

**Entwicklungen und  
Untersuchungen zu  
(T)HMC-Prozessen  
eines Endlagers für  
Wärme entwickelnde  
radioaktive Abfälle**

Synthese und  
Abschlussbericht



## Entwicklungen und Untersuchungen zu (T)HMC-Prozessen eines Endlagers für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle

Synthese und  
Abschlussbericht

Guido Bracke  
Heidemarie Fischer  
Gerd Frieling  
Christina Hansmeier  
Stephan Hotzel  
Ingo Kock  
Holger Seher  
Torben Weyand (Universität Bonn)

Oktober 2014

### **Anmerkung:**

Das diesem Bericht zugrunde liegende FE-Vorhaben 3610 R 03230 wurde im Auftrag des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) durchgeführt.

Die Verantwortung für den Inhalt dieser Veröffentlichung liegt beim Auftragnehmer.

Der Bericht gibt die Auffassung und Meinung des Auftragnehmers wieder und muss nicht mit der Meinung des Auftraggebers übereinstimmen.

## **Deskriptoren**

Endlagerung, Gasausbreitung, Geochemie, Numerische Simulation, Probabilistik, Reaktiver Transport, Sensitivitätsanalyse, THMC-Prozesse

## **Kurzfassung**

Im Vorhaben 3610 R 03230 des Bundesministeriums für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) wurden (T)HMC-Prozesse für die tiefe geologische Endlagerung radioaktiver Abfälle untersucht und numerische Methoden weiterentwickelt. Die Forschungs- und Entwicklungsschwerpunkte des Vorhabens waren Prozessanalysen und die Weiterentwicklung gekoppelter, numerischer Methoden für die Sicherheitsanalyse. Die Prozessanalysen umfassten den Transport von Lösungen und Gasen z. T. mit geochemischer Wechselwirkung in Endlager in den Wirtsgesteinen Salz und Ton unter Anwendung von Simulationsprogrammen. Die im Rahmen des Vorhabens vorgenommenen Codeentwicklungen konzentrierten sich auf die Codes TOUGH2 und MARNIE, die für Strömungs- und Stofftransportsimulationen verwendet werden.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Projektbeschreibung .....</b>	<b>1</b>
1.1	Einleitung .....	1
1.2	Ziele .....	2
1.3	Arbeiten .....	2
1.4	Dokumentation .....	4
<b>2</b>	<b>Eingesetzte Programme .....</b>	<b>7</b>
2.1	TOUGH2 .....	7
2.2	FLAC3D .....	7
2.3	TOUGH2 und FLAC3D .....	9
2.3.1	Kombination der Programme TOUGH2 und FLAC3D.....	9
2.3.2	Kopplung von TOUGH2 und FLAC3D zum Simulationstool TFC .....	10
2.4	TOUGHREACT / PetraSim .....	12
2.4.1	TOUGHREACT .....	12
2.4.2	PetraSim .....	12
2.5	MARNIE .....	14
2.6	PHREEQC .....	17
2.7	Geochemist's Workbench .....	18
2.8	SUSA .....	19
<b>3</b>	<b>Sicherheitsrelevante Einzelprozesse in der Übergangsphase .....</b>	<b>21</b>
3.1	Entwicklung eines EOS Moduls zur Lösung und Ausfällung von Salz.....	21
3.2	Umströmung von Streckenverschlüssen.....	23
3.3	Gaseindringen in unverritztes Salzgestein .....	25

<b>4</b>	<b>Ungewissheiten durch Prozesswechselwirkungen .....</b>	<b>29</b>
<b>5</b>	<b>Kopplung eines Stofftransports mit geochemischen Gleichgewichten.....</b>	<b>35</b>
<b>6</b>	<b>Weiterentwicklung und Anwendung numerischer Simulationen in der Übergangsphase .....</b>	<b>39</b>
6.1	Modellierung des Transports von CO <sub>2</sub> in hochsalinaren Lösungen eines Endlagers .....	39
6.2	Modellierung eines reaktiven Transports in Bentonit .....	44
6.2.1	Methoden .....	45
6.2.2	Ergebnisse .....	47
6.2.3	Diskussion.....	53
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung .....</b>	<b>55</b>
	<b>Literaturverzeichnis .....</b>	<b>61</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis.....</b>	<b>71</b>
	<b>Tabellenverzeichnis .....</b>	<b>73</b>

# 1 Projektbeschreibung

## 1.1 Einleitung

In Deutschland ist vorgesehen alle Arten von radioaktiven Abfällen in tiefen geologischen Formationen einzulagern, um die darin enthaltenen radio- und chemotoxischen Stoffe über lange Zeiträume von der Biosphäre zu isolieren. Die europäische Richtlinie 2011/70/EURATOM /EUR 11/ und die Sicherheitsanforderungen /BMU 10/ fordern für ein Endlager eine systematische Sicherheitsbewertung und eine Bewertung der Auswirkungen auf die Umwelt. Solche Bewertungen haben nach heutigem und internationalem Verständnis im Rahmen eines Sicherheitsnachweises, sog. „Safety Case“ zu erfolgen /IAEA 06/, /NEA 04/, /NEA 07/, der aus der Zusammenführung aller Argumente und Analysen zur Demonstration der Sicherheit des Endlagersystems und des Vertrauens in die Sicherheitsaussage besteht.

Darüber hinaus werden im Sicherheitsnachweis in umfassender, transparenter und nachvollziehbarer Weise alle Datengrundlagen, Argumente, Analysen und Einzelnachweise zusammengeführt, die in der Lage sind, Vertrauen in die Einhaltung der Sicherheitsprinzipien und Schutzziele zu schaffen.

Aufsichts- und Genehmigungsbehörden sowie ihre Sachverständigenorganisationen entwickeln deshalb durch eigene Forschungs- und Entwicklungstätigkeiten auf allen Gebieten des Sicherheitsnachweises ihre Fachkompetenz weiter und stellen ihre fachliche Unabhängigkeit sicher. Sie versetzen sich somit in die Lage sicherheitstechnische Antragsunterlagen fach- und sachgerecht zu bewerten.

Das Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz, Bau und Reaktorsicherheit (BMUB) beauftragte 2010 die Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mit Forschungs- und Entwicklungsarbeiten zu (thermo-)hydraulisch-mechanisch-chemisch gekoppelten Prozessen ((T)HMC-Prozesse) in der Übergangsphase nach Verschluss eines Endlagers für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle. Als „Übergangsphase“ wird der Zeitraum nach Verschluss des Endlagers bis zur Einstellung quasi-stationärer Verhältnisse verstanden.

## **1.2 Ziele**

Die Ziele des Vorhabens 3610 R 03230 waren:

- Vertiefung des Kenntnisstandes zu langzeitsicherheitsrelevanten Prozessen bis zur Einstellung quasi-stationärer Verhältnisse
- Untersuchung der Auswirkung bestehender Ungewissheiten zum Ablauf der Übergangsphase vor dem Hintergrund starker Prozesswechselwirkungen auf die radiologische Konsequenzenanalyse
- Kopplung numerischer Methoden zur Simulationen des Fluidtransports und geochemischer Gleichgewichtsprozesse
- Weiterentwicklung und Anwendung numerischer Methoden zur Simulationen für (thermo-)hydraulische, geomechanische und geochemische Fragestellungen
- Bewertung der Ergebnisse und der möglichen Verwendung in einem Sicherheitsnachweis für radioaktive Abfälle im Steinsalz bzw. im Tonstein

Das Vorhaben sollte die Arbeiten des Vorhabens 3610 R 03210 „Langzeitsicherheitsnachweis“ /NAV 13a/ durch die Untersuchung der (T)HMC-Prozesse bis zur Einstellung quasi-stationärer Verhältnisse und durch erweiterte Einbeziehung von geochemischen Rechentools für die numerische Simulation ergänzen und vertiefen.

## **1.3 Arbeiten**

Die Arbeiten umfassten:

- die Verfolgung und Zusammenstellung des Standes von Wissenschaft und Technik zur numerischen Simulation der Kopplung von Prozessen in tiefen geologischen Endlagern,
- die Ergänzung und Weiterentwicklung der numerischen Rechenprogramme der GRS,
- die erforderliche Recherche der Daten für die Auswahl der Prozesse sowie Parameter und -werte mit Bandbreiten, die in den numerischen Modellierungen berücksichtigt werden (z. B. Porosität-Permeabilitätsbeziehung, thermodynamische Datenbasis usw.),

- die numerische Simulation von gekoppelten (T)HMC-Prozessen,
- die Bewertung der Auswirkung von Unsicherheiten und Sensitivitäten der Kopplung von Prozessen,
- die Diskussion der Ergebnisse für den Sicherheitsnachweis und Entwicklung von Lösungsstrategien,
- die Mitarbeit in internationalen Projekten und Zusammenarbeit mit ausländischen Organisationen zur Verfolgung der zuvor genannten Einzelziele. Eine Mitarbeit erfolgte bereits im Vorhaben 3609 R 03210 in den EU-Projekten FORGE und ReCosy und sollte in FirstNuclides fortgeführt werden. Der Besuch von Tagungen, Workshops und Institutionen (MIGRATION, MRS, NEA, IAEA, WIPP, DOE, LBNL...) diente der Verfolgung von Wissenschaft und Technik (W+T) und der Bearbeitung des Vorhabens,
- die Anwendung von TOUGHREACT unter der Nutzeroberfläche PetraSim zur numerischen Modellierung von Prozessen in der Übergangsphase
- die Anwendung der Programme Geochemist's Workbench und PhreeqC zur Berechnung geochemischer Gleichgewichte.

Die numerische Simulation von einigen Prozessen (z. B. Sorption auf Basis der Dichtefunktional-Theorie) ist im Detail nach gegenwärtiger Einschätzung zwar weit fortgeschritten stellte sich aber als zu aufwendig für eine Integration in die numerische Modellierung heraus. Ebenso wurden thermische Prozesse nicht betrachtet, da entweder Abhängigkeiten nicht als relevant angesehen wurden oder die Datenbasis noch unzureichend ist.

Darüber hinaus war ein großer Aufwand zur Anpassung und Entwicklung von Codes zur Kopplung erforderlich. Die angepassten und gekoppelten Codes wurden zur numerischen Simulation von Modellen zu mögliche (T)HMC-Prozessen bei der Einlagerung von radioaktiven Abfällen in den Wirtsgesteinen Ton und Salz genutzt.

## 1.4 Dokumentation

Die Ergebnisse des Vorhabens 3610 R 03230 wurden in mehreren Veröffentlichungen und GRS-Berichten dokumentiert (Tab. 1.1). Die Ergebnisse sind in diesem Bericht nochmals kurz und zusammenfassend dargestellt.

**Tab. 1.1** Publikationen zum Vorhaben 3610 R 03230

Thema	Dokumentation
Verhalten von Spaltprodukten und Aktiniden (VeSpA)	Vortrag, GRS-Bericht /BIS 14/
“13th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere“ (MIGRATION), Peking, China, 18.-23.09.2011	Poster /BRA 11a/
Workshop ABC-Salt, Aktinidenchemie in hochkonzentrierten Salzlösungen, Karlsruhe, 7.-9.11.2011	Vortrag /BRA 11b/
Workshop „First Nuclides“, Barcelona, 8.-10.2.2012	Review des Arbeitsprogramms /JOH 12/
ABC Salt III Workshop, “Actinide and Brine Chemistry in a Salt Repository Workshop (III), April 15-17, 2013, Santa Fe NM, USA	Vortrag /BRA 13a/ und Poster /BRA 13b/
Goldschmidt-Konferenz, 26.8.-30.8.2013, Florenz	Poster /HAN 13b/
“14th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere“ (MIGRATION), Brighton, England, 9.-13.09.2013	Vortrag /BRA 13c/ und Poster /HAN 13a/, /SEH 13/
Das EOS-Modul SALTREP für den Code TOUGH2-GRS	GRS-Bericht /NAV 14/
Exemplarische Untersuchung gekoppelter Prozesse am Beispiel des Gaseindringens in unverritztes Steinsalz	GRS-Bericht /HOT 14a/
Kurzbeschreibung von PetraSim5 mit TOUGHREACT1.2 und Modellaufbau	GRS-Bericht /HAN 14c/
Modellierung der Eisenkorrosion und der Wechselwirkung mit Bentonit	GRS-Bericht /HAN 14b/, Paper /HAN 14a/
TOUGH2 Modellierungen - Prä- und Postprozessing	GRS-Bericht /FRI 13/
TOUGH2 - Modellrechnungen zum Umströmungsverhalten von Streckenverschlüssen in einem salinaren Endlager	GRS-Bericht /FRI 14/

Thema	Dokumentation
Untersuchungen zur Kopplung des Transportprogrammes MARNIE mit dem geochemischen Rechencode PHREEQC	GRS-Bericht /FIH 14/
Probabilistische Analysen zum Zweiphasenfluss in einem salinaren Endlager	GRS-Bericht /KOC 14/
Modellierung des Transports von CO <sub>2</sub> in hochsalinaren Lösungen eines Endlagers mit PHREEQC	Masterarbeit /WEY 13/, GRS-Bericht /WEY 14/
Symposium, "The Safety Case for Deep Geological Disposal of Radioactive Waste: 2013 State of the Art" (2nd International Safety Case Symposium), 7.-9.10.2013, Paris, France	Vortrag und Paper /BRA 13d/
Gekoppelte (T)HMC-Prozesse eines Endlagers für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle in der Übergangsphase – Synthese und Abschlussbericht	GRS-Bericht /BRA 14/

Einen direkten Eingang fanden Ergebnisse in das Vorhaben UM10 A 03200 „Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben“ (VSG), das zeitgleich zum vorliegenden Vorhaben bearbeitet wurde. Gleichzeitig entstanden daraus wichtige Impulse für die Bearbeitung der Fragestellungen.



## 2 Eingesetzte Programme

### 2.1 TOUGH2

Die GRS simuliert Zweiphasenströmungen in porösen Medien mit dem Programm TOUGH2 (**T**ransport of **U**nsaturated **G**roundwater and **H**eat). TOUGH2 wurde am Lawrence Berkeley Laboratory in den USA entwickelt /PRU 99/. Mit TOUGH2 kann der Wärmetransport, der Multikomponentenfluss und mehrphasige Fluide in ein-, zwei- und dreidimensionalen, anisotropen, porösen und klüftigen Materialien simuliert werden. In TOUGH2 werden die Massenerhaltungssätze für alle zu transportierenden Komponenten gekoppelt und implizit gelöst /PRU 99/. Die aktuelle Programmversion 2.0 berechnet Lösungs- und Ausfällungseffekte, mehrphasige Diffusion, Dispersion und thermische Effekte. Um die Modellierung zusätzlicher Komponenten und Phasen realisieren zu können, kann das TOUGH2 Kernprogramm mit unterschiedlichen Modulen verknüpft werden. Diese Module werden EOS-Module (**E**quation of **S**tate) genannt.

Um Prozesse, wie Gaseindringen und weitere Wechselwirkungen zwischen der flüssigen und gasförmigen Phase im porösen Medium zu simulieren, wird zweiphasig gerechnet. Für die Modellierung der zweiphasigen Strömungsprozesse benötigt TOUGH2 Parameterwerte z. B. relative Permeabilitäten und Kapillardrücke. Für die Berechnung dieser Werte stellt TOUGH2 eine Reihe von Funktionen zur Verfügung. Für die nachfolgend beschriebenen Modellierungen wurden die relativen Permeabilitäten mit der Corey-Funktion berechnet /COR 54/, /PRU 99/. Die Kapillardrücke wurden mit dem Van-Genuchten-Ansatz berechnet /GEN 80/, /PRU 99/. Eine detaillierte Beschreibung der Parameter und Funktionen befindet sich im TOUGH2 Handbuch /PRU 99/ und in den Berichten /FRI 13/, /NAV 13b/.

### 2.2 FLAC3D

FLAC3D (**F**ast **L**agrangian **A**nalysis of **C**ontinua in **3** **D**imensions) ist ein kommerzielles Finite Differenzen-Programm, das von der Fa. Itasca Consulting Group entwickelt und vertrieben wird /ITA 09/. FLAC3D wird zur Berechnung von ingenieurs- und besonders geotechnischen Fragestellungen der Mechanik genutzt.

