiben in 1 Liter granitischem Grundwasser eingelagert und mit natürlichen gemischten anaeroben Bakterienkulturen versehen. Die Versuchsbehälter wurden unter He-Atmosphäre gesetzt, hermetisch verschlossen und für 6 bzw. 12 Monate bei 30 °C gelagert. Es wurde das in die Gas- und die Wasserphase freigesetzte CO₂ ermittelt. Unter den Annahmen, dass 70 % des aus dem Bitumen freigesetzten Kohlenstoffs als CO₂ freigesetzt wurde (und 30 % in Biomasse umgesetzt wurde) und das Bitumen zu 86 % aus Kohlenstoff besteht, wurde eine Abbaurrate von 0,12 mg Bitumen je cm² und Jahr ermittelt. Bei einer (nicht angegebenen und von uns unterstellten) Dichte von ca. 1 g/cm³ entspricht dies einer Bitumenabbaurrate von **0,12 µm/a**.

In [BAR 86] wird berichtet, dass am Brookhaven National Laboratory (BNL; Upton, New York, USA) Untersuchungen zum mikrobiellen Abbau von Bitumen unter **aeroben Bedingungen** durchgeführt wurden. Jeweils 4 Zylinder aus Bitumen mit einem Durchmesser von 1 cm und einer Höhe von 1 cm wurden zusammen mit verschiedenen Bodensubstraten (Wassergehalt zwischen 2,6 und 18,3 Gew.-%) oder mit einem gelartigen Nährstoffsubstrat (Agar) in einem Glasgefäß gelagert und es wurde die CO₂-Produktion gemessen. Die Glasgefäße wurden mit CO₂-freier Luft belüftet. Parallel wurden Kontrollproben mit Bodensubstrat bzw. Agar, aber ohne Bitumen, angesetzt. Die CO₂-Bildung durch Bitumenabbau wurde als Differenz der CO₂-Bildung in den jeweiligen Proben mit und ohne Bitumen berechnet. Für die in Bodenmaterial gelagerten Proben werden Abbauraten von **3,7 bis 10,5 µm/a** und ein Mittelwert von 5,5 µm/a angegeben. Für die beiden in Agar gelagerten Proben werden Abbauraten von **24 µm/a und 56 µm/a** angegeben. Aus [BAR 86] geht nicht hervor, wie lange die Versuche liefen, welche CO₂-Freisetzungen gemessen wurden und wie die Umrechnung auf eine Abbaugeschwindigkeit erfolgte. Insbesondere bleibt unklar, ob berücksichtigt wurde, dass nicht aller beim Bitumenabbau umgesetzter Kohlenstoff als CO₂ entweicht.

In [LUE 93] wird berichtet, dass am Pacific Northwest Laboratory (PNL; Richland, Washington, USA) Untersuchungen zum mikrobiellen Abbau von Bitumen unter **aeroben Bedingungen** durchgeführt wurden. Bitumen wurde erhitzt, auf den Boden eines Glasgefäßes mit einer Fläche von 38,5 cm² gegossen und mit γ-Strahlen sterilisiert. Nach Abkühlung wurden 100 g Bodenmaterial oder Nährstoffsubstrat (Agar) mit einer Bakterienkultur auf dem Bitumen ausgebracht. Der übrige Versuchsaufbau entsprach dem in [BAR 86]: Die Glasgefäße wurden mit CO₂-freier Luft belüftet und es wurden parallel Kontrollproben mit Bodensubstrat bzw. Agar, aber ohne Bitumen, angesetzt. Die CO₂-Bildung durch Bitumenabbau wurde als Differenz der CO₂-Bildung in den jeweiligen Proben mit und ohne Bitumen berechnet. Es wurden drei Versuchsreihen angesetzt:

- (a) Bitumen mit Boden bei Umgebungstemperatur (ca. 25 °C)
- (b) Bitumen mit Boden bei 35 °C
- (c) Bitumen mit Nährstofflösung und einer speziellen Bakterienkultur (ATCC 13388)

Es wurden die folgenden Umsetzungsraten ermittelt:

- | | | | |
|-----|---|------|---------------------------------------|
| (a) | 0,11 (0,09 .. 0,13) mol m ⁻² a ⁻¹ CO ₂ | bzw. | 1,6 (1,4 ... 1,9) µm/a Bitumen |
| (b) | 0,77 (0,67 .. 0,87) mol m ⁻² a ⁻¹ CO ₂ | bzw. | 11 (9,9 ... 13) µm/a Bitumen |
| (c) | 2,5 (1,9 .. 3,1) mol m ⁻² a ⁻¹ CO ₂ | bzw. | 36 (28 ... 45) µm/a Bitumen |

Bei der Umrechnung in die Abbaugeschwindigkeit wird der in die Biomasse eingebaute Kohlenstoff vernachlässigt.

In verschiedenen Unterlagen (u. a. in [JAC 14], [KOE 77], [PET 01]) wird von einer weiteren Untersuchung (in [JON 65]) berichtet, in der für Asphalt unter optimalen Wachstumsbedingungen eine Abbaurrate von 25 µm in 3 Jahren entsprechend **8 µm/a** ermittelt wurde. Diese Untersuchung liegt uns nicht vor. Da die Untersuchungen zur Abschätzung der Bitumenbeständigkeit bei der Abdeckung von Bergbaurückständen (Tailings) durchgeführt wurden, gehen wir davon aus, dass sie unter **aeroben Bedingungen** durchgeführt wurden.

Die in den verschiedenen Versuchen abgeleiteten Abbauraten sind in Tabelle 4-1 zusammengefasst. Die in [WOL 89, WOL 91A, WOL 91B] durchgeführten Versuche sind die umfanglichsten und am besten dokumentierten.

Tabelle 4-1: In verschiedenen Versuchen angeleitete Abbauraten von Bitumen in µm/a unter aeroben und anaeroben Bedingungen.

Literaturstelle	aerobe Bedingungen	anaerobe Bedingungen
[WOL 89, WOL 91A, WOL 91B]	22 – 55	0,2 – 0,5
[AIT 84] Bitumen/Sand Bitumen/NaNO ₃	0,07 – 0,25 (?) *) 6,5	
[ROF 91]	0,1 – 2,7	0 – 0,7
[AIT 91]	77 – 113	
[JAC 97] Bitumen/Salze		0,12
[BAR 86] Bitumen mit Boden Bitumen mit Nährstoffsubstrat	3,7 – 10,5 24 – 56	
[LUE 93] Bitumen mit Boden (25 °C) Bitumen mit Boden (35 °C) Bitumen mit Nährstofflösung	1,4 – 1,9 10 – 13 28 – 45	
[JON 65] Asphalt	8	

*) Angabe evtl. fehlerhaft, siehe Text.

Anmerkung:

Die Darstellung in [P 177], wonach der mikrobielle Abbau des Bitumens mit den oben angegebenen Geschwindigkeiten in das Bitumen vordringt, ist missverständlich. Die Geschwindigkeiten geben wie oben definiert den Verlust an Bitumenvolumen je m² Oberfläche an. Da sich die Mikroorganismen auf die leichter abbaubaren Teile konzentrieren, wandert die Reaktionsfront wesentlich schneller. Allerdings ist das mikrobiologisch beeinflusste Bitumen immer noch ein Bitumen, wenn auch mit einer anderen Zusammensetzung und anderen Eigenschaften.

Einschätzung

Ausgehend vom derzeitigen Kenntnisstand ist zu erwarten, dass die im Bereich der Schachtverschlussysteme des ERAM als Dichtmaterial eingebauten Bitumen bzw. Asphalte durch mikrobielle Abbauprozesse angegriffen werden. Die Auswirkungen der mikrobiellen Abbauprozesse auf die Langzeitbeständigkeit der eingebauten Bitumen bzw. Asphalte schätzen wir bei geeigneter Materialauswahl für den zugrunde gelegten Betrachtungszeitraum (30.000 Jahre) als gering ein. Diese Einschätzung beruht auf folgenden Überlegungen:

- Bitumenabbauende Mikroorganismen sind allgegenwärtig. Daher ist davon auszugehen, dass während der Verschlussarbeiten einheimische bitumenabbauende Mischkulturen von Mikroorganismen in das ERAM eingeschleppt und sich im Bereich der Verschlussysteme lebensfähige mikrobielle Lebensgemeinschaften etablieren werden.
- In der gesichteten Literatur werden in Laborversuchen unter idealen Wachstumsbedingungen Abbauraten von deutlich unter 1 $\mu\text{m/a}$ (anaerobe Bedingungen) bis ca. 100 $\mu\text{m/a}$ (aerobe Bedingungen, spezielle bitumenabbauende Bakterienstämme) berichtet. Diese Abbauraten stellen sich erst nach einer Anpassung der Mikroorganismen an die jeweiligen Bedingungen (und insbesondere an das jeweilige Bitumen) ein. Es gibt keine Hinweise, dass sich die Abbauraten im Laufe der Zeit – z. B. infolge von Mutationen – weiter erhöhen. Eher ist eine Abnahme der Raten zu verzeichnen, was wir als Folge des Abbaus der leichter abbaubaren Inhaltsstoffe ansehen (siehe z. B. Abbildung 4-2 aus [WOL 89]).

