

# Inhaltsverzeichnis

|       |                                                                                       |           |
|-------|---------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 1     | <b>Einleitung.....</b>                                                                | <b>1</b>  |
| 2     | <b>Verwendete Programme und Datenbasis .....</b>                                      | <b>3</b>  |
| 2.1   | Stofftransportprogramm MARNIE .....                                                   | 3         |
| 2.2   | Geochemieprogramm PHREEQC.....                                                        | 6         |
| 2.3   | Schnittstelle IPhreeqc zur Kopplung von PHREEQC mit anderen<br>Rechenprogrammen ..... | 7         |
| 2.4   | Schnittstelle EQLINKPHREEQC .....                                                     | 8         |
| 2.5   | Datenbank THEREDA.....                                                                | 9         |
| 2.6   | Datenbasis .....                                                                      | 10        |
| 3     | <b>Methodik .....</b>                                                                 | <b>11</b> |
| 3.1   | PHREEQC .....                                                                         | 11        |
| 3.1.1 | Modellannahme.....                                                                    | 11        |
| 3.1.2 | Eingabe .....                                                                         | 12        |
| 3.1.3 | Initialer pH-Wert / Ladungsbilanz .....                                               | 12        |
| 3.1.4 | Berechnung der Stoffmengen .....                                                      | 13        |
| 3.1.5 | Ermittlung der Stoffmengen in der Festphase.....                                      | 15        |
| 3.1.6 | Massenbilanz .....                                                                    | 15        |
| 3.2   | Beispieldatensatz für die Kopplung MARNIE/PHREEQC .....                               | 16        |
| 3.3   | Durchführung und praktische Aspekte der Kopplung von MARNIE und<br>PHREEQC .....      | 17        |
| 3.3.1 | Allgemeines.....                                                                      | 17        |
| 3.3.2 | Konventionen .....                                                                    | 18        |
| 3.3.3 | Massenbilanz bei Zerfallsketten.....                                                  | 19        |
| 3.3.4 | Komponenten.....                                                                      | 20        |
| 3.3.5 | Eingabeerweiterung .....                                                              | 21        |
| 3.3.6 | Ablauf der Kopplung.....                                                              | 21        |

|          |                                                                                                   |           |
|----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| 3.3.7    | PCHEMIE .....                                                                                     | 22        |
| 3.3.8    | EQLINKPHREEQC .....                                                                               | 25        |
| 3.3.9    | EQPHREEQMODULE .....                                                                              | 27        |
| 3.4      | Testrechnungen .....                                                                              | 28        |
| 3.4.1    | Datenbasis .....                                                                                  | 29        |
| 3.4.2    | Betrachtete Elemente bzw. Radionuklide aus einer Zerfallskette .....                              | 29        |
| 3.4.3    | Festphasen .....                                                                                  | 31        |
| 3.4.4    | Modellannahmen für die Rechenfälle.....                                                           | 31        |
| 3.4.5    | Rechenfälle .....                                                                                 | 32        |
| 3.4.5.1  | Löslichkeiten in ruhenden Fluiden.....                                                            | 33        |
| 3.4.5.2  | Löslichkeiten unter Berücksichtigung von Transportvorgängen.....                                  | 34        |
| <b>4</b> | <b>Ergebnisse .....</b>                                                                           | <b>37</b> |
| 4.1      | Ergebnisse der Rechenfälle 1 – 4 .....                                                            | 37        |
| 4.1.1    | Rechenfall 1 .....                                                                                | 39        |
| 4.1.2    | Rechenfall 1a .....                                                                               | 44        |
| 4.1.3    | Rechenfall 2 .....                                                                                | 46        |
| 4.1.4    | Rechenfall 2a .....                                                                               | 48        |
| 4.1.5    | Rechenfall 3 .....                                                                                | 49        |
| 4.1.6    | Rechenfall 3a .....                                                                               | 51        |
| 4.1.7    | Rechenfälle 4 und 4a .....                                                                        | 52        |
| 4.2      | Ergebnisse der Rechenfälle zur Löslichkeit unter Berücksichtigung von<br>Transportvorgängen ..... | 54        |
| 4.2.1    | Transportvorgänge .....                                                                           | 54        |
| 4.2.2    | Rechenfall 5: Transport eines stabilen Elementes .....                                            | 56        |
| 4.2.3    | Rechenfall 6: Transport von Radionukliden .....                                                   | 65        |
| 4.3      | Schwierigkeiten bei den Berechnungen .....                                                        | 76        |
| 4.3.1    | Erzeugung der gesättigten Salzlösungen in den Kontrollvolumina .....                              | 76        |
| 4.3.2    | Transport gesättigter Salzlösungen in den Kontrollvolumina .....                                  | 76        |
| 4.3.3    | Ladungsausgleich .....                                                                            | 77        |
| 4.3.4    | Fluiddichte .....                                                                                 | 77        |

|       |                                                                                                              |     |
|-------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| 4.3.5 | Rechenzeit .....                                                                                             | 78  |
| 5     | Diskussion .....                                                                                             | 79  |
| 6     | Schlussfolgerungen.....                                                                                      | 81  |
| 7     | Zusammenfassung .....                                                                                        | 83  |
|       | Literaturverzeichnis .....                                                                                   | 87  |
|       | Abbildungsverzeichnis.....                                                                                   | 91  |
|       | Tabellenverzeichnis .....                                                                                    | 95  |
| A     | Anhang.....                                                                                                  | 97  |
| A.1   | Testrechnungen zum Ladungsausgleich und zur Massenbilanz.....                                                | 97  |
| A.1.1 | Ladungsausgleich und initialer pH-Wert.....                                                                  | 97  |
| A.1.2 | Vorgabe von Sauerstoff zur Simulation der Freisetzung eines<br>Elementes initial als Oxid bzw. Hydroxid..... | 99  |
| A.2   | PHREEQC-Ausgabedatensatz .....                                                                               | 101 |