Die elastische und plastische Deformation kann in FLAC3D für viele Materialien (Böden, Gesteine, ...) nach verschiedenen Gesetzmäßigkeiten simuliert werden. Die

Grundversion kann z. B. hydraulische und mechanische Gesetzmäßigkeiten kombinieren. Für komplexere Fragestellungen sind Zusatzmodule verfügbar.

Die GRS verwendet zurzeit die Basisversion mit den Zusatzmodulen für Temperatur, Kriechen und C++. Dies ermöglicht thermo-hydro-mechanische Prozesse für verschiedene Endlagerbedingungen zu modellieren, d. h. für alle Wirtsgesteine (Tonstein, Steinsalz und Hartgestein). Zusätzlich ist es möglich den Code mit selbstentwickelten C++ Funktionen oder mittels einer Programmiersprache in FLAC3D (FISH) zu erweitern.

Die GRS hat eine ausführliche, sorgfältig gewartete Bibliothek von Funktionen und Zusatzmodulen, die in den Programmiersprachen FISH, Perl, Python oder C++ für FLAC3D geschrieben sind. Die Möglichkeit auf einfache Weise den FLAC3D-Code auszuweiten, zu ändern oder zu entwickeln wurde genutzt um FLAC3D mit dem Mehrphasen-Transportprogramm TOUGH2 zu koppeln. Das Zusatzmodul C++ erlaubt es der GRS neue veröffentlichte und begutachtete Codes sowie selbstentwickelte oder modifizierte Zusammenhänge zu nutzen. Zusätzlich kann FLAC3D als Prä- und Postprozessor genutzt werden, um die Ergebnisse der Modellierungen mit TOUGH2 zu visualisieren (Abb. 2.1).

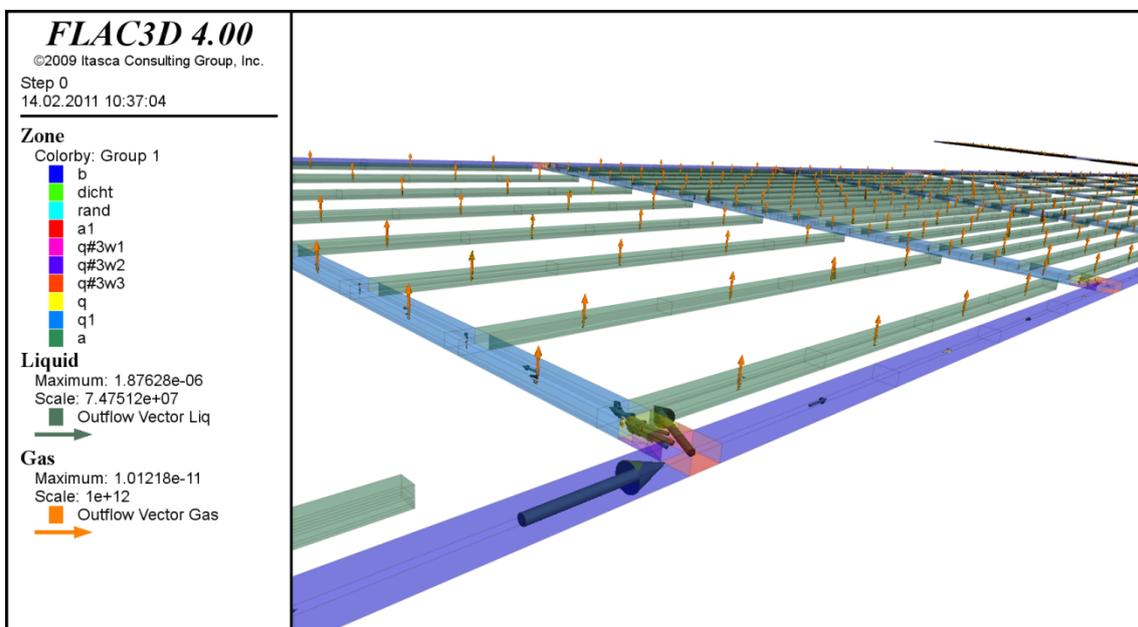


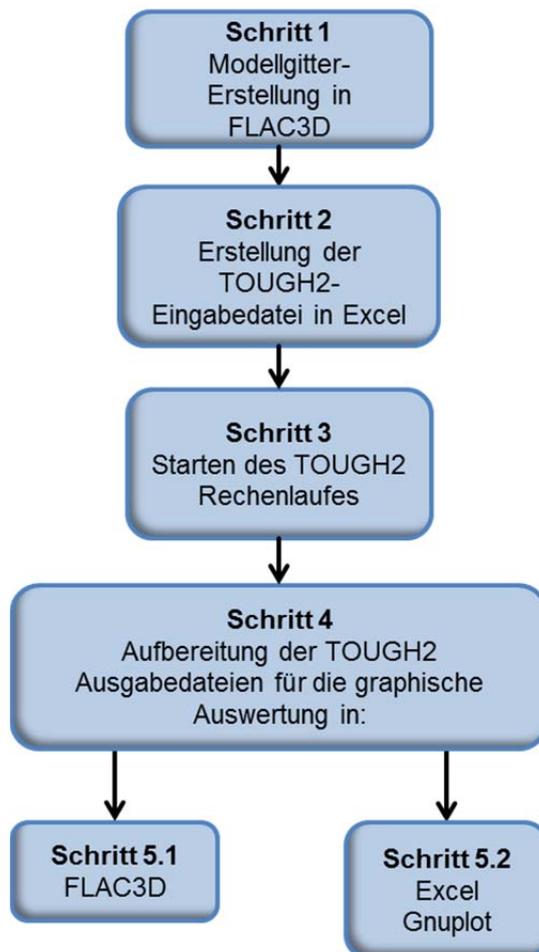
Abb. 2.1 Visualisierung mit FLAC3D

## 2.3 TOUGH2 und FLAC3D

### 2.3.1 Kombination der Programme TOUGH2 und FLAC3D

/FRI 13/ beschreibt die Vorbereitung einer TOUGH2-Rechnung in der GRS. Eine TOUGH2-Eingabedatei definiert die Anfangs- und Randbedingungen der einzelnen Materialien und die Abmessungen des Modellgitters. TOUGH2 stellt für einfache Modellgitter einen Gittergenerator bereit. Räumlich komplexer aufgelöste Modellgitter, die für Modellierungen in der GRS benötigt werden, können mit FLAC3D erstellt werden.

Eine TOUGH2-Modellierung erfolgt in mehreren Arbeitsschritten, die in Abb. 2.2 schematisch dargestellt sind.



**Abb. 2.2** Schematische Abbildung des Workflows eines TOUGH2-Rechenlaufes und dessen Auswertung in der GRS

Die komplexe Modellgeometrie wird mit FLAC3D erstellt (Schritt 1). Anschließend werden die benötigten Parameter und Werte in Excel-Arbeitsblätter übernommen und mit einem Excel-Makro zusammen mit den Daten des Modellgitters in eine Eingabedatei für TOUGH2 umgewandelt (Schritt 2).

Während eines TOUGH2-Rechenlaufes können Rechenergebnisse und Zeitschrittweiten abgerufen und graphisch dargestellt werden (Schritt 3). Der Rechenlauf kann so zeitnah auf seine Plausibilität geprüft werden.

TOUGH2 stellt keine Möglichkeiten zur graphischen Auswertung der Rechenergebnisse zur Verfügung. Die Visualisierung der Rechenergebnisse ist aber erforderlich. Die Rechenergebnisse liegen in ASCII-Dateien vor und werden zum Einlesen für eine Visualisierung aufbereitet bzw. umgewandelt (Schritt 4). Die Visualisierung der Rechenergebnisse kann in FLAC3D (Schritt 5.1) oder in Plot-Programmen, wie z. B. Gnuplot (Schritt 5.2), erfolgen.

### **2.3.2 Kopplung von TOUGH2 und FLAC3D zum Simulationstool TFC**

Zum Simulationstool TFC (TOUGH2-FLAC3D-Coupling) gehören im weiteren Sinne die zuvor genannten Standard-Programme TOUGH2 /PRU 99/ und FLAC3D /ITA 09/ sowie alle zusätzlichen Steuerungsdateien und Programmcode-Teile, die zur Durchführung eines TFC-Rechenlaufs erforderlich sind. Im engeren Sinne bezeichnet TFC das Werkzeug, das die eigentliche Kopplung von TOUGH2 und FLAC3D bewerkstelligt, und zwar sowohl in programmtechnischer Hinsicht – die Logistik der Programmaufrufe – als auch in modelltechnischer Hinsicht – die Verknüpfung der hydrodynamischen (genauer: fluiddynamischen) mit den mechanischen Prozessen.

Die Funktionsweise von TFC wird im Folgenden kurz vorgestellt und TFC in modelltechnischer Hinsicht beschrieben. Eine ausführlichere Beschreibung von TFC gibt /HOT 14b/.

TFC koppelt TOUGH2 und FLAC3D sequentiell, d. h. in jedem Zeitschritt werden die thermo-hydrodynamischen (TH) Gleichungen und die mechanischen (M) Gleichungen nacheinander gelöst. Jeder komplette Zeitschritt besteht demnach aus einem TH-Zeitschritt und einem anschließenden M-Zeitschritt, wobei die in der TH-Rechnung ermittelten neuen Parameter in dieser M-Rechnung bereits berücksichtigt werden, so-

weit sie für diese eine Rolle spielen (sog. „TH→M-Kopplung“, s. u.). Die in der M-Rechnung ermittelten neuen Parameter, die in den hydrodynamischen Rechnungen eine Rolle spielen, werden in der folgenden TH-Rechnung, d. h. im nächsten Zeitschritt berücksichtigt (sog. „M→H-Kopplung“).

Da hier thermische Prozesse nicht betrachtet werden, d. h. der TOUGH2-Programmteil in isothermer Konfiguration genutzt wird und die TH-Rechnungen tatsächlich rein hydrodynamische Rechnungen sind, wird auch die TH→M-Kopplung zu einer tatsächlichen H→M-Kopplung.

Durch diese sequentielle Programmabfolge und Abarbeitung von jeweils bestimmten physikalischen<sup>1</sup> Prozessen wird die eigentlich integrale HM-Kopplung in eine H→M und eine M→H-Kopplung aufgespaltet. Dabei bezeichnet „H→M-Kopplung“ die Art und Weise, in welcher die in dem TH-Zeitschritt isotherm berechneten Änderungen von hydrodynamischen Parametern die mechanische Rechnung beeinflussen. Entsprechend bezeichnet „M→H-Kopplung“ die Art und Weise, in welcher die in der M-Rechnung ermittelten Änderungen von mechanischen Parametern die (nächstfolgende) hydrodynamische Rechnung beeinflussen.

Die M→H-Kopplung wird nicht als M→“T“H-Kopplung bezeichnet, weil davon ausgegangen wird, dass mechanische Spannungs- und Dehnungsänderungen auf die Temperatur direkt einen vernachlässigbaren Einfluss haben. Die M→H-Kopplung stellt vielmehr den Einfluss der geänderten mechanischen Parameter auf die hydrodynamischen Parameter dar. Lediglich mittelbar können die mechanischen Parameter, über die beeinflussten hydrodynamischen Parameter, in der nachfolgenden TH-Rechnung auch die thermischen Parameter beeinflussen. Dieser Effekt soll mit dem Begriff „M→H-Kopplung“ aber nicht thematisiert werden. In der umgekehrten Kopplungsrichtung, TH→M, können hingegen tatsächlich thermische und hydrodynamische Parameter getrennt und unabhängig voneinander direkten Einfluss auf die mechanischen Größen haben allerdings wird Wärmetransport in den hier durchgeführten TFC-Rechnungen nicht betrachtet.

---

<sup>1</sup> Mittelbar werden von TOUGH2 auch vereinzelte chemische Effekte abgebildet (z. B. Löslichkeiten gemäß Henry-Gesetz, ggf. Ausfällung, Sorption, Metallkorrosion)

## **2.4 TOUGHREACT / PetraSim**

### **2.4.1 TOUGHREACT**

TOUGHREACT wird seit 1998 entwickelt /XU 06/. Das Programm ist ein um geochemische Prozesse erweiterter, numerischer Simulator für den multiphasigen Fluid- und Wärmetransport von TOUGH2. Es können ein-, zwei- und dreidimensionale Modelle mit physikalischen und chemischen Heterogenitäten erstellt werden. Druck und Temperatur können abhängig von der gewählten thermodynamischen Datenbasis durch die EOS-Module berechnet werden. Die in TOUGHREACT enthaltene thermodynamische Datenbasis kann je nach Problemstellung ergänzt oder ausgetauscht werden.

TOUGHREACT kann geochemische Prozesse in flüssiger, gasförmiger oder fester Phase simulieren. Dazu zählen aquatische Komplexbildung, Gaslösung und Ausgasung, Minerallösung und -ausfällung sowie Kationenaustausch. Die Minerallösung und -ausfällung wird unter lokalen Gleichgewichtsbedingungen ggfs. unter Berücksichtigung der Kinetik berechnet. Mit der Minerallösung und -ausfällung sind Änderungen der Porosität, Permeabilität und Kapillardruck verbunden. Auch können Adsorption und radioaktiver Zerfall eingebunden werden. Das Programm kann mit Ionenstärken von verdünntem bis moderat salinarem Wasser (je nach System mit Ionenstärken bis zu 2 – 4 molar) umgehen.

Ebenso wie TOUGH wurde auch TOUGHREACT in FORTRAN 77 mit einigen Erweiterungen in FORTRAN-90 geschrieben. TOUGHREACT ist in den Versionen 1.2, 2.0 und 3.0 erschienen.

Die seit kurzem aktuell freigegebene Version ist TOUGHREACT V3.0-OMP, die auch Berechnungen auf Parallelrechnern ermöglicht /XU 14/.

### **2.4.2 PetraSim**

PetraSim ist eine graphische Benutzeroberfläche für die TOUGH-Codes. Sie wird von der Firma „Thunderhead Engineering“ entwickelt und von der Firma „RockWare“ vertrieben ([www.rockware.com](http://www.rockware.com)). Es lassen sich dreidimensionale Modellgitter erstellen und die Parameter für eine Simulation eingeben. Die Ergebnisse lassen sich sowohl im dreidimensionalen Modellgitter visualisieren als auch als Diagramme ausgeben.

PetraSim wurde in der Version 5.2.0611 mit TOUGHREACT1.2 genutzt. TOUGHREACT2.0 stand zum Zeitpunkt der Lizenzbeschaffung von PetraSim nicht zur Verfügung. Aktuell ist PetraSim mit TOUGHREACT2.0 verfügbar. Für die nähere Zukunft ist ein Upgrade von PetraSim mit TOUGHREACT V3.0-OMP angekündigt.

Für die Simulation wird ein konzeptionelles Modell in ein Modellgitter umgesetzt. Das konzeptionelle Modell beschreibt alle Eigenschaften, wie die Modellgrenzen, geologische Schichten, interne Grenzen und Regionen. Im Modellgitter werden durch Festlegung der Zelldimensionen und deren Verbindungen das konzeptionelle Modell abgebildet. Ergebnisse der Simulationen lassen sich entweder als 3D-Modell im separaten Ergebnisfenster anzeigen oder als Diagramm in Abhängigkeit von der Zeit oder der Distanz zu einem bestimmten Punkt des Modells.

Die Anzahl an Zellen, Verbindungen und Komponenten bestimmt den Umfang einer Simulation. Die maximale Anzahl der Gitterzellen beträgt 8 000 (Basis TOUGHREACT1.2). Die maximale Anzahl der Verbindungen zwischen den Zellen beträgt 20 000 (Basis TOUGHREACT1.2). Die maximale Anzahl der geochemischen Komponenten liegt bei 20 primären Komponenten, 70 sekundären Komponenten, 32 Mineralen, 5 Gasen und maximal 5 austauschbaren Kationen. Die maximale Anzahl ist in den nachfolgenden Versionen erhöht worden.