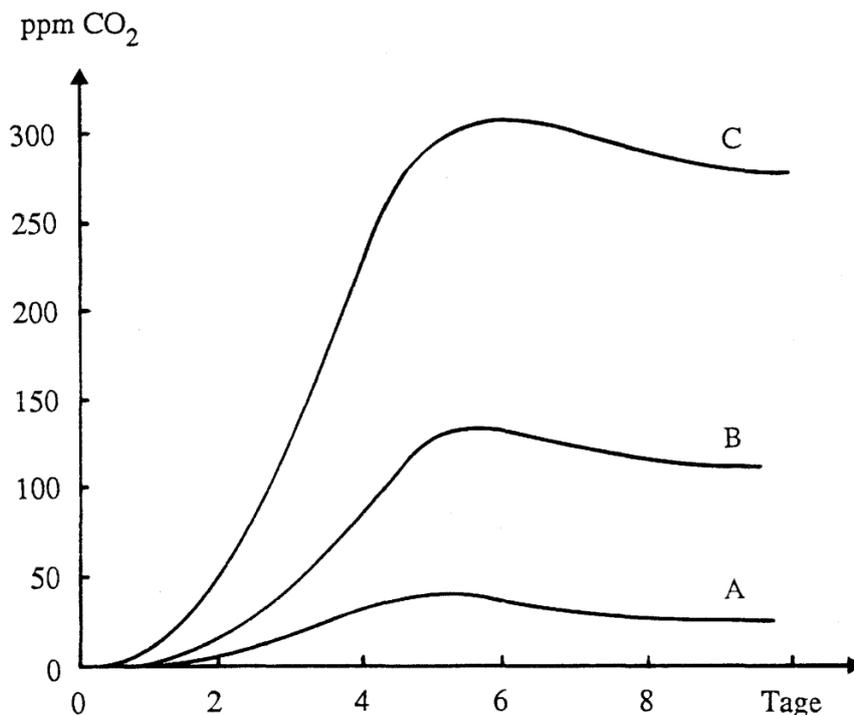


Abbildung 4-2: Zeitlicher Verlauf der mikrobiellen Aktivität bei Laborversuchen zum Abbau von Bitumen (aus [WOL 89]).

Auch die Existenz natürlicher Bitumenlagerstätten sowie die historischen Befunde (siehe Kapitel 5) sprechen gegen zunehmende Abbauraten aufgrund eines Anpassens der Mikroorganismen.

- Der Einbau der Schachtverschlussysteme erfolgt derart, dass die Bitumen- bzw. Asphaltmatrix der kombinierten Widerlager-Dichtelemente unmittelbar an das anstehende Gestein (Hutgestein/Salinar) anschließt. Dadurch werden im Bereich der Kontaktflächen zwischen Bitumenmatrix und Hohlraumwand konvektive Transportprozesse mit Wasser oder Luft und damit auch mikrobielle Abbauprozesse nahezu vollständig unterbunden. Aufgrund dieser konstruktiven Gegebenheiten sind merkliche mikrobielle Abbauprozesse jeweils nur an der oberen bzw. unteren exponierten Stirnfläche der Bitumenmatrix der Widerlager-Dichtelemente vorstellbar.

Überträgt man die unter idealen Bedingungen im Labor ermittelten maximalen Abbauraten von $\ll 1 \mu\text{m/a}$ (anaerobe Bedingungen) bzw. ca. $100 \mu\text{m/a}$ (aerobe Bedingungen, spezielle Bitumen abbauende Bakterienstämme) auf diese Stirnflächen, ergäbe sich innerhalb von 30.000 Jahren ein Abbau von $< 0,03 \text{ m}$ bzw. 3 m Bitumen. Diese Mächtigkeiten sind klein gegenüber den Längen der oberen Widerlager-Dichtelemente 2 in den Schächten Bartensleben und Marie (jeweils 47 m gemäß [P 177]). Ein einfaches Gegenüberstellen dieser Mächtigkeiten ist jedoch nicht sachgerecht:

- Oben wiesen wir darauf hin, dass die Abbaurate das Bitumenvolumen pro Fläche ausweist, das vollständig verschwindet (durch Umwandlung in CO_2 oder Einbau in die Biomasse). Das Volumen des beeinträchtigten Bitumens ist wesentlich größer und es ist unklar, in welchem Umfang es seine Eigenschaften (Unlöslichkeit gegenüber Wasser, Rissfreiheit) beibehält.
- Aufgrund von Unebenheiten durch das Schottergerüst, durch Rissbildung in der mikrobiell beeinträchtigten Zone oder durch das diffusive Eindringen von Wasser in das Bitumen (vgl. Kapitel 4.5.3) kann die tatsächlich zugängliche Bitumenoberfläche deutlich über der mit der Porosität gewichteten Oberfläche der Schachtröhre ($50 \text{ m}^2 \cdot 40 \% = 20 \text{ m}^2$) liegen.

Trotz dieser Unwägbarkeiten sehen wir es als ausgeschlossen an, dass durch anaeroben mikrobiellen Abbau ein signifikanter Teil des Widerlager-Dichtelements 2 beeinträchtigt werden kann. Hierzu sind die mikrobiellen Prozesse auch unter günstigen Milieubedingungen zu langsam. Für den aeroben Abbau kann dies auf dieser Betrachtungsebene jedoch nicht geschlossen werden.

- Im Zuge der Verschlussarbeiten werden vorhandene Wasserwegsamkeiten sowie ein Luftaustausch im Bereich der Schachtverschlussysteme weitestgehend unterbunden. Dadurch werden an den äußeren Oberflächen der Bitumen- bzw. Asphaltmatrix die Zufuhr benötigter Nährstoffe sowie der Abtransport entstehender (i. Allg. toxisch wirkender) Stoffwechselprodukte verhindert, zumindest aber stark eingeschränkt. Als Folge ist davon auszugehen, dass der Ablauf der potentiellen Abbauprozesse gegenüber den Laborversuchen, die i. d. R. auf eine optimale Nährstoffversorgung der Mikroorganismen ausgelegt waren, deutlich gehemmt sein wird. Nach unserer Einschätzung ist diese transportbedingte Limitierung der den Bitumenabbau begrenzende Faktor. Die Abschätzungen in Abschnitt 4.5.5 zur aeroben Oxidation ergaben, dass bedingt durch die Limitierung der Sauerstoffzufuhr und unter der Annahme, dass 1 g



Sauerstoff 10 cm³ Bitumen in seiner Funktion zerstören kann, nur ca. 6 m³ Bitumen entsprechend einer Schichtmächtigkeit von 0,3 m zerstört werden kann. Die gleiche Argumentation gilt auch für den aeroben mikrobiellen Abbau.

Auch wenn diese Abschätzung mit erheblichen Ungewissheiten verbunden ist, zeigt sie doch deutlich, dass für den aeroben Abbau des Bitumens in den Schachtröhren des ERAM nicht die mikrobielle Aktivität, sondern die Zufuhr von Sauerstoff (und Nährstoffen) der begrenzende Prozess ist.

5. NATÜRLICHE ANALOGA

Von manchen Autoren werden natürliche Analoga als besonders zweckdienlich für den Nachweis angesehen, dass entwickelte Modelle zur Bewertung der Sicherheit eines Endlagers die analysierten sicherheitsrelevanten Prozesse richtig beschreiben und dass die zugehörigen Parameterwerte in geeigneter Weise gewählt wurden (siehe z. B. [GRU 04]). Im Zusammenhang mit der Wahl von Bitumen bzw. Asphalt als Dichtmaterial für die geplanten Schachtverschlüsse des ERAM werden in [P 177, P 182] Vorkommen von natürlichen Bitumen (kurz: Bitumenvorkommen) als natürliche Analoga für die Nachweisführung zur Langzeitbeständigkeit dieser Dichtmaterialien herangezogen.