Ein typischer Ablauf einer Analyse eines konzeptionellen Modells mit PetraSim umfasst (siehe /HAN 14c/):

1. Auswählen eines EOS-Moduls und Festlegen der Modellgrenzen
2. Erstellen eines Modellgitters
3. Auswählen der Randbedingungen für die Analyse
4. Festlegen der Materialeigenschaften
5. Auswählen der Anfangsbedingungen (direkt oder durch Laden von vorherigen Ergebnissen)
6. Festlegung der Zelleigenschaften

## 7. Verwendung von TOUGHREACT unter Auswahl der

- Einstellungen
- Datenausgabe
- Anfangsbedingungen
- Thermodynamische Datenbasis
- chemischen Komponenten, Minerale und Gase
- chemischen Zonen
- Zuordnung der Zonen

## 8. Simulation

## 9. Visualisierung, graphische Auswertung

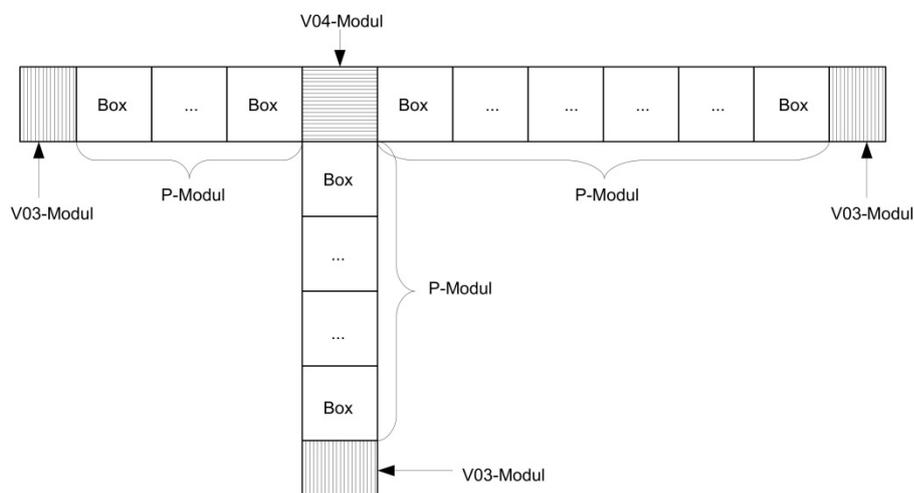
### 2.5 MARNIE

Das Programm **MARNIE** (**M**odell zur **A**usbreitung von **R**adio**N**ukliden **I**m **E**ndlager-**B**ergwerk) wurde zur Simulation der komplexen Stofftransportprozesse in einem lösungsgefüllten Endlager in einer Salzformation von der GRS entwickelt. Es ist in /MAR 02/ ausführlich beschrieben. MARNIE ermöglicht die Berechnung des lösungsgetragenen Stofftransportes unter Berücksichtigung relevanter Phänomene für eine unbegrenzte Anzahl von Stoffkomponenten (z. B. Salz, Elemente), im Folgenden kurz Komponenten genannt. Dies können auch Radionuklide sein, wobei die Radionuklide zu einer beliebigen Anzahl von Zerfallsketten gehören können.

Das Programm wurde so konzipiert, dass alle für den Lösungstransport relevanten Prozesse in einem salinaren Endlagerbergwerk simuliert werden können. Hierzu gehören z. B. advektiver, dispersiver und diffusiver Transport von Lösung und Komponenten, Konvergenz der Hohlraumvolumina, Kompaktion des Versatzes, radioaktiver Zerfall der Nuklide, Versagen der Behälter, Freisetzung der Komponenten aus den Behältern und aus der Abfallmatrix, Löslichkeitsbegrenzung und Ausfällung der Komponenten in bzw. aus der Lösung, Sorption und Desorption von Komponenten am Feststoff und Temperatureinflüsse auf den Stofftransport.

MARNIE ist ein eindimensionales, gekoppeltes, instationäres Netzwerkprogramm. Die Transportprozesse werden in sogenannten P-Modulen (Abb. 2.3) berechnet, die je nach Zuweisung der physiko-chemischen Parameter als Modelle für Strecken mit oder ohne Strömungsbarrieren, Einlagerungskammern, Bohrlöcher, Schächte, Hohlräume, Dämme, Verschlüsse und Stopfen fungieren. Als Randbedingungen können Druck oder Massenstrom vorgegeben und Komponenten eingespeist werden. Mit Hilfe dieser Randbedingungen werden die Ein- und Ausstrompfade aus dem Endlager, die an beliebigen Orten und in beliebiger Anzahl vorgegeben werden können, definiert.

Zur Modellierung der eindimensionalen Netzwerkstruktur wird das Endlager in eine Anzahl von Transport- und Verknüpfungsmodulen zerlegt, wobei Transportmodule (P-Module) der Simulation eindimensionaler Transportvorgänge dienen, während Verknüpfungsmodule (V-Module) zur Vorgabe zeitabhängiger Randwerte (V03-Module) für die angrenzenden Transportmodule und zur Modellierung der Kopplung und der Vermischungsvorgänge (V04-Module) an den Knotenpunkten angrenzender P-Module verwendet werden. Die P-Module werden in eine Anzahl von Kontrollvolumina, im Folgenden Boxen genannt, diskretisiert. Zur Verdeutlichung wird die Anordnung dieser Netzwerkelemente in Abb. 2.3 gezeigt.



**Abb. 2.3** Elemente des Netzwerkes in MARNIE /MAR 02/

Zur numerischen Lösung der Transportgleichungen für skalare Größen wird in MARNIE das „Finite-Volumen-Verfahren“ verwendet, d. h. die skalaren Größen werden den Boxmittelpunkten zugeordnet, während die Vektorgrößen auf der Berandungsfläche eines finiten Volumens mit Hilfe des „Finite-Differenzen-Verfahrens“ gelöst werden.

Es werden folgende Gleichungen gelöst:

- die Kontinuitätsgleichung für das Gesamtfluid, bestehend aus Lösung und gelösten Komponenten, zur Berechnung des Druckes
- die Impulsgleichung zur Ermittlung des Gesamtfluidstromes
- die Bilanzgleichung zur Berechnung der Konzentrationen der gelösten Komponenten

MARNIE wurde seit Ende der 1980-er Jahre entwickelt und seit dieser Zeit umfangreichen Tests unterzogen, die sich sowohl auf den Vergleich mit analytischen Lösungen, der Definition komplexer Testfälle mit umfangreichen Überprüfungen bzw. Plausibilitätskontrollen als auch der Durchführung von Benchmark-Rechnungen mit ähnlichen Rechenprogrammen beziehen /BOE 00/. Zusätzlich wurde das Programm in einigen internationalen und nationalen Projekten wie den EU-Projekten EVEREST /CAD 96/ und SPA /BAU 00/, /GOM 97/ sowie für das ERAM /MAR 97/ eingesetzt. In den EVEREST- und SPA-Projekten wurden umfangreiche deterministische und probabilistische Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen zur Langzeitsicherheit eines Endlagers im Salinar durchgeführt. Im EVEREST-Projekt fanden außerdem zwischen GRS-Köln, NRG und GRS-Braunschweig Vergleichsrechnungen ausgewählter und abgestimmter Rechenfälle mit den Programmen MARNIE, der NRG-Version des Programmsystems EMOS und der EMOS-Version der GRS-Braunschweig statt. Ferner wurden zur Verifikation von EMOS und MARNIE Testfälle definiert und die mit beiden Programmen erzielten Ergebnisse verglichen /LAM 97/. Mit MARNIE erfolgten außerdem Vergleichsrechnungen zu dem Programm SPRING /DEL 10/. In allen Fällen war die Übereinstimmung gut.

Weiterhin kam MARNIE für Berechnungen im Rahmen der Beratertätigkeit der GRS für das Niedersächsische Umweltministerium für die ASSE zur Anwendung und wurde zu Vergleichsrechnungen mit den Programmen des Antragstellers herangezogen. Hier wurde ein Modell für das gesamte Grubengebäude der ASSE einschließlich eines Teils des Deckgebirges erstellt. Es erfolgten eigene Berechnungen sowie Vergleichsrechnungen mit dem Programm TOUGH2. Rechnungen des Antragstellers mit den Programmsystemen EMOS und KAFKA wurden nachvollzogen. Auch hier ergab sich in allen Fällen eine gute Übereinstimmung.

MARNIE wurde im Rahmen des Arbeitspaketes 10 „Radiologische Konsequenzenanalyse“ des Projektes UM10 A 03200 „Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben (VSG)“ erfolgreich für die Berechnung des lösungsgetragenen Stofftransportes eingesetzt /LAR 13/.

## **2.6 PHREEQC**

PHREEQC /PAR 99/, /PAR 13/ ist ein in der Programmiersprache C++ geschriebenes Computerprogramm für thermodynamische Gleichgewichtsberechnungen. Es basiert auf einem aquatischen Ionen-Assoziationsmodell und modelliert:

1. Speziation und Sättigungsindex,
2. Batch-Reaktionen und eindimensionalen (1D) Stofftransport unter Berücksichtigung von reversiblen (z. B. Solid-Solution, Oberflächenkomplexierung) und irreversiblen (z. B. Mischung von Lösungen, kinetisch kontrollierte Reaktionen, Temperaturänderungen) Reaktionen und
3. Ermöglicht inverse Modellierungen.

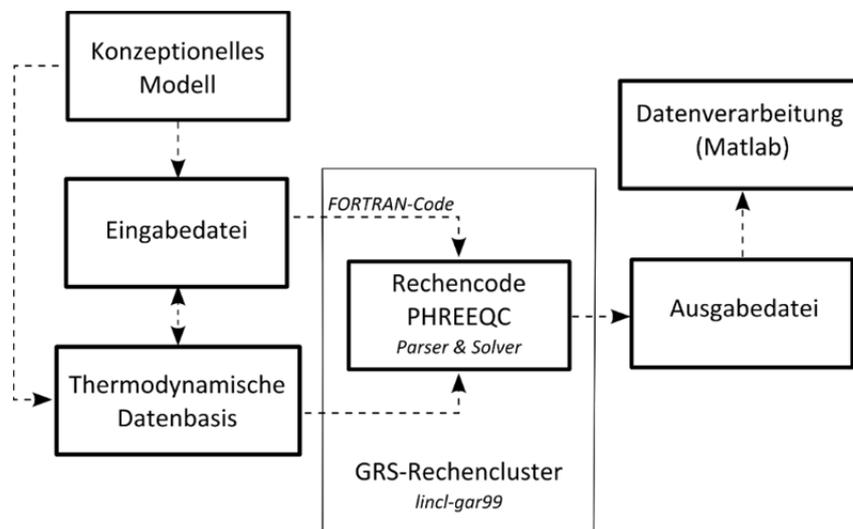
Die Berechnungen in PHREEQC nutzen die thermodynamischen Gleichgewichtskonstanten, die mit der Reaktionsgleichung in einer entsprechenden Syntax eingegeben werden. Über Eingabeblocke, die durch Keywords abgegrenzt werden, können theoretisch beliebige Lösungszusammensetzungen, Gasphasen, Festphasen und Oberflächenkomplexe vorgegeben werden. Vollständige und konsistente Datensätze sind notwendig, um ein thermodynamisches Gleichgewicht iterativ berechnen zu können.

Mit PHREEQC können auch Reaktionen mit einer Gasphase, die zusätzlich zur Lösung im Kontrollvolumen vorhanden ist, berechnet werden. Dazu wird angenommen, dass die Lösung entweder im Gleichgewicht mit einem konstanten Gasdruck oder einem vorgegebenen Gasvolumen steht /PAR 13/.

Der geochemische Reencode ist in vier Kompartimente gegliedert: Eingabedatei, thermodynamische Datenbasis, numerisches Lösungsverfahren und Ausgabedatei (Abb. 2.4 Kompartimente in PHREEQC und von GRS genützte Interaktionen

). Ausgehend von einem konzeptionellen Modell inkl. der thermodynamischen Datenbasis wird die Eingabedatei für PHREEQC erstellt. Der Reencode wurde mit einem FORTRAN-Code verknüpft, um die Berechnungen mithilfe des GRS-Rechenclusters zu beschleunigen.

Einige Ergebnisse der Berechnungen mit PHREEQC (siehe Kap. 6.1) wurden im **post-processing** mit MATLAB dargestellt /MAT 05/.



**Abb. 2.4** Kompartimente in PHREEQC und von GRS genützte Interaktionen

PHREEQC (Version 3.0.4-7711 und ff.) ist frei verfügbar und liegt zum Download sowohl in einer PC- als auch in einer Linux-Version vor /PAR 99/, /PAR 13/.

## 2.7 Geochemist's Workbench

Geochemist's Workbench (GWB) ist ein Paket mehrerer Programme zur Berechnung der Chemie in wässrigen Lösungen und liegt in der Version 9.09 (Build 6116) vor. Es wird seit über 20 Jahren entwickelt und kommerziell als Lizenz vertrieben /LEE 11/, /BET 08/.

GWB berechnet Reaktionsgleichungen, erstellt Stabilitätsdiagramme und Gleichgewichte für wässrige Phasen und kann einen reaktiven Transport modellieren. Die Ergebnisse können graphisch dargestellt und gespeichert werden. Das Programm läuft unter MS Windows. GWB nutzt thermodynamische Datensätze von 0 bis 300 °C mit Dampfdruckkurven zur Berechnung der chemischen Gleichgewichte. Vergleich und Kontrolle der Berechnungen mit anderen Programmen (z. B. PHREEQC) und Datensätzen sind prinzipiell möglich.

## 2.8 SUSANA

SUSANA (**S**oftware für **U**nsicherheits- und **S**ensitivitätsanalysen /KLO 08/) ist ein von der GRS entwickeltes Programm zur Untersuchung des Einflusses von Ungewissheiten/Unsicherheiten bzgl. des Kenntnisstandes von Parametern (sog. epistemische Unsicherheiten) auf das Rechenergebnis (Unsicherheitsanalyse) und zur Untersuchung der Beiträge der Ungewissheiten des Kenntnisstandes auf die Unsicherheit des Rechenergebnisses (Sensitivitätsanalyse) eines Rechenprogrammes. Die Unsicherheiten, die aufgrund von Ungewissheiten in Szenarien entstehen, sind nicht Gegenstand dieser Untersuchung.

Die erforderlichen Schritte, um mit dem Rechenprogramm SUSANA eine Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse auszuführen, sind im Folgenden beschrieben.

1. Identifizieren der Ungewissheiten des Kenntnisstandes mit potentiell wichtigen Beiträgen zur Ergebnisunsicherheit. Die Ungewissheiten des Kenntnisstandes können sich sowohl auf Parameter, Modellannahmen, numerische Algorithmen als auch auf Phänomene beziehen.
2. Festlegen des Unsicherheitsbereichs und Quantifizieren des Kenntnisstands mittels einer Wahrscheinlichkeitsverteilung. Dieser Schritt wird für jede in Schritt 1 identifizierte unsichere Eingabegröße des Rechenprogramms durchgeführt.
3. Identifizieren und Quantifizieren von Abhängigkeiten. Gemeinsame Beiträge zur Unsicherheit über zwei oder mehrere Eingabegrößen führen zur Abhängigkeit.
4. Erzeugen einer Stichprobe (im Folgenden auch „Ausspielen“ genannt) von Wertekombinationen mit SUSANA für die unsicheren Eingabegrößen des Rechenpro-

gramms. Die Stichprobe wird auf der Basis der in den Schritten 2 und 3 quantifizierten Wahrscheinlichkeitsverteilungen und Abhängigkeiten generiert.

5. Erzeugen einer Stichprobe von Rechenergebnissen. Dafür wird mit jedem Wertesatz der in Schritt 4 mit SUSA erzeugten Stichprobe ein Lauf des Rechenprogramms durchgeführt.
6. Herleiten von quantitativen Unsicherheitsaussagen zu den Rechenergebnissen. Der Einfluss der berücksichtigten Ungewissheiten des Kenntnisstandes auf die Rechenergebnisse wird auf der Basis der in Schritt 5 erzeugten Rechenergebnisse auf Basis der Stichprobe quantifiziert.
7. Herleiten von quantitativen Sensitivitätsaussagen mit SUSA zu den Rechenergebnissen. Die Sensitivitätsmaße werden auf der Basis der in den Schritten 4 und 5 erzeugten Stichproben ermittelt. Damit erhält man diejenigen unsicheren Eingabegrößen des Rechenprogramms, die den größten Beitrag zur Unsicherheit der Rechenergebnisse liefern.
8. Interpretation und Dokumentation der Analyseergebnisse.

### **3 Sicherheitsrelevante Einzelprozesse in der Übergangsphase**

#### **3.1 Entwicklung eines EOS Moduls zur Lösung und Ausfällung von Salz**

Die Prozesse der Gebirgskonvergenz und der damit verbundenen Versatzkompaktion, der Gasbildung durch Metallkorrosion, der zeitlichen Veränderung der Barrieren-Permeabilität, des druckinduzierten Entweichens von Gas ins Gebirge und der druckinduzierten Öffnung von Mikrorissen wurden in den Code TOUGH2 implementiert und unter dem Namen TOUGH2-GRS zusammengefasst /NAV 13b/. Grundlage der Modifikationen waren die EOS-Module EOS7 und EOS7R. Das Modul EOS7 definiert die Komponenten Wasser, Lauge und Luft. Das Modul EOS7R führt zusätzlich dazu noch zwei Radionuklide ein. Beide EOS-Module können Lösungen beschreiben, die aus einer Mischung von Wasser mit einer Referenzlauge bestehen. Sie eignen sich somit zur Simulation von Lösungen mit unterschiedlichen Laugenkonzentrationen in einem Endlager im Steinsalz.

Der Code TOUGH2-GRS in der Version 00a wurde im Vorhaben UM10 A 03200 „Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben“ (VSG) auf ein hypothetisches Endlager in Steinsalz angewendet /KOC 12/, /LAR 13/. Bei dieser Anwendung wurden verschiedene, problemspezifische Einschränkungen der Module EOS7 und EOS7R deutlich:

1. In einem weitgehend trockenen Endlager begrenzt die Menge des in der Versatzfeuchte vorhandenen Wassers den maximalen Umsatz der Metallkorrosion. Die physikalisch verfügbare Wassermasse ist in den Modulen EOS7 und EOS7R auf die beiden Komponenten „Wasser“ und „Lauge“ aufgeteilt. Eine Separation der Komponente „Lauge“ in Wasser und Salz ist jedoch bei keinem der beiden Module vorgesehen. Es ist also nicht ohne weiteres möglich, ein mit Lauge gefülltes Element durch Wasserentzug vollständig auszutrocknen. Auch findet bei Wasserentzug keine Ausfällung von Salz statt.
2. Da die Lösung und Ausfällung von Salz in den Modulen EOS7 und EOS7R nicht vorgesehen ist, werden zwei porositätsverändernde Prozesse nicht berücksichtigt, die in einem Endlager relevant werden könnten. Fragen nach der Porositätsentwicklung bei Eintritt ungesättigter Lösungen ins Endlager oder bei der Evaporation

von salzhaltigem Wasser in der Nähe wärmeentwickelnder Abfälle können somit nicht behandelt werden.

3. Im Endlager können unterschiedliche Gaskomponenten in nennenswerter Menge auftreten (z. B. Wasserdampf, Luft, Kohlendioxid und Wasserstoff). Die Module EOS7 und EOS7R betrachten jedoch nur zwei Gaskomponenten: nämlich Wasserdampf und Luft.
4. Mit dem Modul EOS7R kann der Transport lediglich zweier Radionuklide simuliert werden.

Neben diesen Einschränkungen zeigen die Module EOS7 und EOS7R zuweilen numerische Probleme, wenn sich die Anzahl der Phasen ändert, also beim Verschwinden oder Entstehen einer Phase.

Für die beiden oben genannten Punkte 1 und 4 konnten im Rahmen der Entwicklung der Version 00a des Codes TOUGH2-GRS /NAV 13b/ Lösungen bzw. Teillösungen erarbeitet werden. Die verbleibenden physikalischen und numerischen Einschränkungen der EOS-Module EOS7 und EOS7R bei der Anwendung auf Endlagerkonzepte in Steinsalz sind aber immer noch merklich. Dies gab Anlass zur Entwicklung des EOS-Moduls SALTREP /NAV 14/, das in Kombination mit dem Code TOUGH2-GRS verwendet werden kann.

Das Modul SALTREP simuliert die Lösung und Ausfällung von NaCl einschließlich der damit verbundenen Porositäts- und Zustandsänderungen als isothermen Prozess. Darüber hinaus kann in SALTREP eine Hauptgaskomponente und beliebig viele weitere Nebengaskomponenten bzw. Tracer eingeführt werden.

Das Modul SALTREP überwindet verschiedene Einschränkungen der Standardmodule EOS7 und EOS7R, die für die Modellierung salinärer Grundwassersysteme konzipiert wurden:

- In SALTREP werden Laugen als Gemische von Wasser und NaCl definiert und nicht, wie in den EOS-Modulen EOS7 und EOS7R als Gemisch von Wasser und einer Laugenkomponente. Hierdurch ist das physikalisch vorhandene Wasser auch als Phasenkomponente vorhanden und kann dem System vollständig entzogen

werden. Dies ist z. B. für die Simulation des vollständigen Wasserentzugs durch Metallkorrosion erforderlich.

- NaCl kann gelöst und gefällt werden. Gleichzeitig wird der Einfluss dieser Prozesse auf die Porosität und die thermodynamischen Zustände erfasst.
- Es können Systeme mit mehreren Gaskomponenten (z. B. Wasserdampf, Luft, Kohlendioxid und Wasserstoff) definiert werden. Diese können auch wie Tracer behandelt werden.

Das Modul SALTREP ist funktionsfähig, muss aber im Rahmen der Qualitätssicherung noch ausgiebigen Funktionsprüfungen unterzogen werden.

### **3.2 Umströmung von Streckenverschlüssen**

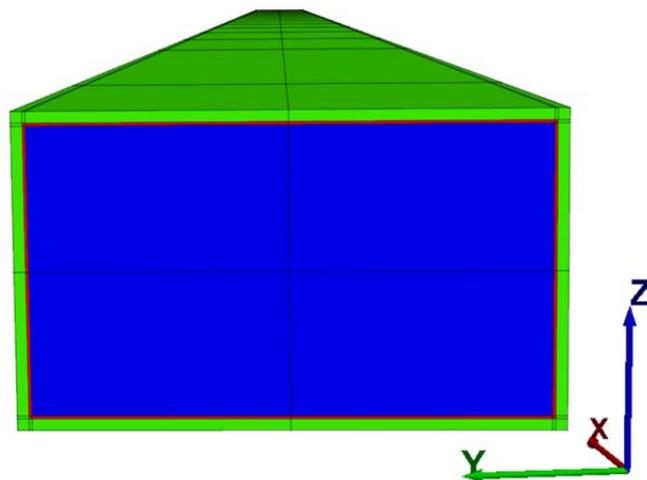
Aufgrund der Druckentlastung im Konturbereich einer aufgefahrenen, unverfüllten Strecke bildet sich in der Betriebsphase eine Auflockerungszone im anstehenden Steinsalz mit streckenparallelen Klüften. Die hydraulische Fluiddurchlässigkeit kann in der Auflockerungszone im Vergleich zu ungestörtem Steinsalz stark erhöht sein. Zudem kann an der Grenzfläche zwischen dem Baustoff des Streckenverschlusses und dem anstehenden Steinsalz sich eine Fuge ausbilden, die die Durchlässigkeit ebenfalls erhöht. Diese Umläufigkeiten können die Barrierewirkung eines Streckenverschlusses beeinträchtigen und bei einem möglichen Laugenzutritt sicherheitstechnisch relevant sein, da sich die integrale Durchlässigkeit eines Streckenverschlusses aus dem Zusammenspiel der materialspezifischen hydraulischen Durchlässigkeit des Baustoffes und der Kontakt- und Auflockerungszone ergibt.

Der Zeitraum bis der Salzgrusversatz oder eine Auflockerungszone soweit kompaktiert (verheilt) ist, dass ein advektiver Fluidfluss (Gas und Flüssigkeit) durch den Porenraum nicht mehr möglich ist, ist nicht bekannt. Dies kann schon nach mehreren hundert Jahren der Fall sein - je nach Feuchtegehalt und Temperatur im Endlager - bis hin zu mehreren 1.000 Jahren. Für die Modellrechnungen wurde deshalb ein Zeitraum von bis zu 50.000 Jahren nach Endlagerverschluss zugrunde gelegt. Dies entspricht auch der Auslegung der Schacht- und Streckenverschlüsse für die VSG /MÜL 12/.

Um die Barrierewirkung eines Streckenverschlusses mit Kontakt- und Auflockerungszone (Abb. 3.1) in einem fiktiven Endlagerbergwerk im Wirtsgestein Salz zu untersu-

chen, wurde ein Zutritt von Laugen / Lösungen an den Streckenverschluss angenommen.

Der Laugendurchfluss diente als Indikator für die Barrierewirkung des Verbundsystems Streckenverschluss-Steinsalz. Die Abhängigkeit des Laugenflusses von der Kompaktion der Auflockerungszone sollte aufgezeigt werden. Dies sollte zum Prozessverständnis des hydraulischen Verhaltens der Auflockerungs- und Kontaktzone, die auf einen nicht kompaktierbaren Streckenverschluss aufläuft, beitragen.



**Abb. 3.1** Gittermodell mit einem rechteckigen Querschnitt

Der Streckenkern (blau) wird von einer Kontaktzone (rot) und einer Auflockerungszone (grün) umgeben.

Durch eine Variation der Werte für die Eingabeparameter für den Zweiphasenfluss, der Kompaktion, der Permeabilität als auch des Gittermodells für den numerischen Simulator TOUGH2 wurde die Sensitivität der Parameter auf den Laugendurchfluss deterministisch untersucht. Der Laugendurchfluss bzw. der Zeitpunkt des Laugendurchbruchs wurde am Ende des Streckenverschlusses ermittelt.

Es ist zu beachten, dass in den Modellrechnungen der Porenraum im Sorelbeton und im Salzgrus immer als vernetzt angenommen wurde. Als realistisch wird aber angesehen, dass die Poren unterhalb einer bestimmten Porosität nicht mehr oder nur noch vereinzelt miteinander vernetzt sind. Der advective Laugenfluss wäre in diesem Fall stark gehemmt oder sogar vollständig unterbunden /POP 12/. Diese so genannte „Grenz-“porosität ab der ein Laugenfluss möglich bzw. darunter nicht mehr möglich ist,

kann allerdings derzeit nicht hinreichend quantifiziert werden. Die Modellrechnungen überschätzen daher möglicherweise die durchgeflossenen Laugenmengen.

Mit diesen Annahmen zur Kompaktion des Salzgruses und der Auflockerungs- und Kontaktzone (auch: gestörte Zone) blieb der Streckenverschluss bei den für diese Modellierungen zugrunde gelegten hydraulischen Werten der primäre Strömungspfad. Dennoch könnten andere hydraulische Kennwerte für Materialien (Sorelbeton, Salzgrus) dazu führen, dass sich ein anderes Fließregime einstellt.

Der Laugendurchfluss wurde hauptsächlich vom Fließquerschnitt und der Permeabilität/Porosität beeinflusst. Es zeigte sich, dass die Zweiphasenfluss-Parameter und die Wahl des Korrekturfaktors für die Kompaktion wenig sensitiv auf den Laugenfluss in der Übergangsphase sind. Geänderte Werte für die residuale Fluidsättigung wirkten sich auf die Höhe und Zeitpunkt des Laugendurchflusses aus, da zum einen der Fließquerschnitt verringert wird und zum anderen die Auffüllphase schneller abläuft.

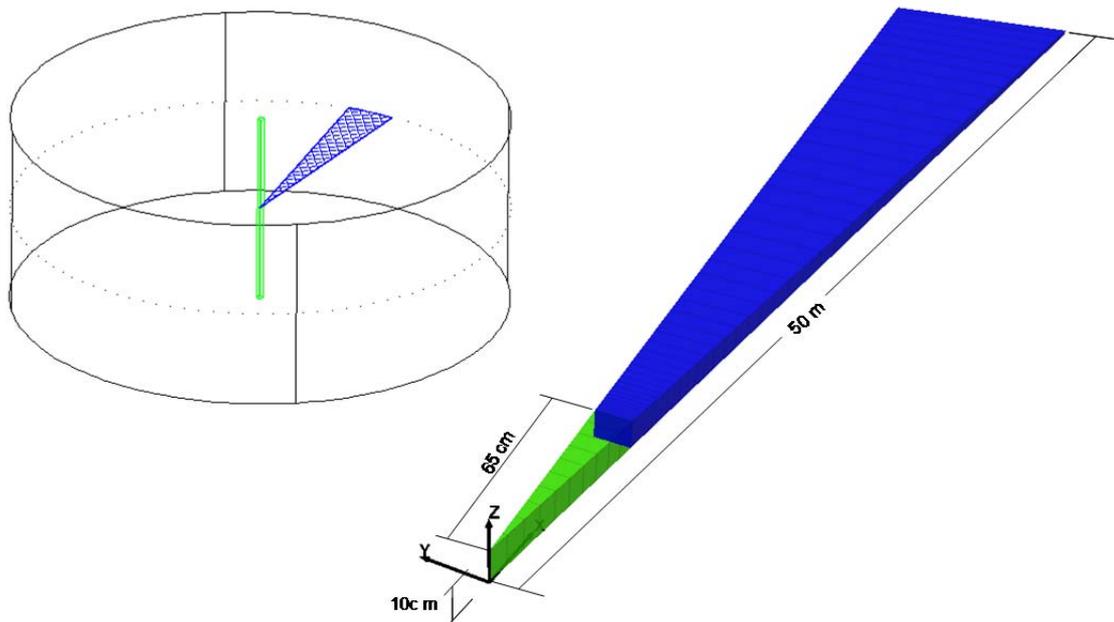
Die Abweichung des Laugendurchflusses bei Zusammenfassung der Auflockerungszone und Kontaktzone zu einer modelltechnischen gestörten Zone im Gittermodell war vernachlässigbar. Die Anwendung einer integralen Permeabilität über den gesamten Querschnitt als vereinfachtes Gittermodell war nicht geeignet.

### **3.3 Gaseindringen in unverritztes Salzgestein**

Das von der GRS entwickelte Simulationstool TFC wurde verwendet (Kap. 2.3.2), um eine Reihe von hydro-mechanisch (HM) gekoppelten Prozessen anhand eines stilisierten Gasinjektionsversuchs in Steinsalz zu modellieren. Simuliert wurde die Zeit ab Bohrlocherstellung, die sogenannte Ausgasungsphase und die anschließende Injektionsphase, wobei Steinsalz als klassisches poröses Medium mit einem Materialgesetz inkl. Kriechen aber ohne Materialversagen modelliert wurde.

Für die Abhängigkeiten der hydrodynamischen (H) Parameter von mechanischen (M) Zustandsänderungen (M→H-Kopplung) und der mechanischen Parameter von hydrodynamischen Zustandsänderungen (H→M-Kopplung) wurden jeweils verschiedene physikalische Modelle in Form unterschiedlicher Kopplungsfunktionen angesetzt: Für die M→H-Kopplung wurde sowohl eine direkte Abhängigkeit der Permeabilität von der minimalen Effektivspannung angenommen, wobei unterschiedliche Varianten Anwen-

ung fanden, als auch alternativ eine poroelastische Spannungs-Porositäts-Beziehung mit anschließender Porositäts-Permeabilitätsbeziehung. Für die H→M-Kopplung wurde sowohl Unabhängigkeit zwischen totalen Spannungen und Porendruck angenommen als auch alternativ eine poroelastische H→M-Kopplung.



**Abb. 3.2** Modellgebiet „Tortenstück“

Rechte Abb.: „Tortenstück“ mit Innenradius 65 cm (gelb-transparent), Außenradius 50 m, Höhe 10 cm, Öffnungswinkel 11,25°, Element-Anzahl 50. (Eine Abnahme der Höhe und eine Verkürzung der Elemente zum äußeren Rand hin wird durch die stark perspektivische Darstellung nur vorgetäuscht). Linke Abb.: Veranschaulichung der Lage des Modellgebietes relativ zu dem Druck-beaufschlagten vertikalen Bohrloch.