Ein besonders wichtiger Aspekt bei der Beurteilung der Langzeitbeständigkeit von Bitumen bzw. Asphalt sind mikrobielle Abbauprozesse. Aufgrund einer gemeinsamen Genese können auch Erdölvorkommen zumindest qualitative Hinweise geben, unter welchen Umgebungsbedingungen ein fortschreitender mikrobieller Abbau von Bitumen bzw. Asphalt stattfinden könnte. Zur Beurteilung der Langzeitbeständigkeit von Bitumen und Asphalt auf Basis natürlicher Analoga wurden daher im Rahmen dieses Berichtes neben Bitumenvorkommen auch Erdölvorkommen berücksichtigt.

Nachfolgend werden die Ergebnisse der zu natürlichen Analoga durchgeführten Literatursichtung dargestellt und hinsichtlich ihrer Verwertbarkeit für eine Nachweisführung zur Langzeitbeständigkeit der im ERAM bei der Konstruktion der Schachtverschlusssysteme verwendeten technischen Bitumen bzw. Asphalt eingeschätzt. Als wichtige Informationsquellen seien die Literaturstellen [GRU 04, FOG 10, MIL 94] genannt.

5.1. Entstehung

Hohe Drücke und Temperaturen können bewirken, dass in sedimentären Gesteinen verteilte Kerogene durch natürliche Prozesse in Erdöl und Erdgas umgewandelt werden. Das entstehende Rohöl sammelt sich im Laufe der Zeit in durchlässigeren unterirdischen Formationen, die heute als Erdölvorkommen weltweit vorhanden sind. Derartige Rohöle umfassen ein breites Spektrum, das von leichten aus niedermolekularen Kohlenwasserstoffen bestehenden bis hin zu schwereren mit höhermolekularen Kohlenwasserstoffen angereicherten Gemischen reicht.

Bestimmte Lagerstättenbedingungen (mit geeigneten Temperaturen und Infiltration meteorischer Wässer) sind förderlich für mikrobielles Wachstum. Durch entstehende mikrobielle Aktivität werden die labileren leichten Kohlenwasserstoffverbindungen allmählich verbraucht. Es bildet sich ein zunehmend viskoseres, an Harzen und Asphaltene angereichertes Restöl mit deutlich veränderten chemischen und physikalischen Eigenschaften. Im äußersten Fall entstehen als Produkte der fortschreitenden Biodegradation von Rohöl natürliche Schweröle und Bitumen bzw. Asphalt.

Einschätzung

Im ERAM werden zur Konstruktion der Schachtverschlusssysteme technische Bitumen bzw. Asphalt verwendet, die bei mehreren hundert Grad Celsius über einige Stunden aus Rohölen industriell destilliert wurden. Die Zusammensetzung technischer Bitumen bzw. Asphalt wird dabei sowohl durch die bekannte Rohölszusammensetzung als auch durch das spezielle Destillationsverfahren bestimmt und liegt damit in gut definierbaren Bereichen.

Natürliche Bitumen bzw. Asphalte entstehen zwar ebenfalls aus Rohölen, allerdings infolge unterschiedlicher geologischer Prozesse über lange Zeiten und weite Temperaturbereiche. Natürliche Bitumen bzw. Asphalte sind daher als vorläufige Endprodukte eines sehr komplexen, überwiegend unbekanntem Entstehungsprozesses mit hoch variablen Eigenschaften anzusehen.

Folglich bestehen zwischen natürlichen und technischen Bitumen bzw. Asphalten zwar Ähnlichkeiten, sie sind aber nur eingeschränkt vergleichbar. Im Zusammenhang mit der hier vorliegenden Aufgabenstellung bedeutet dies, dass natürliche Analoga lediglich Hinweise auf das mögliche Langzeitverhalten der im ERAM eingebauten technischen Bitumen bzw. Asphalte geben, nicht aber als Nachweis herangezogen werden können.

5.2. Vorkommen

Natürliche Bitumen bzw. Asphalte werden in einer Vielzahl unterschiedlicher geologischer Umgebungen gefunden. Zu den bekanntesten natürlichen Bitumenvorkommen gehören

- Asphaltseen
 - der Pitch Lake bei La Brea in Trinidad mit einer Fläche von ca. 40 ha und einer Tiefe von bis zu 75 m,
 - der Guanoco (oder auch Bermudez) Asphalt Lake im Orinoco-Gürtel bei Perdernalles in Venezuela mit einer Fläche von ca. 450 ha und einer mittleren Tiefe von ca. 2,5 m,
 - die Rancho La Brea Tar Pits, eine Ansammlung von mit natürlichen Asphalt gefüllten Gruben unterschiedlicher Größe bei Los Angeles in Kalifornien (USA),
- Imprägnationen in Kalk- und Sandstein
 - das bitumenimprägnierte Kalksteinvorkommen bei Holzeln in Deutschland,
 - die bitumenhaltigen Ölsandvorkommen bei Athabascain in Kanada sowie
- Gang- und Spaltenvorkommen
 - die mit hydrothermalen Gangfolgen assoziierten Bitumenvorkommen bei Derbyshire in England.

Bemerkenswert sind zudem die im Toten Meer schwimmenden bis zu mehrere hundert Kubikmeter großen Asphaltblöcke. Das Asphaltmaterial tritt am Meeresboden aus darunterliegenden in dieser Region häufig vorkommenden Kohlenwasserstoffreservoirs aus und steigt dann an die Meeresoberfläche auf.

Einschätzung

Natürliche Bitumen bzw. Asphalte finden sich in allen Klimazonen von den Tropen bis in den Permafrostbereich, unter ariden bis humiden Bedingungen. Qualitativ weisen die zahlreichen natürlichen Vorkommen auf die Beständigkeit von Bitumen bzw. Asphalt unter einer Vielzahl unterschiedlicher physiko-chemischer Umgebungsbedingungen hin.

Während die Geologie der Vorkommen zumeist gut dokumentiert ist, sind zur eigentlichen Zusammensetzung natürlicher Bitumen bzw. Asphalte sowie zu den unterschiedlichen in der Ver-

gangenheit und in der Gegenwart ablaufenden Alterungs- und Abbauprozessen (Zeitentwicklung, Prozessprodukte, Einflussfaktoren, Wechselwirkungen etc.) nur relativ wenige und unzureichende Informationen verfügbar. Ohne möglichst genaue derartige Informationen lassen sich aber aus natürlichen Analoga – wenn überhaupt – nur sehr eingeschränkt verwertbare und mit erheblichen Ungewissheiten behaftete Rückschlüsse auf das potentielle Langzeitverhalten technischer Bitumen bzw. Asphalte unter Endlagerbedingungen ziehen.

5.3. Veränderungsprozesse

Die vorliegenden Angaben zu natürlichen Analoga werden im Hinblick auf folgende Aspekte ausgewertet:

- Wechselwirkung von Bitumen mit salzhaltigen Wässern,
- Biodegradation von Bitumen sowie
- Langzeitbeständigkeit von Bitumen.

5.3.1. Wechselwirkung von Bitumen mit salzhaltigen Wässern

Grundsätzlich ist nicht auszuschließen, dass die in den Widerlager-Dichtelementen der Schachtverschlussysteme des ERAM eingebauten bituminösen Dichtmaterialien dauerhaft in Kontakt und somit in Wechselwirkung mit salzhaltigem Wasser (z. B. mit Salzlösung aus dem Grubengebäude oder salzhaltigem Grundwasser) kommen.

Ein sehr bekanntes natürliches Analogon, das zumindest qualitativ auf die Beständigkeit von Bitumen bzw. Asphalt bei Kontakt mit salzhaltigem Wasser schließen lässt, stellen die im Toten Meer aufschwimmenden Asphaltblöcke dar. Allerdings ist dieses Beispiel für die hier betrachtete Fragestellung wenig geeignet, da sich im ERAM die Zusammensetzung des salzhaltigen Wassers wesentlich von der im Toten Meer unterscheidet. Insbesondere herrschen im Toten Meer oxidierende Bedingungen vor, während im ERAM – zumindest langfristig – von einer reduzierenden Umgebung auszugehen ist. Zudem ist im Unterschied zum Toten Meer, in dem lediglich Cyanobakterien (Blaualgen) vorhanden sind, die ihren Energiebedarf durch Photosynthese und nicht durch Biodegradation von Bitumen decken, beim ERAM von einer Einschleppung von bitumenabbauenden Mikroorganismen auszugehen [MIL 94].