Die Simulationen zeigten, dass bei angenommener Abhängigkeit der Permeabilität von der minimalen Effektivspannung in der Ausgasungsphase ein Permeabilitätsminimum im konturnahen Gebirgsbereich entstand, das sich in der Injektionsphase nicht auflösen konnte und einen äußerst geringen Gasfluss ins Gebirge zur Folge hatte. Bei einer rein poroelastischen HM-Kopplung war die Ausgasung besonders gering und auch in der Injektionsphase ließ sich mit dieser Kopplung keine verstärkte Gasinjektion erreichen. Offensichtlich waren die im Rahmen der linear-elastischen Biot-Theorie erzeugten Porenraumänderungen dafür zu klein. Allerdings führte keine der in den verschiedenen Rechnungen getroffenen Modellannahmen zu einer tatsächlich großen plötzlich ins Gebirge eindringenden Gasmenge. Die Simulation eines solchen Szenarios könnte dadurch gelingen, dass das Modellgebiet um eine für das Injektionsgas

erreichbare Gassenke erweitert wird, denn die Rechnungen zeigten trotz der nur kleinen ins Gebirge injizierten Gasmengen teilweise eine unerwartet große Reichweite des Injektionsgases. Darüber hinaus belegte eine Modellrechnung mit reduziertem Bohrl Lochdurchmesser, dass Effekte der Bohrlochkontur skalenabhängig sind und deshalb nur eingeschränkt von kleinskaligen Versuchen auf die Dimensionen eines Endlagers übertragbar sind. /HOT 14a/.

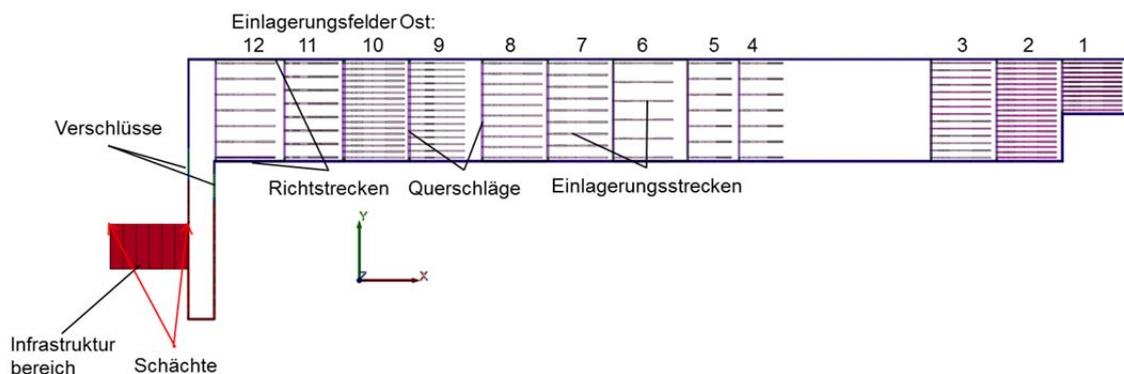


## 4 Ungewissheiten durch Prozesswechselwirkungen

Die Parameterwerte bzgl. Gasentstehung und –transport im Endlager sind mit großen Ungewissheiten verbunden. Aus diesem Grund werden in Berechnungen zur radiologischen Konsequenzenanalyse Parameterbandbreiten abgeschätzt. Allerdings ist in der Regel eine konservative Anwendung dieser Parameterbandbreiten aufgrund der komplexen und auch nicht-linearen Prozesswechselwirkungen nicht möglich. Eine probabilistische, radiologische Konsequenzenanalyse mit einer quantitativen Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse zur systematischen Analyse von Ungewissheiten durch Prozesswechselwirkungen mit den Bandbreiten der Parameterwerte in einem vollständigen Endlagersystem für Zweiphasenflussrechnungen ist bislang noch nicht erfolgt. Die hier dargestellte Studie /KOC 14/ lieferte dazu einen ersten Beitrag.

Für die probabilistische, radiologische Konsequenzenanalyse wurden zwei numerische Werkzeuge genutzt. Dies sind der Zweiphasenfluss-Code TOUGH2 (Kap. 2.1), um den Gas-, Flüssigkeits- und Radionuklidtransport im Endlagersystem zu berechnen und das Programm SUSA (Kap. 2.8) zur Erzeugung von Stichproben für eine quantitative Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse.

Alle Berechnungen erfolgten mit einem vorhandenen, lauffähigen und gut untersuchten Grubengebäudemodell aus dem Vorhaben VSG /KOC 12/, /LAR 13/ (Abb. 4.1).



**Abb. 4.1** Aufsicht auf das verwendete Grubengebäudemodell

Die Prozesse und Parameter sind nachfolgend aufgeführt:

- Die Salzgruskompaktion und die hydraulischen Prozesse wurden mittels eines vereinfachten Kompaktionsansatzes unter Berücksichtigung der Abhängigkeiten von Temperatur, Feuchte, Fluidinnendruck sowie Stützwirkung berechnet.
- Die Permeabilitäten bzw. eine Porosität-Permeabilitätsbeziehung wurden den verschiedenen Materialien zugewiesen.
- Die Radionuklidmobilisation aufgrund eines initial defekten Behälters wurde als instantan angenommen. Der radioaktive Zerfall von  $^{14}\text{C}$ , die Diffusion in der Flüssig- und Gasphase sowie die physikalische Wechselwirkung (Gaslösung) zwischen den Phasen gemäß Henry-Gesetz wurden berücksichtigt.
- Die Korrosion der Behälter mit Gasbildung wurde anhand einer Korrosionsrate in Abhängigkeit von der Wasserverfügbarkeit berücksichtigt.

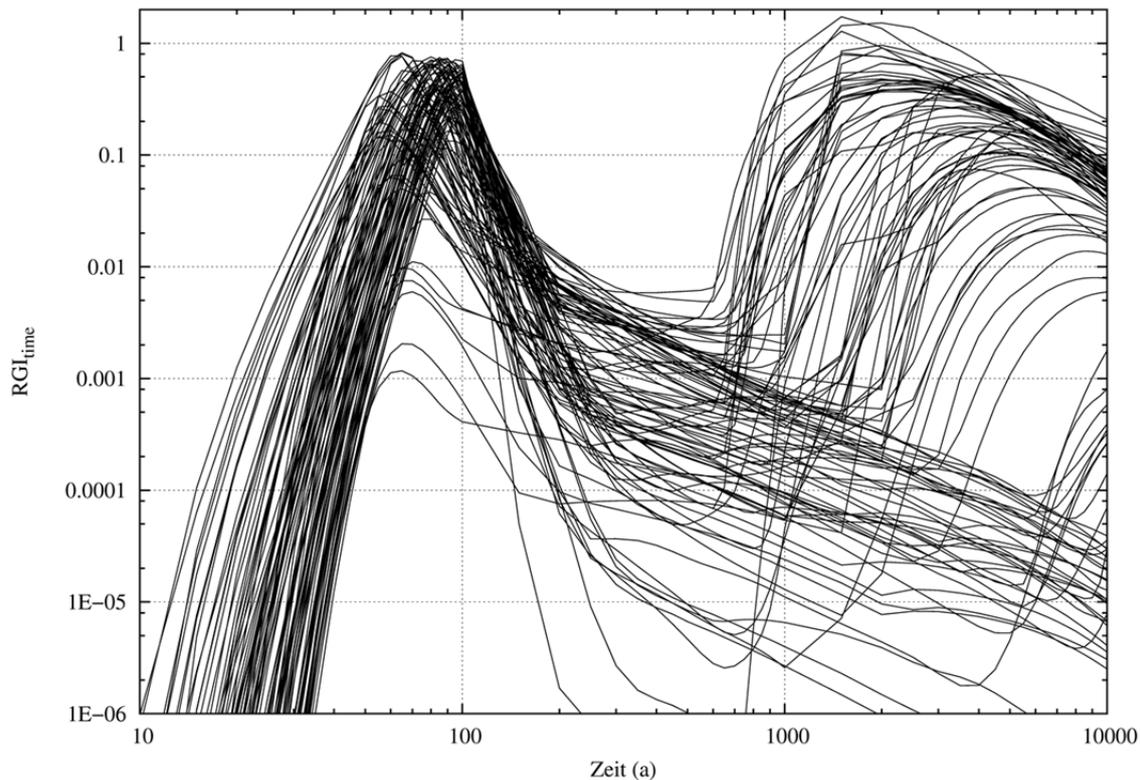
Die Werte von folgenden Parametern wurden für die probabilistischen Rechnungen variiert:

- die Restporosität des Salzgrusversatzes  $\phi_{\text{Restporosität}}$ ,
- die Kompaktionsrate des Salzgrusversatzes  $f_{\text{loc}}$ ,
- die zur Korrosion zur Verfügung stehende Lösungs- bzw. Wassermenge sowie
- die Korrosionsrate an den Einlagerungsbehältern.

Als quantitativ vergleichbares Rechenergebnis wurde der sog. radiologische Geringfügigkeitsindex (RGI) genutzt, der nach den Vorgaben aus den Sicherheitsanforderungen /BMU 10/ des Bundesministeriums für Natur, Umweltschutz und Reaktorsicherheit (BMU) für einen vereinfachten radiologischen Nachweis entwickelt wurde /LAR 13/. Ein  $\text{RGI} < 1$  wird als geringfügig betrachtet. In jedem Rechenlauf wurde der  $\text{RGI}_{\text{C14}}$  für ausgewählte Zeitschritte ermittelt – im Folgenden als  $\text{RGI}_{\text{time}}$  bezeichnet – und für jeden Rechenlauf der maximale Wert von  $\text{RGI}_{\text{time}}$  – im Folgenden mit  $\widehat{\text{RGI}}$  bezeichnet – berechnet.

Aus insgesamt 100 Rechenläufen mit TOUGH2 liegen 100 Zeitreihen des jeweils berechneten RGI vor (Abb. 4.2). Erkennbar ist, dass in nahezu allen Fällen  $\text{RGI}_{\text{time}}$  bis zu einem Zeitraum von 75 a – 100 a ansteigt. Teilweise liegt  $\text{RGI}_{\text{time}}$  nur leicht unter 1. Spätestens nach 100 Jahren sinkt  $\text{RGI}_{\text{time}}$ . Nach diesem Zeitpunkt lassen sich die Kur-

ven grob in zwei Gruppen einteilen: In manchen Fällen sinkt  $RGI_{\text{time}}$  kontinuierlich weiter bis zum Ende der Rechenlaufzeit nach 10 000 Jahren. In den anderen Fällen steigt  $RGI_{\text{time}}$  erneut an. Dieser Anstieg erfolgt frühestens nach 500 Jahren, teilweise auch erst nach 5 000 Jahren.



**Abb. 4.2** Zeitreihe des RGI aus 100 Modellläufen

3 von den 100 Rechenläufen der Stichprobe lagen über dem für die radiologische Konsequenz wichtigen Referenzwert von  $RGI = 1$ . Die wesentliche Unsicherheitsaussage war, dass sich mit einer Aussagesicherheit von 99 % feststellen lässt, dass 90 % der Ergebnisse von  $\widehat{RGI}$  (oder 90 % der Ergebnisverteilung von  $\widehat{RGI}$ ) unterhalb von 0,96 liegen, bzw. mit einer Aussagesicherheit von 74 %, dass 95 % der Ergebnisse unterhalb von 0,96 liegen. Diese Aussage wurde anhand dieser Stichprobe aus 100 Modellläufen gewonnen. Sie gilt jedoch unabhängig von dieser Stichprobe genau für dieses Modell mit dieser Eingangsparameterverteilung.

Für eine vollständige Unsicherheitsanalyse im Rahmen eines Langzeitsicherheitsnachweises müsste auch gezeigt werden, dass das Modell und die Verteilung der Werte für die Eingangsparameter „richtig“ sind, d. h. es müsste begründet werden, warum dieses Modell für die Prognose der (oder einer) zukünftigen Entwicklung des Endlager-

systems adäquat ist, und dass die Unsicherheiten *aller* Modelleingangsparameter auch quantitativ dem aktuellen Kenntnisstand entsprechend berücksichtigt wurden. Eine solch umfassende Unsicherheitsanalyse lag jedoch außerhalb der Möglichkeiten der Studie.

Aus der Abb. 4.2 ergab sich die Frage „Welche Parameterkonstellation ist verantwortlich für ein hohes erstes RGI-Maximum und welche ist verantwortlich für ein hohes zweites RGI-Maximum?“. Um dies zu beantworten wurden eine weitere Sensitivitätsanalyse durchgeführt: Für die Zeiträume zwischen 0 bis 500 Jahren und zwischen 500 bis 10 000 Jahren wurden getrennt die maximalen RGI ermittelt – im Folgenden als  $\widehat{RGI1}$  und  $\widehat{RGI2}$  bezeichnet. Diese beiden Indikatoren wurden mittels 16 unterschiedlicher Sensitivitäts- und Bestimmtheitsmaße analysiert.

Die Höhe der Einzelpeaks war klar mit bestimmten Parametern korreliert:

- Je kürzer die Kompaktionszeit der Einlagerungsfelder desto höher war der erste RGI- Peak  $\widehat{RGI1}$ . Auf die Höhe des zweiten Peaks  $\widehat{RGI2}$  hatte dieser Parameter keinen wesentlichen Einfluss.
- Je länger die Kompaktionszeit der Richtstrecken desto höher war der erste RGI- Peak  $\widehat{RGI1}$ . Auf die Höhe des zweiten Peaks  $\widehat{RGI2}$  hatte dieser Parameter keinen wesentlichen Einfluss.
- Je größer die Restporosität desto höher war der zweite RGI- Peak  $\widehat{RGI2}$ . Auf die Höhe des ersten Peaks  $\widehat{RGI1}$  hatte dieser Parameter keinen wesentlichen Einfluss.
- Der maximale RGI eines Rechenlaufs ( $\widehat{RGI}$ ) wurde – je nach Parameterkonstellation – entweder im ersten RGI-Peak (zwischen 60 und 100 Jahren) oder im zweiten RGI-Peak erreicht (zwischen 1 400 und 10 000 Jahren, dem Ende der Modelllaufzeit). In einigen Rechenläufen wurde der zweite RGI-Peak innerhalb der Modelllaufzeit nicht mehr erreicht.
- Die absolut größten RGI wurden im zweiten Peak erreicht. Bei einer niedrigeren Restporosität würden also die absolut größten RGI niedriger ausfallen.

Die Sensitivitätsanalyse des vorliegenden Endlagersystems zeigte somit, dass im Rahmen der gewählten probabilistischen Eingangsparameterverteilung die Parameter Kompaktionszeit der Einlagerungsfelder und Kompaktionszeit der Richtstrecken für die Höhe des ersten RGI-Peaks – ausgelöst durch einen initial defekten Behälter – ver-

antwortlich sind, und dass praktisch ausschließlich die Restporosität für die Höhe des zweiten RGI-Peaks – ausgelöst durch die Freisetzung zum Ende der angenommenen Gasdichtheitsdauer aller Behälter – verantwortlich war. Die Analyse des zeitindizierten  $RGI_{time}$  lieferte zusätzlich wichtige Einsichten zum Systemverständnis und stärkte das Vertrauen in die Robustheit der Analyse der mit den RGI-Maxima korrelierten Parameter.

Mit Hilfe der Unsicherheitsanalyse konnte eine Aussage darüber getroffen werden, welcher Prozentsatz der berechneten Ergebnisse (bei vorgegebener Aussagesicherheit) unterhalb einer kritischen Grenze bei  $RGI = 1$  bleibt. Mit einer Aussagesicherheit von 99 % ist dies bei 90 % der RGI-Ergebnisverteilung der Fall. Ein solches Resultat kann als Argument für die Robustheit des Endlagersystems verwendet werden.

Im Vergleich mit den in /LAR 13/ beschriebenen Berechnungen war der Zeitpunkt und die Höhe des zweiten Peaks und in deren Folge auch der Zeitpunkt der berechneten maximalen RGI (ca. 1 500 Jahre) ein unerwartetes Ergebnis. Rechenfälle mit erhöhter Restporosität standen in /LAR 13/ nicht im Fokus der Gastransportberechnungen. So wurden verschiedene Parametervarianten gerechnet, aber die Restporosität war in allen Rechnungen gleich (bei 1 %). Damit zeigt sich, dass eine probabilistische Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse auch dazu dienen kann, ein unerwartetes Systemverhalten eines komplexen Systems aufzuzeigen.

Mit Hilfe der Ergebnisse lässt sich eine bereits anhand deterministischer Parametervariation erfolgte Systemanalyse des Endlagersystems /KOC 12/, /LAR 13/ sinnvoll ergänzen.



## 5 **Kopplung eines Stofftransports mit geochemischen Gleichgewichten**

Das Rechenprogramm MARNIE simuliert die komplexen Stofftransportprozesse in einem lösungsgefüllten Endlager in einer Salzformation (Kap. 2.5). Da Löslichkeiten darin nur durch die Vorgabe element-spezifischer fester Löslichkeitsgrenzen berücksichtigt werden, ist eine Unterscheidung nach unterschiedlichen geochemischen Milieus nur eingeschränkt möglich (Kammer, Strecke, Verschluss).

Um diese Beschränkung aufzuheben wurde das Programm MARNIE bereits mit der Programmierbibliothek ChemApp /PET 07/ zur Durchführung thermodynamischer Gleichgewichtsrechnungen gekoppelt /FIS 07/. Als Ergebnis der thermodynamischen Berechnungen mit ChemApp wird die Menge der gelösten und der im Feststoff gebundenen Elemente an MARNIE zurückgegeben. Dies ermöglicht die Berücksichtigung eines veränderlichen geochemischen Milieus. Die Vorgabe der element-spezifischen festen Löslichkeitsgrenzen entfiel damit.

Die Machbarkeit der Kopplung von MARNIE mit dem frei verfügbaren geochemischen Reencode PHREEQC und eine Anwendung mit Testrechnungen sollte geprüft werden, um als Alternative zur Kopplung von MARNIE mit der kommerziell vertriebenen Programmierbibliothek ChemApp zur Verfügung zu stehen.

Bei der Erstellung der Schnittstelle für die Kopplung von MARNIE mit PHREEQC konnte auf einige der bereits im Rahmen der Kopplung mit ChemApp erstellten Routinen zurückgegriffen werden. Diese wurden für die Kopplung mit PHREEQC angepasst und mit Routinen, die für die Kopplung mit anderen Programmen seitens der PHREEQC-Entwickler zur Verfügung gestellt werden, erweitert. Für die Kopplung von MARNIE mit PHREEQC wird ein vollständiger Eingabedatensatz für PHREEQC unter Verwendung der in MARNIE vorhandenen Variablen erstellt und die thermodynamische Gleichgewichtsrechnung initiiert. Anschließend werden die Ergebnisse der PHREEQC-Rechnung zur Übergabe wieder in die MARNIE-Variablen umgerechnet.

Für die Testrechnungen wurde die im Rahmen des Projektes „THEREDA“ erstellte qualitätsgesicherte Datenbasis THEREDA02 ausgewählt, da sie thermodynamische Standarddaten für einige Komponenten (Elemente, Radionuklide und Verbindungen: Na, Mg, Ca, Cl, Am(III), Nd(III), Cm(III), H<sub>2</sub>O(l)) in hochsalinaren Lösungen bereitstellt.

Es wurde eine fiktive Zerfallskette mit den Eigenschaften der in der Datenbasis vorhandenen Elemente ohne Berücksichtigung von Redoxreaktionen konstruiert. Das Mutternuklid der fiktiven Zerfallskette wurde innerhalb des ersten Zeitschritts, d. h. quasi instantan, in ein Kontrollvolumen, das eine Einlagerungskammer repräsentieren soll, freigesetzt.

In den ersten Rechenfällen wurde ausschließlich das Lösungsverhalten der betrachteten Radionuklide unter Berücksichtigung des radioaktiven Zerfalls in unterschiedlichen gesättigten Salzlösungen ohne Berücksichtigung von Transportprozessen simuliert. Nach dem erfolgreichen Abschluss dieser Tests wurde anschließend in weiteren Rechenfällen der Transport der Stoffkomponenten durch mehrere mit unterschiedlichen salinaren Lösungen gesättigte Kontrollvolumina simuliert. Als Transportmechanismen wurden sowohl Advektion als auch Diffusion und Dispersion betrachtet. Dabei wurde sowohl der Transport der stabilen Elemente als auch der der Radionuklide aus der fiktiven Zerfallskette simuliert.

Die Kopplung von MARNIE mit PHREEQC ermöglicht es, die im Fluid gelösten und im Feststoff gebundenen Elementinventare zeitaufgelöst und quantitativ für jedes Segment eines Endlagermodells zu berechnen. Die Anwendbarkeit der Kopplung wurde mit Testrechnungen für verschiedene, fiktive Rechenfälle geprüft und dokumentiert /FIH 14/. Die Komplexität der Rechenfälle wurde schrittweise erhöht, um zu prüfen, ob grundsätzliche Prozesse korrekt abgebildet werden.

Nach erfolgreichem Abschluss der Testrechnungen blieben die im Folgenden beschriebenen Punkte offen:

- Die unverzichtbare Vorgabe des Ions für den Ladungsausgleich in den Kontrollvolumina impliziert die Festlegung der Spezifikation des freigesetzten Radionuklids. Für die programminterne Vorgabe wurde eine pragmatische Lösung festgelegt. In den Rechnungen erfolgte der Ladungsausgleich im ersten Kontrollvolumen über den pH-Wert und damit die Spezifikation des freigesetzten Radionuklids Cm als  $\text{Cm}_2\text{O}_3$ . In allen anderen Bereichen des Modells erfolgt der Ladungsausgleich über Chlorid. Der Ladungsausgleich sollte unabhängig von der Spezifikation des freigesetzten Radionuklids erreicht werden.
- Die benötigten gesättigten Salzlösungen in den Kontrollvolumina werden aufgrund der Berechnungsmethoden in PHREEQC nicht – wie in MARNIE üblich – durch die Vorgabe von Anfangskonzentrationen, sondern durch die quasi instantane Freiset-

zung der entsprechenden Elemente innerhalb des ersten Zeitschritts erzeugt. Diese Methode kann jedoch nur in wenigen Spezialfällen angewendet werden. Daher sind andere Möglichkeiten zur rechnerischen Erzeugung der gesättigten Salzlösungen zu entwickeln.

- Erfolgt ein schneller Transport gesättigter Salzlösungen in Kontrollvolumina, die bereits gesättigte Salzlösungen enthalten, führt dies in PHREEQC aufgrund der extremen Übersättigung der Lösung zu einem Programmabbruch. Dies kann programmtechnisch in MARNIE gelöst werden.
- Die Berechnung des radioaktiven Zerfalls in MARNIE sollte modifiziert werden, um auf die momentan erforderliche Vorgabe einheitlicher Molgewichte für alle Radionuklide einer Zerfallskette in gekoppelten MARNIE/PHREEQC-Rechnungen verzichten zu können.
- Die bereits bei der Kopplung MARNIE/ChemApp erkannten Unzulänglichkeiten bei der Berechnung der Fluidichte zur Aufrechterhaltung einer ausgeglichenen Massenbilanz müssen noch behoben werden.

Die Kopplung MARNIE/PHREEQC wurde erfolgreich durchgeführt und für mehrere Rechenfälle praktisch angewendet. Mit der vorliegenden MARNIE/PHREEQC-Version können bereits Aussagen zu einem Radionuklidtransport unter Einbeziehung geochemischer Gleichgewichte gemacht werden.

Vergleichsrechnungen der gekoppelten MARNIE/ChemApp-Version und der MARNIE/PHREEQC-Version bei gleicher thermodynamischer Datenbasis könnten aufzeigen, welche Kopplung der geochemischen Rechencodes für eine gegebene Fragestellung geeigneter bzw. effizienter ist.



## **6 Weiterentwicklung und Anwendung numerischer Simulationen in der Übergangsphase**

### **6.1 Modellierung des Transports von CO<sub>2</sub> in hochsalinaren Lösungen eines Endlagers**

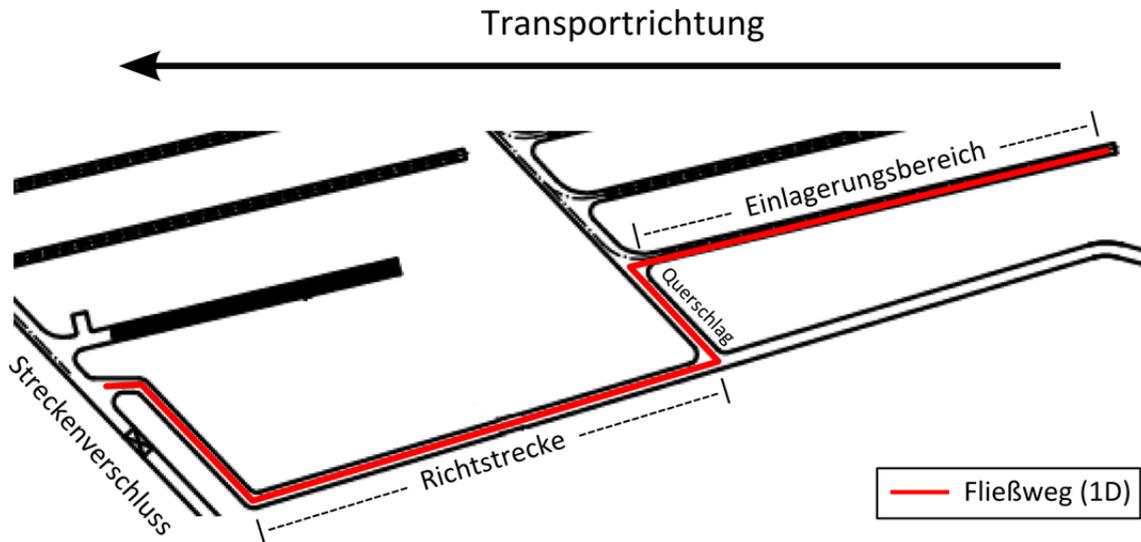
Der gasförmige bzw. gelöste Transport von CO<sub>2</sub> (mit <sup>14</sup>C) in hochsalinaren Lösungen eines Endlagers für radioaktive Abfälle im Salzgestein wurde mit dem geochemischen Rechencode PHREEQC /PAR 13/ untersucht /WEY 14/.

Da der Transport von CO<sub>2</sub> und somit auch von <sup>14</sup>C von den chemischen Gleichgewichten mit aquatischen Spezies und der Bildung fester Mineralphasen beeinflusst wird, gilt, dass das Henry-Gesetz /HEN 03/ zur physikalischen Gaslösung die Wechselwirkungen von CO<sub>2</sub> mit hochsalinaren Lösungen nur zum Teil beschreibt. Fernziel war es bestehende Transportmodellierungen zum Zweiphasenfluss, siehe z. B. /LAR 13/, methodisch um geochemische Gleichgewichte, an denen CO<sub>2</sub> beteiligt ist, erweitern zu können, da die Einstellung geochemischer Gleichgewichte den Transport von CO<sub>2</sub> durch die Bildung weiterer aquatischer Spezies und mineralischer Festphasen verzögern können.

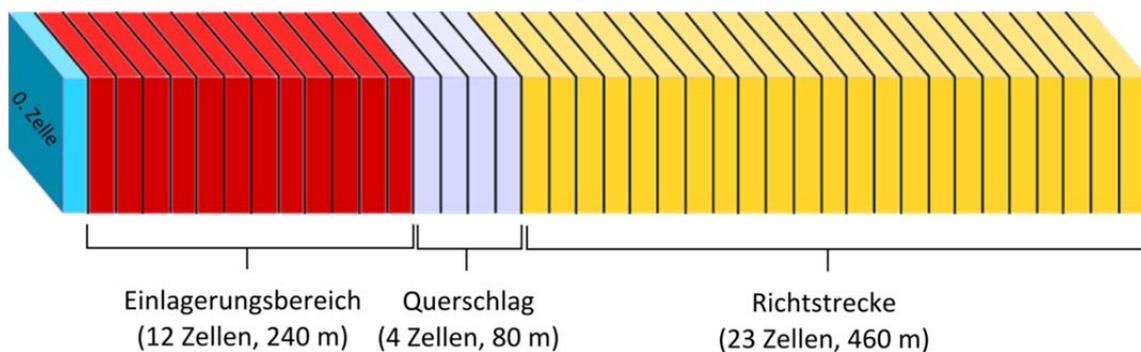
Um dies modelltechnisch zu zeigen, wurde ein vereinfachtes Transportmodell angenommen. Um das konzeptionelle Modell möglichst praxisnah zu entwickeln, wurden die Streckenabmessungen aus Angaben aus der VSG abgeleitet /BOL 11/, /FIS 13/, die wiederum auf Daten der bisherigen Erkundung des Bergwerkes Gorleben für ein Endlager radioaktiver Abfälle im Salzgestein beruhen /BOL 11/, /BOL 12/, /LAR 13/, /MRU 11/, /PEI 11b/, /PEI 11a/.

Da PHREEQC lediglich eindimensionale Transportmodellierungen unterstützt, wurde ein Ausschnitt des zweidimensionalen Grubengrundrisses im einlagerungsnahen Bereich bis zum Streckenverschluss für die Modellrechnungen ausgewählt. Dies war die Einlagerungsstrecke des Einlagerungsfeldes Ost 11 mit anschließendem Querschlag, der die Einlagerungsstrecke mit der Richtstrecke verbindet. Der Modellbereich endete mit dem Streckenverschluss am Übergang zwischen Richtstrecke und Infrastrukturbereich. Der Modellbereich gliederte sich in drei Transportstrecken: Einlagerungsbereich (unterstellte Gasproduktion), Querschlag,

Richtstrecke (Abb. 6.1, Abb. 6.2). Es wurde unterstellt, dass eine Lösung entlang dieser drei Teilbereiche eindimensional transportiert wird.



**Abb. 6.1** Vergrößerter Ausschnitt des Einlagerungsfeldes Ost 11  
Der simulierte Transportweg ist rot.



**Abb. 6.2** Konzeptionelles Modell

Der anfängliche Wasseranteil und die Zusammensetzung der Lösungen im Modellbereich ergeben sich aus dem Feuchtigkeitsgehalt und der Zusammensetzung des geplanten Salzgrusversatzes. Die Modellvorstellung setzte eine unbegrenzte Wasserverfügbarkeit für die Bildung von  $\text{CO}_2$  voraus - entsprechend den Transportmodellierungen nach /LAR 13/. Die Gasbildung und die Mobilisierung von Radionukliden werden daher überschätzt.

Es wurde ferner angenommen, dass der in den Abfällen enthaltene Kohlenstoff, C, und das Radionuklid  $^{14}\text{C}$  zunächst vollständig zu  $\text{CO}_2(\text{g})$  bzw.  $^{14}\text{CO}_2(\text{g})$  reagiert und dann

als Gas mit der Lösung reagieren kann. Die Methanbildung,  $\text{CH}_4(\text{g})$ ,  $^{14}\text{CH}_4(\text{g})$ , wurde in der Studie nicht betrachtet. Dies wäre allerdings prinzipiell mit weiteren thermodynamischen Daten mittels PHREEQC möglich.