Einschätzung

Derzeit liegen u. E. keine geeigneten quantitativen Untersuchungen an natürlichen Analoga zur Langzeitbeständigkeit von Bitumen bzw. Asphalten bei Kontakt mit salinaren Wässern vor, deren Ergebnisse auf die sich im ERAM einstellenden Bedingungen übertragbar wären.

5.3.2. Biodegradation von Bitumen

Während mikrobielle Lebensgemeinschaften in erdoberflächennahen Umgebungen schon seit langer Zeit bekannt sind, wurde ihre Existenz im tieferen Untergrund – und somit unter endlagerähnlichen Bedingungen – bis vor wenigen Jahren nahezu vollständig ignoriert. Dies war hauptsächlich durch die frühere Unkenntnis der Lebensfähigkeiten von Mikroben begründet. Inzwischen wurde erkannt, dass offenbar auch in größeren Tiefen mikrobielles Leben möglich ist. Dies gilt

insbesondere für Erdöllagerstätten, bei denen mikrobielle Aktivität und der dadurch induzierte Abbau von Rohöl auch unter extremsten Umgebungsbedingungen (Temperatur, Druck, Salinität etc.) nachgewiesen wurde. Ein überzeugendes Beispiel für einen möglichen mikrobiologischen Abbau von Rohöl liefern die Ölfelder in Saskatchewan [BAI 73]. Empirisch wurde wiederholt festgestellt, dass in Erdöllagerstätten mit Temperaturen $> 80 - 90$ °C kein mikrobieller Abbau aufgetreten ist [MAG 05], hingegen wurde der größte Abbau zumeist in kühlen, flachen Reservoirs beobachtet. Auch Ölschiefervorkommen, obwohl bislang nicht konsequent untersucht, scheinen lebensfähige prokaryotische Gemeinschaften¹⁷ zu beherbergen.

Von Schwerölvorkommen (z. B. die Vorkommen in Alberta (Kanada) oder im Orinoco-Gürtel (Venezuela)) und Bitumenlagerstätten (z. B. die Ölsande in Alberta (Kanada), die Rancho La Brea Asphaltgruben (Kalifornien, USA), der Guanoco Asphaltsee (Venezuela) oder der Pitch Lake bei La Brea (Trinidad und Tobago)) wird angenommen, dass sie Rückstände der Biodegradation von Rohöl sind, bei dem die biologisch abbaubaren Substrate durch mikrobielles Wachstum weitestgehend verbraucht wurden. Daher sollte – wenn überhaupt – eine weitere Biodegradation dieser Ablagerungen nur sehr eingeschränkt stattfinden. Allerdings liegen derzeit zu wenige Untersuchungen vor, um diese Hypothese zu bestätigen. Auch wurde mittlerweile in den Rancho La Brea Asphaltgruben festgestellt, dass durch aufsteigende Schweröle und Asphalte auf natürliche Weise entstandene Asphalt-Boden-Gemische lebensfähige Prokaryoten (Bakterien und Archaeen) enthalten, die vermutlich der Grund für die Entwicklung der gegenwärtig zu beobachtenden Methanblasen sind [KIM 07].

Ein umfassender aktueller Überblick über den gegenwärtigen Kenntnisstand zu mikrobiellen Lebensgemeinschaften und damit verbundener Biodegradation von Kohlenwasserstoffen in Erdölfeldern, Schweröl- und Ölschieferlagerstätten sowie Bitumenvorkommen ist in [FOG 10] zu finden. Weiterführende Literatur ist im Literaturverzeichnis aufgeführt.

Einschätzung

In der Natur finden sich diverse Hinweise auf mikrobielle Aktivität sowohl in Bitumen- bzw. Asphaltvorkommen als auch in Erdöllagerstätten. Letztere sind insbesondere deshalb von Bedeutung, da die bestehende genetische Verbindung zwischen Rohöl und natürlichen Bitumen bzw. Asphalten ähnliche mikrobielle Abbauprozesse implizieren.

Während zur Biodegradation spezieller technischer Bitumen bzw. Asphalte quantitative Untersuchungen vorliegen (vgl. Abschnitt 4.5.6), wurden entsprechende Untersuchungen an natürlich vorkommenden Bitumen bzw. Asphalten nach derzeitigem Kenntnisstand nicht durchgeführt. Aber selbst wenn geeignete systematische Detailuntersuchungen an natürlichen Analoga vorliegen würden, wäre eine quantitative Übertragung der Ergebnisse auf Endlagerverhältnisse – insbesondere unter Berücksichtigung von Langzeitaspekten – aufgrund der stark unterschiedlichen Zusammensetzung natürlicher und technischer Bitumen bzw. Asphalte sowie aufgrund der nicht vergleichbaren Umgebungsbedingungen u. E. nur sehr eingeschränkt und mit großen Ungewissheiten behaftet möglich.

¹⁷ Prokaryoten sind zelluläre Lebewesen (z. B. Bakterien und Archaeen), die keinen Zellkern besitzen.

5.3.3. Langzeitbeständigkeit von Bitumen

Natürliches Bitumen wird vom Menschen seit mehr als 5.000 Jahren zu unterschiedlichen Zwecken genutzt [HEL 89A, KRA 93]. In Babylon beispielsweise wurde Asphalt als wasserdichter Bodenbelag, Baumaterial für Uferbefestigungen und Anlegestellen, Dichtmaterial für Wasserkanäle und als Mörtel zum Verfugen verwendet. Ebenso diente Bitumen zur Imprägnierung von Holzkisten und Körben aus Palmenblättern. Seitdem wurde Bitumen in vielfacher Weise hauptsächlich zur Abdichtung verwendet, insbesondere auch von Schiffen und Hausdächern. In fast allen Fällen, in denen bitumenbeschichtete archäologische Artefakte gefunden wurden, waren diese gut erhalten, sofern keine mechanische Zerstörung der Beschichtung stattgefunden hatte.

Ein weiterer Hinweis für die Langzeitbeständigkeit von Bitumen ergibt sich aus dessen Fähigkeit organische Materialien über lange Zeiten zu erhalten. Dies bestätigen beispielsweise die Funde von fossilen Knochen und Holz in den Rancho La Brea Asphaltgruben (Kalifornien, USA), die als eine der größten Fundstellen pleistozäner Fossilien gelten. Dies zeigt die langfristige isolierende Wirkung von Bitumen gegenüber einem Zutritt von Luft und Wasser.

Einschätzung

Die vorhandenen Beispiele für die anthropogene Verwendung als Bau- und Dichtmaterial sowie für die Konservierung organischer Materialien liefern – zumindest qualitativ – deutliche Hinweise auf die Langzeitbeständigkeit von Bitumen bzw. Asphalt über viele tausend Jahre.

5.4. Fazit

Die vorliegenden Fakten zu natürlich vorkommenden Bitumen bzw. Asphalt sowie zu archäologischen Funden deuten darauf hin, dass bituminöse Materialien unter bestimmten Umgebungsbedingungen über sehr lange Zeiten (mehrere tausend Jahre) weitestgehend stabil sind und ihre sehr guten Abdichtungs- und Isolationseigenschaften dauerhaft beibehalten. Allerdings sind diese Daten hauptsächlich qualitativer Natur und mit erheblichen Ungewissheiten behaftet. Eine Übertragung auf die im ERAM zu erwartenden Verhältnisse im Hinblick auf eine Quantifizierung der Langzeitbeständigkeit von technischen Bitumen bzw. Asphalt bei deren Einsatz als Dichtmaterial für die Schachtverschlusssysteme ist daher u. E. nur sehr eingeschränkt möglich. Hierfür sind insbesondere folgende Aspekte von Belang:

- Aufgrund ihrer unterschiedlichen Genese bzw. Herstellung sind natürliche und technische Bitumen bzw. Asphalt hinsichtlich ihrer Zusammensetzung und Eigenschaften generell nur sehr eingeschränkt vergleichbar.
- Natürliche Bitumen- bzw. Asphaltvorkommen werden im Rahmen bislang durchgeführter Studien nur unzureichend charakterisiert. Die erhobenen Daten sind für Analogiebetrachtungen in der Regel nur sehr bedingt verwendbar. Bestehende Defizite betreffen insbesondere die Zusammensetzung der Naturbitumen bzw. -asphalte, die vorherrschenden Umgebungsbedingungen sowie die unterschiedlichen Veränderungsprozesse.
- Bislang wurde das Verhalten von Bitumen unter Einwirkung der verschiedenen potentiellen Veränderungsprozesse überwiegend unter kontrollierten Bedingungen im Labor untersucht (vgl. Abschnitt 4.5). Im Rahmen der an natürlichen Vorkommen durchgeführten Analogie-

studien zur Quantifizierung der Langzeitbeständigkeit von Bitumen bzw. Asphalten wurden die verschiedenen möglichen Abbauprozesse zumeist nicht weiter differenziert, sondern als Gesamtprozess betrachtet.