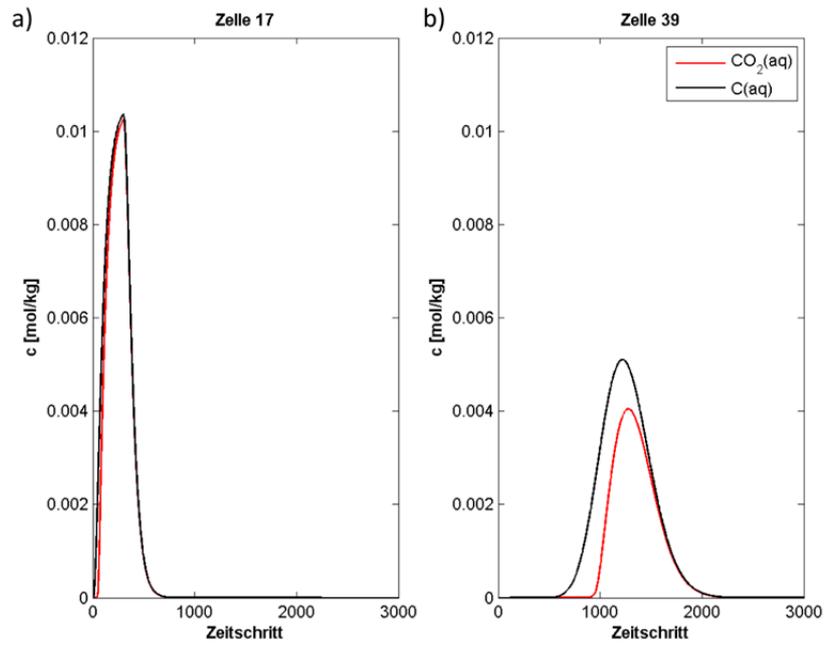
Mit diesen Annahmen und entsprechenden Eingaben in PHREEQC zur numerischen Simulation wurden zwei Transportmodellierungen berechnet, die zeitlich aufeinander folgen:

1. die Verteilung der Lösungsspezies durch Diffusion vor Kompaktion des Salzgrusversatzes für 500 Jahre und anschließend
2. einen advektiven Lösungstransport von der Einlagerungstrecke bei anstehender Gasphase.

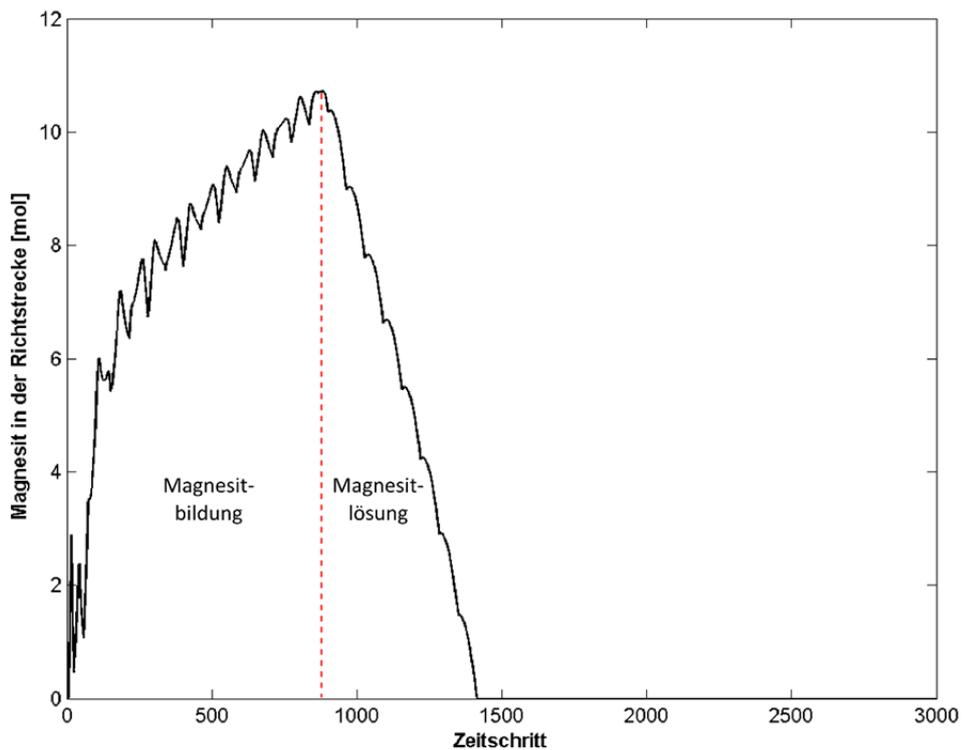
Die Abb. 6.3 zeigt die Konzentrationen des gesamten gelösten Kohlenstoffs,  $\text{C}(\text{aq})$ , und des gelösten Kohlendioxids,  $\text{CO}_2(\text{aq})$ , am Anfang (Zelle 17) und am Ende der Richtstrecke (Zelle 39). Der Peak des  $\text{C}(\text{aq})$  erreicht Zelle 17 nach 300 Zeitschritten (15 000 Jahre) und ist dort mit dem Peak des  $\text{CO}_2(\text{aq})$  nahezu deckungsgleich. Anschließend erreicht der Peak nach 1.300 Zeitschritten (65 000 Jahre) die Zelle 39. Dabei nimmt die Peakhöhe von  $\text{C}(\text{aq})$   $1,05 \cdot 10^{-2}$  mol/kg (Zelle 17) auf  $0,4 \cdot 10^{-2}$  mol/kg (Zelle 39) aufgrund von Verdünnungseffekten ab. Da in Zelle 39 der Anteil an  $\text{CO}_2(\text{aq})$  an der Gesamtkonzentration,  $\text{C}(\text{aq})$ , deutlich geringer als in Zelle 17 ist, kann auf Verschiebungen im Kohlensäure-Gleichgewicht und somit eine Zunahme weiterer aquatischer Spezies, wie z. B.  $\text{HCO}_3^-(\text{aq})$ , geschlossen werden.

Während des Transportes von  $\text{CO}_2$  fällt das Mineral Magnesit,  $\text{MgCO}_3(\text{s})$ , in der Richtstrecke aus (Abb. 6.4), da die Lösungen Magnesium enthalten. Die Festphase Magnesit liegt in der Richtstrecke (Zellen 17 – 39) bis zum Zeitschritt 1 415 vor. Der Anteil an Magnesit nimmt bis zum Maximum im Zeitschritt 880 zu. Anschließend wird Magnesit bis zum Zeitschritt 1 415 wieder aufgelöst.

Die Ausfällung von Magnesit führt zu einer Rückhaltung von C und somit auch  $^{14}\text{C}$  in der Festphase. Durch die vollständige Wiederauflösung von Magnesit passiert dennoch die gesamte im Einlagerungsbereich freigesetzte Stoffmenge an Kohlenstoff den Streckenverschluss (Zelle 39) während des modellierten Transportzeitraumes. Durch die Rückhaltung in der Festphase erreicht eine Teilmenge an C den Streckenverschluss jedoch später.



**Abb. 6.3** Konzentration von  $\text{CO}_2(\text{aq})$  (rot) und  $\text{C}(\text{aq})$  (schwarz) in Abhängigkeit vom Zeitschritt in Zelle 17 (a) und Zelle 39 (b)



**Abb. 6.4** Stoffmenge an Magnesit in der Richtstrecke (Zellen 17 – 39) in Abhängigkeit vom Zeitschritt

Zusammenfassend wurden folgende Einflüsse auf den CO<sub>2</sub>-Transport festgestellt:

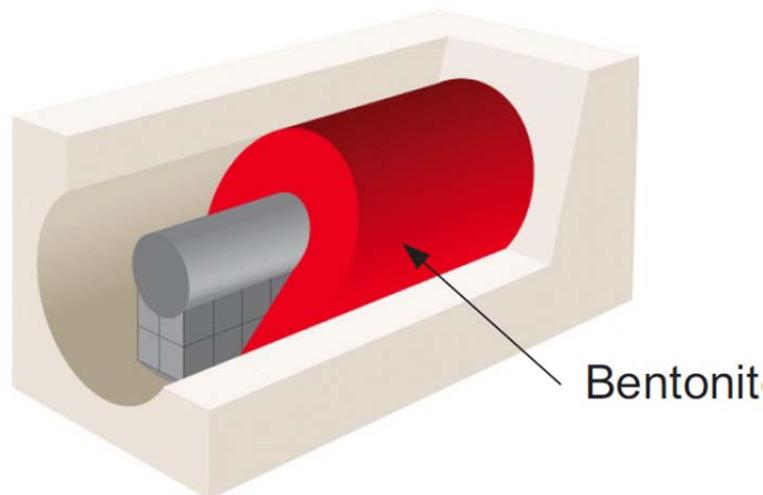
- Initial eingebrachtes MgCl<sub>2</sub> im Salzgrusversatz der Richtstrecke bildet in Verbindung mit gelöstem CO<sub>2</sub> das Mineral Magnesit (MgCO<sub>3</sub>(s)) und die aquatische Spezies MgCO<sub>3</sub>(aq). Dadurch wurde C in der Richtstrecke bis zu einer erneuten Auflösung zurückgehalten.
- Ein abnehmender CO<sub>2</sub>-Partialdruck senkte die Konzentration an maximal gelöstem CO<sub>2</sub>(aq) und erhöhte die Verweilzeit von C.
- Ein zunehmender CO<sub>2</sub>-Partialdruck erhöhte die Gaslöslichkeit und beschleunigte somit den Transport von C.
- Die Anwesenheit von Calcium senkte die Konzentration der aquatischen Spezies CO<sub>2</sub>(aq) und erhöhte die von anderen aquatischen C-Spezies (z. B. HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>(aq)). Eine Immobilisierung von C erfolgte durch die Bildung der Festphase Dolomit (CaMg(CO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(s)).
- Die Anwesenheit von Eisen beeinflusste den CO<sub>2</sub>-Transport bei niedrigen pH-Werten (pH < 7) rechnerisch nicht, da eine Sideritbildung (FeCO<sub>3</sub>(s)) alkalische Bedingungen (pH > 7,5) erfordert. Die Bildung alkalischer Lösungen bei der Korrosion von Endlagerbehältern wurde hier nicht untersucht.
- Die Bildung von Kaliumkarbonaten (z. B. Kalicit (KHCO<sub>3</sub>(s))) konnte nicht rechnerisch belegt werden.

Aufgrund dieser Ergebnisse wurde gefolgert, dass die Annahmen bzgl. der Wechselwirkungen zwischen CO<sub>2</sub> und hochsalinaren Lösungen über die Beschreibung der physikalischen Gaslöslichkeit durch das Henry-Gesetz hinaus erweitert werden sollten. Es traten während der Simulation weitere aquatische Spezies und Mineralausfällungen auf. Dadurch verzögerte sich der Transport des CO<sub>2</sub>. Aufgrund der Isotopenverdünnung gilt dies auch für <sup>14</sup>C.

## 6.2 Modellierung eines reaktiven Transports in Bentonit

Bentonit soll als technische Barriere in einem Endlager für hochradioaktive Abfälle im Tonstein eingesetzt werden /MAR 10/, /NAG 02/. Das Quell- und Sorptionsvermögen des Bentonits soll zur Abdichtung und zur Rückhaltung genutzt werden.

Nach der Einlagerung der Eisenbehälter in Strecken wird der umgebende Hohlraum mit Bentonit in einer Stärke von ca. 1 m verfüllt (Abb. 6.5 nach /PAT 12/). Diese technische Barriere soll einerseits den Zutritt von Feuchtigkeit an den Behälter verhindern und andererseits möglicherweise aus dem Behälter freigesetzte Radionuklide sorbieren. In Verbindung mit dem umgebenden Tongestein soll der Abfall von der Biosphäre isoliert werden.



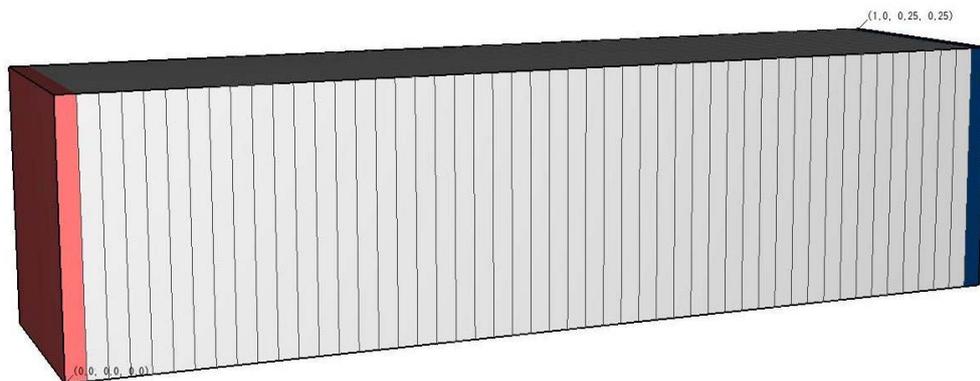
**Abb. 6.5** Schematische Darstellung der technischen Barriere mit Bentonit

Falls die Eisenbehälter korrodieren und Korrosionsprodukte freisetzen, werden diese die Eigenschaften des Bentonits beeinflussen. In einer Modellierung wurden deshalb die langzeitigen Veränderungen der Porenwasserzusammensetzung, Mineralauflösung und -ausfällung und deren Einfluss auf die Porosität und Permeabilität des Bentonits untersucht.

Für die Modellierung wurde PetraSim (Kapitel 2.4.2) mit TOUGHREACT1.2 (Kapitel 2.4.1) verwendet.

### 6.2.1 Methoden

Die Modellabstraktion in der Abb. 6.6 simuliert den Rand des Eisenbehälters (rotes Segment links), den Bentonit als technische Barriere (weiße Segmente) und den Opalinus-Ton (blaues Segment rechts). Aufgrund der radialen Symmetrie ist ein eindimensionaler Transport im Modell vom Eisenbehälter bis zum Opalinus-Ton ausreichend. Eine konstante Temperatur von 25 °C und eine vollständige Wassersättigung des Porenraums wurden angenommen. Da verbleibender Sauerstoff nach dem Verschluss des Endlagers in wenigen Jahren bis Jahrzehnten aufgebraucht wird /WER 08/, wurden anaerobe Bedingungen angenommen. Aus dem Opalinus-Ton steht als Randbedingung ein unbegrenztes Reservoir an Porenlösung zur Verfügung. Die Korrosionsrate wurde mit 2 µm/Jahr angenommen /WER 08/, /MAR 10/. Die Korrosion des metallischen Eisen erfolgt nach  $\text{Fe(s)} + 2\text{H}_2\text{O} \leftrightarrow \text{Fe}^{2+} + 2\text{OH}^- + \text{H}_2(\text{g})$ .



**Abb. 6.6** 1D Modell (Behälterwandung: rot, Bentonit: weiß, Opalinus-Ton: blau). Die Gesamtlänge ist 1 m.

Tab. 6.1 zeigt die primären Minerale des Bentonits MX 80 mit den spezifischen Auflösungs- und Ausfällungsraten /PAL 04/. Montmorillonit ist der Hauptbestandteil. Die Porosität eines gesättigten Bentonits liegt zwischen 36 und 45 % /NAG 04/ und wurde mit 39 % angenommen. Die Porosität des Opalinus-Tons und des Eisens in den Randsegmenten wurde ebenfalls auf 39 % gesetzt. Die Porenwasserzusammensetzung des Bentonits und Opalinus-Tons zeigt die Tab. 6.2.

Die Tab. 6.3 listet die sekundären Minerale auf. Dies sind Korrosionsprodukte, eisenreiche Schichtsilikate sowie vier weitere Minerale, die experimentell beobachtet wurden /CAR 07/, /HER 11/. Hämatit und Nontronit wurden nicht aufgenommen.