Zusammenfassend ergibt sich im Ergebnis der hier durchgeführten Literaturrecherche folgende Einschätzung:

- Keines der bekannten natürlichen Bitumen- bzw. Asphaltvorkommen kann als geeignetes natürliches Analogon zur Quantifizierung der Langzeitbeständigkeit technischer Bitumen bzw. Asphalte unter den sich im ERAM einstellenden Umgebungsbedingungen angesehen werden.
- Sowohl natürliche Vorkommen als auch archäologischen Funde liefern auf Basis des derzeitigen Untersuchungsstands qualitative Hinweise für eine mögliche Langzeitbeständigkeit technischer Bitumen bzw. Asphalte unter den im ERAM zu erwartenden Umgebungsbedingungen. Ein Nachweis für deren Langzeitbeständigkeit über den für das ERAM zugrunde zulegenden Betrachtungszeitraum von 30.000 Jahren ist hingegen auf der Grundlage der vorliegenden mit erheblichen Ungewissheiten behafteten Datenbasis zu potentiellen natürlichen Analoga nicht möglich.

6. BEWERTUNG DER LANGZEITBESTÄNDIGKEIT

Grundsätzlich kann Bitumen durch die folgenden Prozesse verändert werden:

- Innere Strukturänderungen,
- Einwirkung radioaktiver Strahlung und von UV-Strahlung,
- Wasseraufnahme,
- Einwirkung chemisch reaktiver Stoffe,
- Oxidationsprozesse und
- Biodegradation.

Aus dem hohen Alter der natürlichen Bitumenvorkommen (viele Mio. Jahre) schließen wir, dass Strukturänderungen durch innere Prozesse – bei Fehlen äußerer Einwirkungen – zu keiner grundlegenden Veränderung der Bitumeneigenschaften führen (Dichtheit gegenüber Wasser, viskoses Verhalten und chemische Beständigkeit). Durch die (anfänglich stärkere) Volumenabnahme durch innere Strukturänderungen bei technischen Bitumen kann sich in den Schotter-Bitumen-Säulen im ERAM jedoch ein Bereich ausbilden, in dem der Hohlraum zwischen dem Schotter nicht mehr vollständig mit Bitumen gefüllt ist. Aufgrund der Viskosität des Bitumens und der Schwerkraft wird sich dieser Bereich in den oberen Abschnitten der Dichtelemente ausbilden. Dies führt zu einer Vergrößerung der Oberfläche des Bitumens als Angriffspunkt anderer Prozesse.

Bei dem Einsatz des Bitumens als Dichtmaterial in den Schächten Bartensleben und Marie und in dem Rollochsystem zwischen Lager B und Lager C ist eine Veränderung seiner Eigenschaften durch radioaktive Strahlung aufgrund des dort niedrigen Strahlungsniveaus ausgeschlossen. Eine Exposition gegenüber UV-Strahlung ist ebenfalls ausgeschlossen.

Die Wasseraufnahme von Bitumen ist stark limitiert. Aus der in der Literatur angegebenen Diffusionskonstante von $2 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ ergibt sich für Wasser nach 30.000 Jahren eine Eindringtiefe von 1,4 m. Die Einspannung des Bitumens in der Schachtröhre wirkt einer Volumenzunahme und damit einer Wasseraufnahme entgegen. Die Zusammensetzung natürlichen Asphalts zeigt, dass größere Wassergehalte in Bitumen grundsätzlich möglich sind. Diese scheinen die grundlegenden Eigenschaften des Bitumens (Dichtheit gegenüber Wasser, viskoses Verhalten und chemische Beständigkeit) jedoch nicht zu gefährden.

Ein chemischer Angriff durch organische Lösungsmittel u. ä. ist aufgrund der Abwesenheit dieser Stoffe im Bereich der Schächte und des Rollochs ausgeschlossen. Eine Veränderung der Eigenschaften des Bitumens durch die Einwirkung von Wasser und Salzlösungen erfolgt in überschaubaren Zeiträumen, für die Beobachtungen vorliegen, nicht. Für eine langfristige Veränderung seiner Eigenschaften durch Wasser und Salze in einem signifikanten Umfang liegen uns keine Anhaltspunkte vor, weder aufgrund theoretischer Überlegungen noch aufgrund von Beobachtungen in der Natur oder an historischen Funden.

In den vertikalen Grubenbauen des ERAM kommen als einzige Bitumen zerstörende Prozesse aerobe Oxidation und mikrobieller Abbau (aerob und anaerob) in Betracht. Die Geschwindigkeit dieser Prozesse wird durch den Umfang bzw. die Geschwindigkeit der folgenden Größen limitiert:

- Stofffluss außerhalb des Abdichtkörpers aus Bitumen (Zufluss von Sauerstoff und Nährstoffen, Abfluss von Reaktionsprodukten),
- Stofffluss innerhalb des Abdichtkörpers aus Bitumen und
- eigentlicher Bitumenabbau.

Die Abschätzungen in Abschnitt 4.5.5 zeigen, dass der Grundwasserfluss und damit der konvektive Zufluss von Sauerstoff außerhalb des Abdichtkörpers sehr gering sind. Sofern die in [P 500] und [P 501] abgeschätzten Grundwasserflüsse auch nur näherungsweise zutreffend sind, kann der konvektive Zufluss von Sauerstoff vernachlässigt werden. Der diffusive Sauerstoffzufluss dürfte sich ebenfalls als sehr gering herausstellen. Wir erwarten deshalb, dass eine aerobe Oxidation bzw. ein aerober mikrobieller Abbau in signifikantem Umfang schon aufgrund der Begrenzung des Sauerstoffflusses außerhalb des Abdichtkörpers ausscheidet. Um dies als stützendes Argument für die Langzeitbeständigkeit der Bitumenabdichtung nutzen zu können, empfehlen wir:

E1: Im Rahmen der geomechanisch-hydraulischen Nachweisführung sollte auch der konvektive und diffusive Sauerstoffzutritt zur Bitumenabdichtung abgeschätzt werden.

Die vorliegenden Angaben zum Eindringen bzw. zur Diffusion von Wasser in Bitumen legen nahe, dass bei intaktem (d. h. rissfreiem und wasserunlöslichem) Bitumen der Stofffluss innerhalb des Abdichtkörpers so stark behindert ist, dass schon aus diesem Grund ein tiefgründiger mikrobieller Bitumenabbau innerhalb des Betrachtungszeitraums von 30.000 Jahren ausgeschlossen ist. Aus der angegebenen Diffusionskonstante von $2 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ ergibt sich für Wasser nach 30.000 Jahren eine Eindringtiefe von 1,4 m. Die Anwesenheit von Wasser ist aber Voraussetzung für die Anwesenheit von Mikroorganismen und deren Nährstoffversorgung. Da jedoch ungewiss ist, ob und in welchem Umfang die wasserdurchdrungene Bitumenschicht mikrobiell angegriffen wird und ihre Diffusionseigenschaften verändert, kann dieser Wert zwar als qualitatives Argument, nicht aber als strenger Nachweis einer Begrenzung der Abbaurate gelten.

Die in Abschnitt 4.5.5 enthaltenen Angaben lassen keine quantitativen Angaben zur Geschwindigkeit des Bitumenabbaus durch aerobe Oxidation zu. Die in Abschnitt 4.5.6 ausgewerteten Untersuchungen zum mikrobiellen Bitumenabbau waren so ausgelegt, dass die Sauerstoff- bzw. Nährstoffversorgung nicht die begrenzenden Größen waren. Die abgeleiteten maximalen Abbauraten (100 $\mu\text{m}/\text{a}$ unter aeroben Bedingungen und $\ll 1 \mu\text{m}/\text{a}$ unter anaeroben Bedingungen) beschreiben das Zeitverhalten des eigentlichen mikrobiellen Bitumenabbaus (unter günstigen Bedingungen wie erhöhter Temperatur und geringen Salzkonzentrationen). Selbst unter diesen günstigen Bedingungen sind die Abbauraten unter anaeroben Bedingungen so gering, dass schon alleine aus diesem Grund eine Beeinträchtigung der Dichtelemente durch anaeroben mikrobiellen Abbau ausgeschlossen werden kann.

Wir vermuten, dass auch der aerobe mikrobielle Abbau bei einer (fiktiven) guten Sauerstoff- und Nährstoffversorgung so langsam erfolgen würde, dass er nicht zu einer signifikanten Beeinträchtigung der Dichtelemente führt. Dies sehen wir auf der Basis der vorliegenden Informationen jedoch nicht als gesichert an. Die Abschätzungen zum Sauerstofftransport zeigen jedoch, dass eine solche fiktive gute Sauerstoffversorgung nicht vorliegt.

Zusammenfassend kommen wir hinsichtlich des mikrobiellen Abbaus und der aeroben Oxidation zu den folgenden Ergebnissen:

- Aufgrund der begrenzten Anzahl der Untersuchungen zum mikrobiellen Abbau von Bitumen, der zeitlichen Limitierung dieser Versuche auf maximal 1 Jahr und den möglichen Abweichungen des im ERAM eingesetzten Bitumens von den untersuchten Bitumen ist eine Übertragung der im Labor ermittelten mikrobiellen Abbauraten auf die Verhältnisse im ERAM in ferner Zukunft mit großen Ungewissheiten verbunden.

Da die Verhältnisse im ERAM für die Aktivität der Mikroorganismen wesentlich ungünstiger als in den Laborversuchen sind, ist zu erwarten, dass der Bitumenabbau im ERAM deutlich geringer als in den Laborversuchen ist. Es liegen keine Anhaltspunkte dafür vor, dass die Abbauraten im ERAM über denen in den Laborversuchen liegen könnten.

- Der mikrobielle Abbau von Bitumen wird durch drei unabhängige Prozesse limitiert:
 - Stofffluss außerhalb des Abdichtkörpers aus Bitumen (Zufluss von Sauerstoff und Nährstoffen, Abfluss von Reaktionsprodukten),
 - Stofffluss innerhalb des Abdichtkörpers aus Bitumen und
 - dem eigentlichen Bitumenabbau.

Es ist plausibel, dass schon jeder einzelne Prozess so limitierend wirkt, dass er eine signifikante Beeinträchtigung der Dichtelemente innerhalb des Betrachtungszeitraums verhindert.

- Eine signifikante Beeinträchtigung der Dichtelemente aus Bitumen durch anaeroben mikrobiellen Abbau ist schon alleine aufgrund der geringen Geschwindigkeit dieses Prozesses ausgeschlossen.
- Eine signifikante Beeinträchtigung der Dichtelemente aus Bitumen durch aerobe Oxidation oder aeroben mikrobiellen Abbau dürfte schon alleine aufgrund der Begrenzung des Sauerstoffflusses zu den Dichtelementen hin ausgeschlossen sein. Zur Vervollständigung dieses Nachweises verweisen wir auf Empfehlung E 1.

7. LITERATUR

7.1. Antragsunterlagen

- [A 281] BUNDESAMT FÜR STRAHLENSCHUTZ
Plan zur Stilllegung des Endlagers für radioaktive Abfälle Morsleben
(einschließlich der Endlagerung bereits zwischengelagerter radioaktiver Abfälle und
noch anfallender betrieblicher radioaktiver Abfälle)
Bundesamt für Strahlenschutz, Salzgitter, 15. September 2009
- [P 177] RAUCHE, H.; SITZ, P.; LUKAS, V.
Nachweisführung zur Langzeitsicherheit, zur Tragfähigkeit und zur Gebrauchs-
tauglichkeit der Schachtverschlüsse ERA Morsleben
TU Bergakademie Freiberg / K+S Consulting / ERCOSPLAN; Erfurt, 11.11.2003
- [P 182] RAUCHE, H.; SITZ, P.; LUKAS, V.
Konzeptplanung der Schachtverschlüsse für die Schächte Bartensleben und Marie
des ERA Morsleben
TU Bergakademie Freiberg / K+S Consulting / ERCOSPLAN; Erfurt, 10.03.2004
- [P 500] STIELOW, B.
Unterlagen zur vertiefenden Nachweisführung der Schachtverfüllung bei Schacht
Marie
BfS, Salzgitter, 24.05.2011
- [P 501] WEISE, D.; SALZER, K.; POPP, T.; GÜNTHER, R.
Numerische Modellrechnungen zum Tragfähigkeits- und
Gebrauchstauglichkeitsnachweis der Schachtverfüllung für den Schacht Bartensleben
IfG Institut für Gebirgsmechanik GmbH, Leipzig, 17.11.2011

7.2. Zitierte Literatur

- [ABR 60] ABRAHAM, H.
Asphalts and Allied Substances
Van Nostrand, 1960
- [AIT 84] AIT ABDELLAH, N.; MOSE PEDERSEN B.
Microbial degradation of bitumen used for the conditioning of low and medium level
radioactive waste
In: Krischer, W.; Simon, R. (Eds.): Testing, Evaluation and Shallow Land Burial of
Low and Medium Radioactive Waste Forms, Proceedings OECD/NEA Seminar, Geel,
Belgium, 1983
- [AIT 91] AIT-LANGOMAZINO, N.; SELLIER R., JOUQUET G., TRESCINSKI M.
Microbial degradation of bitumen
Experientia 47 (1991) 533-539, Birkhäuser Verlag, Basel/Schweiz

- [BAC 84] BACHOFEN, R.; DUBACH, A. C.; TESCH, A. W.; LÜSCHER, D.
Literaturstudie über den Abbau von Bitumen durch Mikroorganismen
NAGRA Technischer Bericht 83-18, Universität Zürich, Zürich, 1984
- [BAI 73] BAILEY, N. J. L.; JOBSON, A. M.; ROGERS, M. A.
Bacterial Degradation of Crude Oil: Comparison of Field and Experimental Data
Chemical Geology, Vol. 11, 1973
- [BAR 86] BARLETTA, R.; BOWERMAN, B.; DAVIS, R.; SHEA, C.
Biodegradation Testing of Bitumen
BNL-NUREG-38999
Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, 1986
- [BEN 11] BENEDIX, R.
Bauchemie - Einführung in die Chemie für Bauingenieure und Architekten
Vieweg&Teubner, Wiesbaden 2011
- [BRO 83] BRODERSEN, K.; PEDERSEN, B.; VINTHER, A.
Comparative Study of Test Methods for Bituminized and other Low- and Medium-
Level Solidified Waste Materials
RISØ-M-2415
Risø National Laboratory, Roskilde, Dänemark, 1983
- [DVWK 96] DEUTSCHER VERBAND FÜR WASSERWIRTSCHAFT UND KULTURBAU E.V. (DVWK)
Deponieabdichtungen in Asphaltbauweise, Merkblätter 237/1996 des DVWK
- [ELE 83] ELEKTROWATT INGENIEURUNTERNEHMUNG AG
Bitumen, ein Verfestigungsmaterial für radioaktive Abfälle, und seine
historischen Analoga
NAGRA Technischer Bericht 83-11, Zürich, 1983
- [ESC 80] ESCHRICH, H.
Properties and long-term behaviour of bitumen and radioactive waste-bitumen
mixtures
SKBF/KBS TR 80-14
Eurochemic, Mol, Oktober 1980
- [EUR 86] POTTIER, P.; GLASSER, F.
Characterization of low and medium-level radioactive waste forms
EUR 10579
Commission of the European Communities, Luxemburg, 1986
- [EUR 91] BRODERSEN, K.; NILSSON, K.
Mechanisms and interaction phenomena influencing releases in a low- and medium-
level waste disposal system
EUR 13662
Commission of the European Communities, Luxemburg, 1991

- [FOG 10] FOGHT, J.
Microbial Communities in Oil Shales, Biodegraded and Heavy Oil Reservoirs, and Bitumen Deposits.
In: Timmis, K.N. (Hrsg.), Handbook of Hydrocarbon and lipid Microbiology, Springer Berlin, 2010
- [FUH 76] FUHRMANN, W.
Bitumen und Asphalt – Taschenbuch (5. Auflage)
Bauverlag GmbH Wiesbaden und Berlin, 1976
- [GEN 10] GENG M., DUAN Z.
Prediction of oxygen solubility in pure water and brines up to high temperatures and pressures
Geochimica et Cosmochimica Acta 74 (2010) 5631-5640
- [GRU 04] GRUNDFELT, B.; SMELIE, J.
Prozessorientierte Auswertung von natürlichen und anthropogenen Analoga und ihre Bewertung als vertrauensbildendes Element bei Sicherheitsbewertungen für Anlagen zur Endlagerung radioaktiver Abfälle
Kemakta AR 2004-16; Kemakta Konsult AB; Stockholm, 2004
- [HEA 03] HEAD, I. M.; JONES, D. M.; LARTER, S. R.
Biological Activity in the Deep Surface and the Origin of Heavy Oil
Nature, Vol. 426, 2003
- [HEL 89A] HELLMUTH, K-H.
Natural Analogues of Bitumen and Bituminized Radioactive Wastes
STUK-B-VALO 58
Finnish Centre for Radiation and Nuclear Safety, Helsinki, Finland, 1989
- [IAEA 86] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA)
Sealing of Underground Repositories for Radioactive Wastes
IAEA, Division of Nuclear Fuel Cycle, 1986
- [JAC 14] JACOBS, J.; LEHR J., TESTA S.
Acid Mine Drainage, Rock Drainage, and Acid Sulfate Soils
Causes, Assessment, Prediction, Prevention, and Remediation
ISBN 978-0-470-48786-0
WILEY, June 2014
- [JAC 95] JACOBS, G.
Chemische Analyse der Stoffwechselprodukte anaerober Bakterienkulturen in MIOR-Laborversuchen unter Berücksichtigung norddeutscher Lagerstättenbedingungen
Dissertation, Papierflieger, Clausthal-Zellerfeld, 1995

- [JAC 97] JACQUOT, F.; LIBERT, M.; ROMERO, M.; BESNAINOU, B.
In Vitro Evaluation of Microbial Effects on Bitumen Waste Form
in
Microbial Degradation Processes in Radioactive Waste Repository and in Nuclear Fuel
Storage Areas
NATO ASI Series 1, Vol. 11
Kluwer Academic Publishers, Niederlande, 1997
- [JON 65] JONES, T.
Effects of Bacteria and Fungi on Asphalt
Materials Protection, 1965.
- [KIM 07] KIM, J.-S.; CROWLEY, D.
Microbial Diversity in Natural Asphalts of the Rancho La Brea Tar Pits
Applied and Environmental Microbiology, Vol. 73, No. 14, 2007
- [KOE 77] KOEHMSTEDT, P.; HARTLEY, J.; DAVIS, D.
Use of Asphalt Emulsion Sealants to Contain Radon and Radium in Uranium Tailings
BNWL-2190
Battelle Pacific Northwest Laboratories, Richland, Washington, January 1977
- [KRA 90] KRAKAU, U.; KÖCKRITZ, V.; SITZ, P.
Querschnittabdichtung von untertägigen Hohlräumen und von Bohrlöchern unter
besonderer Berücksichtigung der Endlagerung radioaktiver Abfallprodukte, Teil IV:
Auswahl, Eigenschaften und Untersuchungen von Abdichtmaterialien
Neue Bergbautechnik, Vol. 20, 1990
- [KRA 91] KRAKAU, U.
Auswahl von Bitumen und Asphalt für untertägige Verwendung
Glückauf, Vol. 127, 1991
- [KRA 93] KRAKAU, U.; KÖCKRITZ, V.
Langzeitstabilität von Bitumen und Asphalten aus geologischer und historischer Sicht
Vortrag im Rahmen des Workshops „Natürliche Analoga zur Endlagerung radioaktiver
Abfälle“ am 04./05.11.1993 im Kernforschungszentrum Karlsruhe
Jessberger + Partner GmbH / TU Bergakademie Freiberg, Karlsruhe, 1993
- [LUE 93] LUEY, J.; LI, S.
Determination of the Biodegradation Rate of Asphalt for the Hanford Grout Vaults
PNL-8599
Pacific Northwest Laboratory, Richland, Washington, 1993
- [MAG 05] MAGOT, M.
Indigenous Microbial Communities in Oil Fields
In: Petroleum Microbiology, B. Ollivier and M. Magot (Eds.), ASM Press,
Washington, DC, 2005

- [MIL 94] MILLER, W.; ALEXANDER, R.; CHAPMAN, N.; MCKINLEY, I.; SMELLIE, J.
Natural Analogue Studies in the Geological Disposal of Radioactive Wastes
NAGRA Technical Report 93-03, Baden/Schweiz, 1994
- [OEL 83] OELLERS, T.
Asphalt als aktives Dichtungsmaterial für den Schachtbau
Glückauf, Vol. 119, 1983
- [PAR 11] PARTL, M. N.
Asphalt und Bitumen
Vorlesung Werkstoffe 1, ETH Zürich, 2011
- [PET 01] PETERSSON, M.; ELERT, M.,
Characterisation of Bitumenised Waste in SFR 1
SKB Rapport R-01-26
Kemakta Konsult AB, Stockholm, 2001
- [ROF 87] ROFFEY, R.; HJALMARSSON, K.; NORQVIST, A.
Microbial Degradation of Bitumen Used for Encapsulating Radioactive Waste
Final Report, FOA Rep. C 40238-4.9
National Defence Research Institute, Umeå, Sweden, 1987
- [ROF 91] ROFFEY, R.; NORQVIST, A.
Biodegradation of Bitumen used for Nuclear Waste Disposal
Experientia, Birkhäuser, Basel, 1991
- [SCH 99] SCHÖNIAN, E.
The Shell Bitumen Hydraulic Engineering Handbook
Design and Print Partnership Limited New Malden, Surrey (UK), 1999
- [SHE 03] SHELL BITUMEN
The Shell Bitumen Handbook (5. Auflage)
London, 2003
- [SNE 85] SNELLMAN, M.; VALKIAINEN, M. (HRSG.)
Long-Term Properties of Bituminized Waste Products
NKA, Espoo, 1985
- [STE XX] STEFFEN, H.
Asphaltdichtungen für AbfalldPONEN (unveröffentlicht)
ERCOSPLAN, Erfurt

- [WOL 89] WOLF, M.
Mikrobieller Abbau von Bitumen
NAGRA Technischer Bericht 89-14, Baden/Schweiz, 1989
- [WOL 91A] WOLF, M.
Microbial Degradation of Bitumen
Experientia 47 (1991) 542-548, Birkhäuser Verlag, Basel/Schweiz
- [WOL 91B] WOLF, M.
Microbial Degradation of Bitumen Matrix used in Nuclear Waste Repositories
Naturwissenschaften, Springer, 1991
- [ZEK 05] ZEKRI, A. Y.; CHAALAL, O.
Effect of Temperature on Biodegradation of Cruid Oil
Energy Sources, Vol. 27, 2005

7.3. Sonstige verwendete Literatur

- [ADK 92] ADKINS, J. P.; CORNELL, L. A.; TNNER, R. S.
Microbial Composition of Carbonate Petroleum Reservoir Fluids
Geomicrobiol Journal, Vol. 10, 1992
- [AIS 88] AISLABIE, J.; ATLAS, R. M.
Biodegradation of Nitriles in Hydrocarbon Shale Oil
Applied and Environmental Microbiology, Vol. 54, 1988
- [AIS 91] AISLABIE, J.
Biotechnology of Oil Shale
Proceedings of the Sixth Australian Workshop on Oil Shale, 1991
- [AIT 04] AITKEN, C.M.; JONES, D. M.; LARTER, S. R.
Anaerobic Hydrocarbon Biodegradation in Deep Subsurface Oil Shale Reservoirs
Nature, Vol. 431, 2004
- [BAR 07] BARMAN SKAARE, B.; WILKES, H.; VIETH, A.; REIN, E.; BARTH, T.
Alteration of Crude Oils from the Troll Area by Biodegradation: Analysis of Oil and
Water Samples
Organic Geochemistry, Vol. 38, 2007
- [BER 92] BERNARD, F. P.; CONNAN, J.; MAGOT, M.
Indigenous Microorganisms in Connate Water of many Oil Fields: A new Tool in
Exploration and Production Techniques.
In: Proceedings of the 67th Annual Technical Conference and Exhibition of the
Society of Petroleum Engineers, Washington, DC, 1992

- [BIR 04] BIRKELAND, N.-K.
The Microbial Diversity of Deep Subsurface Oil Reservoirs
Studies in Surface Science and Catalysis, Vol. 151, 2004
- [COL 04] COLLISTER, J.; EHRLICH, R.; MANGO, F.; JOHNSON, G.
Modification of the Petroleum System Concept: Origins of Alkanes and Isoprenoids in
Crude Oils
American Association of Petroleum Geologists, Bulletin 88, 2004
- [DAH 08] DAHLE, H.; GARSHOL, F.; MADSEN, M.; BIRKELAND, N.
Microbial Community Structure Analysis of Produced Water from a High-
Temperature North Sea Oil Field
Antonie van Leeuwenhoek International Journal of General and Molecular
Microbiology, Vol. 93, 2008
- [FOG 08] FOGHT, J.
Anaerobic Biodegradation of Aromatic Hydrocarbons: Pathways and Prospects
Journal of Molecular Microbiology and Biotechnology, Vol. 15, 2008
- [GIE 08] GIEG, L.; DUNCAN, K. E.; SUFLITA, J. M.
Bioenergy Production via Microbial Conversion of Residual Oil to Natural Gas
Applied and Environmental Microbiology, Vol. 74, 2008
- [GOL 92] GOLD, T.
The Deep, Hot Biosphere
Proceedings of the National Academy of Sciences USA, Vol. 89, 1992
- [GOT 88] GOTH, K.; DE LEEUW, J. W.; PÜTTMANN, W.; TEGELAAR, E. W.
Origin of Messel Oil Shale Kerogen
Nature, Vol. 336, 1988
- [GRA 05] GRABOWSKI, A.; NERCESSIAN, O.; FAYOLLE, F.; BLANCHET, D.; JEANTHON, C.
Microbial Diversity in Production Waters of a Low-Temperature Biodegraded Oil
Reservoir
FEMS Microbiology Ecology, Vol. 54, 2005
- [GRS 96] GRASSIA, G. S.; MCLEAN, K. M.; GLENAT, P.; BAULD, J.; SHEEHY, A. J.
A Systematic Survey for Thermophilic Fermentative Bacteria and Archaea in High
Temperature Petroleum Reservoirs
FEMS Microbiology Ecology, Vol. 21, 1996
- [HAR 94] HARTGERS, W. A.; SINNINGHE DAROSTE, J. S.; REQUEJO, A. G.; ALLAN, J.;
HAYES, J. M.; DE LEEUW, J. W.
Evidence for only Minor Contributions from Bacteria to Sedimentary Organic Carbon
Nature, Vol. 369, 1994

- [HEA 03] HEAD, I. M.; JONES, D. M.; LARTER, S. R.
Biological Activity in the Deep Subsurface and the Origin of Heavy Oil
Nature, Vol. 426, 2003
- [HUA 05] HUANG, H.; LARTER, S.
Biodegradation of Petroleum in Subsurface Geological Reservoirs
In: Petroleum Microbiology, B. Ollivier and M. Magot (Eds.), ASM Press,
Washington, DC, 2005
- [JON 08] JONES, D. M.; HEAD, I. M.; GRAY, N. D.; ADAMS, J. J.; ROWAN, A. K.;
AITKEN, C. M.; BENNETT, B.; HUANG, H.; BROWN, A.; BOWLER, B. F. J.;
OLDENBURG, T.; ERDMANN, M.; LARTER, S. R.
Crude-Oil Biodegradation via Methanogenesis in Subsurface Petroleum Reservoirs
Nature, Vol. 451, 2008
- [KUM 08] KUMAR, M.; LEON, V.; DE SISTO MATERANO, A.; ILZINS, O. A.; LUIS, L.
Biosurfactant Production and Hydrocarbon-Degradation by Halotolerant and
Thermotolerant Pseudomonas Sp.
World Journal of Microbiology and Biotechnology, Vol. 24, 2008
- [LAR 03] LARTER, S.; WILHELMS, A.; HEAD, I.; KOOPMANS, M.; APLIN, A.; DI PRIMIO, R.;
ZWACH, C.; ERDMANN, M.; TELNAES, N.
The Controls on the Composition of Biodegraded Oils in the Deep Subsurface - Part 1:
Biodegradation Rates in Petroleum Reservoirs
Organic Geochemistry, Vol. 34, 2003
- [LHA 95] L'HARIDON, S.; REYSENBACH, A.-L.; GLENAT, P.; PRIEUR, D.; JEANTHON, C.
Hot Subterranean Biosphere in a Continental Oil Reservoir
Nature, Vol. 377, 1995
- [MAG 00] MAGOT, M.; OLLIVIER, B.; PATEL, B. K. C.
Microbiology of Petroleum Reservoirs
Antonie van Leeuwenhoek International Journal of General and Molecular
Microbiology, Vol. 77, 2000
- [MAR 03] MARTINI, A. M.; WALTER, L. M.; KU, T. C. W.; BUDAI, J. M.; MCLINTOSH, J. C.;
SCHOELL, M.
Microbial Production and Modification of Gases in Sedimentary Basins:
A Geochemical Case Study from a Devonian Shale Gas Play, Michigan Basin
American Association of Petroleum Geologists, Bulletin 87, 2003
- [MOS 96] MOSSMAN, D. J.; NAGY, B.
Solid Bitumens: An Assessment of their Characteristics, Genesis, and Role in
Geological Processes
Terra Nova, Vol. 8, 1996

- [NUN 06] NUNAURA, T.; OIDA, H.; MASUI, N.; INAGAKI, F.; TAKAI, K.; HIRANO, S.; NEALSON, K. H.; HORIKOSHI, K.
Culture-Dependent and Independent Analyses of Subsurface Microbial Communities in Oil-Bearing Strata of the Sagara Oil Reservoir
Island Arc, Vol. 15, 2006
- [OLL 05] OLLIVIER, B.; MAGOT, M. (EDS.)
Petroleum Microbiology
ASM Press, Washington, DC, 2005
- [ORP 03] ORPHAN, V. J.; GOFFREDI, S. K.; DELONG, E. F.; BOLES, J. R.
Geochemical Influence on Diversity and Microbial Processes in High Temperature Oil Reservoirs
Geomicrobiol Journal, Vol. 20, 2003
- [ORP 00] ORPHAN, V. J.; TAYLOR, L. T.; HAFENBRADL, D.; DELONG, E. F.
Culture-Dependent and Culture-Independent Characterization of Microbial Assemblages Associated with High-Temperature Petroleum Reservoirs
Applied and Environmental Microbiology, Vol. 66, 2000
- [PET 05] PETSCH, S. T.; EDWARDS, K. J.; EGLINTON, T. I.
Microbial Transformations of Organic Matter in Black Shales and Implications for Global Biogeochemical Cycles
Palaeogeography Palaeoclimatology Palaeoecology, Vol. 219, 2005
- [PFI 91] PFISTER, R. M.; KRIEGER, E.; RIDGE, J.
Microbial Presence and Potential in Eastern Oil Shale Resources, Conservation and Recycling, Vol. 5, 1991
- [RÖL 03] RÖLING, W. F. M.; HEAD, I. M.; LARTER, S. R.
The Microbiology of Hydrocarbon Degradation in Subsurface Petroleum Reservoirs: Perspectives and Prospects
Research in Microbiology, Vol. 154, 2003
- [RUB 77] RUBINSTEIN, I.; STRAUSS, O. P.; SPYCKERELLE, C.; CRAWFORD, R. J.; WESTLAKE, D. W. S.
The Origin of the Oil Sand Bitumens of Alberta: A Chemical and a Microbiological Simulation Study
Geochimica et Cosmochimica Acta, Vol. 41, 1977
- [RUE 94] RUETER, P.; RABUS, R.; WILKES, H.; AECKERSBERG, F.; RAINEY, F. A.; JANNASCH, H. W.; WIDDEL, F.
Anaerobic Oxidation of Hydrocarbons in Crude Oil by New Types of Sulphate Reducing Bacteria
Nature, Vol. 372, 1994



- [WID 01] WIDDEL, R.; RABUS, R.
Anaerobic Biodegradation of Saturated and Aromatic Hydrocarbons
Current Opinion in Biotechnology, Vol. 12, 2001
- [WIL 01] WILHELMS, A.; LARTER, S. R.; HEAD, I.; FARRIMOND, P.; DI-PRIMIO, R.; ZWACH, C.
Biodegradation of Oil in Uplifted Basins Prevented by Deep-Burial Sterilization
Nature, Vol. 411, 2001