**Tab. 6.1** Mineralzusammensetzung des MX 80 Bentonits und Auflösungsraten

Mineral	Formel	Volumenanteil [%]	Rate [mol/m <sup>2</sup> /s]
Glimmer	$\text{KFe}_3\text{AlSi}_3\text{O}_{10}(\text{OH},\text{F})_2$	0.610	$2.818 \cdot 10^{-13}$
Pyrit	$\text{FeS}_2$	0.183	$4.0 \cdot 10^{-11}$
Albit	$\text{Na}[\text{AlSi}_3\text{O}_8]$	4.758	$2.754 \cdot 10^{-13}$
Quartz	$\text{SiO}_2$	9.272	$1.023 \cdot 10^{-14}$
Calcit	$\text{CaCO}_3$	0.427	$1.549 \cdot 10^{-06}$
Montmorillonit	$(\text{Na},\text{Ca})_{0,3}(\text{Al},\text{Mg})_2\text{Si}_4\text{O}_{10}(\text{OH})_2 \cdot n(\text{H}_2\text{O})$	45.75	$3.890 \cdot 10^{-15}$

**Tab. 6.2** Porenwasserzusammensetzung in Bentonit und Opalinus-Ton

Species	Bentonit [mol/l]	Opalinus-Ton [mol/l]
$\text{Al}^{3+}$	$1.92 \cdot 10^{-8}$	$2.17 \cdot 10^{-8}$
$\text{Ca}^{2+}$	$1.32 \cdot 10^{-2}$	$1.05 \cdot 10^{-2}$
$\text{Cl}^-$	$1.66 \cdot 10^{-1}$	$1.60 \cdot 10^{-1}$
$\text{Fe}^{2+}$	$4.33 \cdot 10^{-5}$	$4.33 \cdot 10^{-5}$
$\text{HCO}_3^-$	$2.83 \cdot 10^{-3}$	$2.70 \cdot 10^{-3}$
$\text{H}_4\text{SiO}_4$	$1.80 \cdot 10^{-4}$	$1.78 \cdot 10^{-4}$
$\text{K}^+$	$1.55 \cdot 10^{-3}$	$5.65 \cdot 10^{-3}$
$\text{Mg}^{2+}$	$7.64 \cdot 10^{-3}$	$7.48 \cdot 10^{-3}$
$\text{Na}^+$	$2.74 \cdot 10^{-1}$	$1.69 \cdot 10^{-1}$
$\text{SO}_4^{2-}$	$6.16 \cdot 10^{-2}$	$2.40 \cdot 10^{-2}$
pH	7.25	7.24

**Tab. 6.3** Sekundäre Minerale

Mineral	Formel
Saponit	$\text{Mg}_3[(\text{OH})_2(\text{Si},\text{Al})_4\text{O}_{10}] \cdot (\text{Ca},\text{Na})_x(\text{H}_2\text{O})_y$
Beidellit	$\text{Na}_{0,5}\text{Al}_2(\text{Si}_{3,5}\text{Al}_{0,5})\text{O}_{10}(\text{OH})_2 \cdot n(\text{H}_2\text{O})$
Clinochlor	$(\text{Mg}_5\text{Al})(\text{AlSi}_3)\text{O}_{10}(\text{OH})_8$
Brucit	$\text{Mg}(\text{OH})_2$
Phillipsit	$\text{Na}_6(\text{Si}_{10}\text{Al}_6)\text{O}_{32} \cdot 12 \text{H}_2\text{O}$
Greenalit	$(\text{Fe}^{2+}, \text{Fe}^{3+})_{2-3}\text{Si}_2\text{O}_5(\text{OH})_4$
Chamosit	$(\text{Fe}_5\text{Al})(\text{AlSi}_3)\text{O}_{10}(\text{OH})_8$
Goethit	$\text{FeO}(\text{OH})$
Siderit	$\text{FeCO}_3$
Magnetit	$\text{Fe}_3\text{O}_4$
Cronstedtit	$\text{Fe}_3(\text{SiFe})\text{O}_5(\text{OH})_4$
Grüner Rost	$\text{Fe}(\text{OH})_2$
Berthierin	$(\text{Fe}_2,\text{Al})_3(\text{Si},\text{Al})_2\text{O}_5(\text{OH})_4$

Aufgrund der niedrigen Permeabilität des Bentonits MX 80 ( $1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$ ) findet ein Massentransport hauptsächlich aufgrund der Diffusion statt. Der Diffusionskoeffizient betrug  $1 \cdot 10^{11} \text{ m}^2/\text{s}$ . Die Permeabilität des Eisens und des Opalinus-Tons in den Randsegmenten wurde ebenfalls als Randbedingung auf  $1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  gesetzt. Die Abhängigkeit der Permeabilität von der Porosität wurde nach der Carman-Kozeny-Gleichung ermittelt.

Die Tortuosität, die spezifische Oberfläche sowie die Änderungen der Korngröße werden nicht berücksichtigt.

### 6.2.2 Ergebnisse

Die Abb. 6.7 zeigt den pH-Wert des Porenwassers im Bentonit in Abhängigkeit vom Abstand zum Eisenbehälter für mehrere Zeitpunkte bis 100 000 Jahre. Zu Beginn der Simulation (0 Jahre) liegt der pH Wert des Porenwassers überall im Bentonit bei 7,25. Nach 10 Jahren ist der pH Wert am Randsegment zum Eisenbehälter auf bis zu 12,5 gestiegen. Nach 100 Jahren liegt der pH-Wert im Abstand bis 0,5 m bei 10,3 bis 12,3. Im Abstand zwischen 0,5 bis 0,8 m liegt der pH-Wert bei 10,2. Darüber hinaus werden nach 100 Jahren lediglich pH-Werte von 7,25 bis 8,5 erreicht. Nach 1 000 Jahren ist der pH-Wert in allen Zellen wieder abgesunken und liegt lediglich im Abstand bis ca. 0,1 m noch bei 11. Die restlichen Zellen des Modells weisen pH-Werte zwischen 7,25 und 8 auf. Nach 100 000 Jahren ist wieder der Ausgangswert des Porenwassers erreicht.

Abb. 6.8 zeigt die Porosität im Bentonit in Abhängigkeit vom Abstand vom Eisenbehälter bis zum Opalinus-Ton für mehrere Zeitpunkte bis 100 000 Jahre. Die Porosität liegt zu Beginn der Analyse bei 39 %. Die Porosität in der Nähe des Eisenbehälters hat nach 1 000 Jahren um 2 % abgenommen. Die Porosität ist nach 10 000 Jahren fast überall im Bentonit deutlich weiter gesunken. Nach 100 000 Jahren ist die Porosität in den Randbereichen zum Eisenbehälter auf 28 % und zum Opalinus-Ton auf 30 % gesunken.

Die Abb. 6.9 zeigt analog zur vorigen Abbildung die Permeabilität des Bentonits. Die Abnahme der Permeabilität korrelieren mit der Abnahme der Porosität. Die Permeabilität in der Nähe des Eisenbehälters und des Opalinus-Tons hat von  $1 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  auf  $0,2 \cdot 10^{-13} \text{ m}^2$  abgenommen.

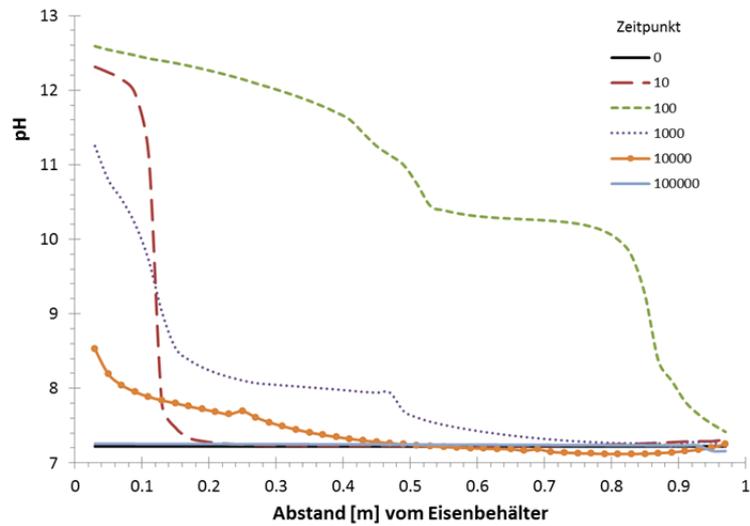


Abb. 6.7 pH-Wert des Porenwassers im Bentonit

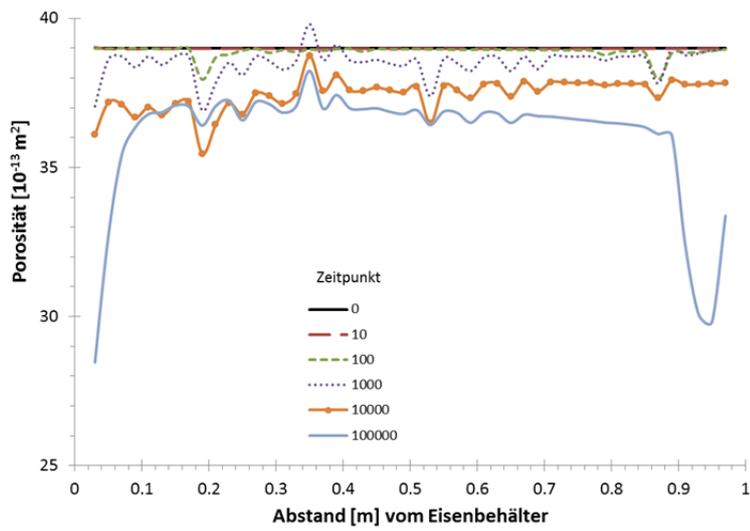


Abb. 6.8 Porosität des Bentonits

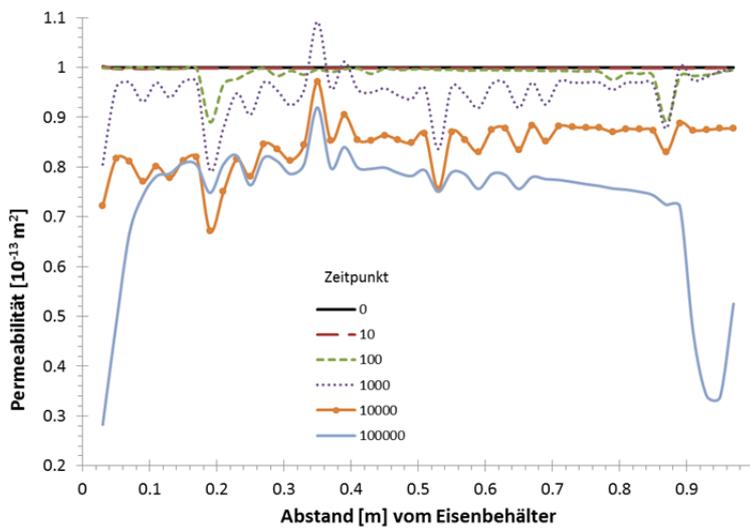


Abb. 6.9 Permeabilität des Bentonits

Die Abb. 6.10 zeigt die Volumenanteile der primären Minerale des Bentonits. Aufgrund der Korrosion des Eisenbehälters verändert sich die Zusammensetzung und der Volumenanteil der primären Minerale im Bentonit.

Die Abb. 6.11 zeigt die Mineralzusammensetzung im Bentonit nach 10 000 Jahren. Eine deutliche Abnahme des Volumenanteils an Montmorillonit ist erkennbar. Die Abnahme ist in der Nähe zum Eisenbehälter ausgeprägter. Der Gesamtanteil der primären Minerale hat auch in der Nähe zum Opalinus-Ton deutlich abgenommen. Nur der Volumenanteil an Quarz ist unverändert. Der Volumenanteil an Albit hat in der Nähe zum Eisenbehälter auf 8,5 % zugenommen und in der Nähe zum Opalinus-Ton auf 3 % abgenommen. Der Volumenanteil von Pyrit hat in der Nähe zum Eisenbehälter auf 2,5 % zugenommen. Der Calcit ist in der Nähe zum Opalinus-Ton vollständig aufgelöst und variiert im restlichen Bentonit zwischen 0,2 – 1,5 %. Der Glimmer ist vollständig aufgelöst.

Die Abb. 6.12 zeigt die Volumenanteile der primären Minerale nach 100 000 Jahren. Der Volumenanteil der primären Minerale hat sich weiter verringert. Der Anteil an Montmorillonit liegt in den ersten 10 cm vom Eisenbehälter zwischen 15 – 35 %. Der Anteil an Quarz bleibt unverändert. Der Anteil an Albit steigt auf 17 % in der Nähe des Eisenbehälters und sinkt mit zunehmender Nähe zum Opalinus-Ton auf 0 ab. Der Anteil an Pyrit in der Nähe des Eisenbehälters steigt auf 2 %. Im restlichen Bentonit variiert der Volumenanteil des Pyrits zwischen 0,3 – 0,4 %. Der maximale Anteil wird in 10 cm Abstand vom Opalinus-Ton erreicht. Die Anteile an Glimmer und Calcit sind vollständig aufgelöst.

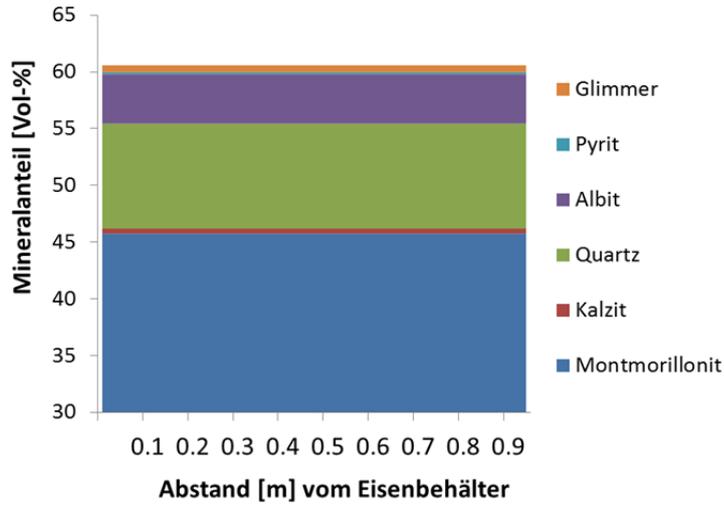


Abb. 6.10 Primäre Mineralanteile des Bentonits

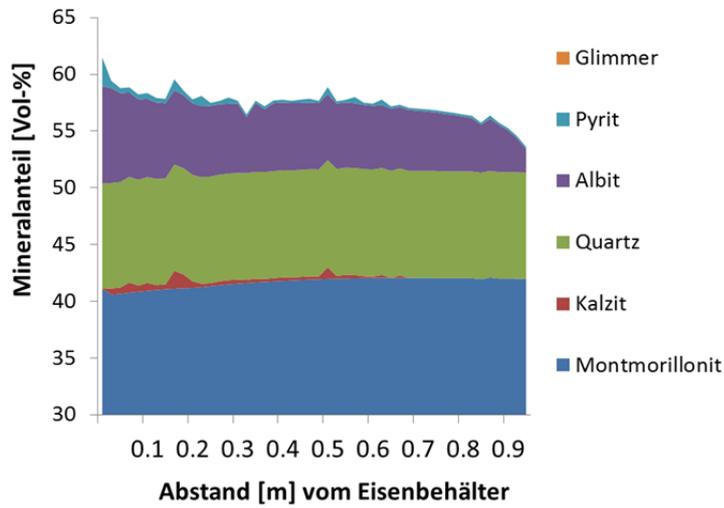


Abb. 6.11 Primäre Mineralanteile des Bentonits nach 10 000 Jahren

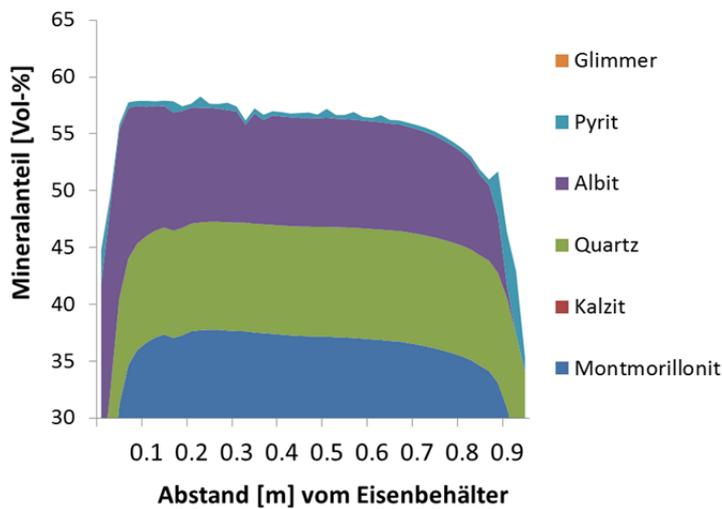


Abb. 6.12 Primäre Mineralanteile des Bentonits nach 100 000 Jahren

Die Simulation untersuchte auch die Bildung und Auflösung sekundärer Minerale. Die Volumenanteile der gebildeten sekundären Minerale sind nach 3 000 Jahren in Abb. 6.13, 10 000 Jahren in Abb. 6.14 und nach 100 000 Jahren in Abb. 6.15 gezeigt. Brucit, Berthierine und Cronstetit traten während der Analyse nicht auf.

Beidellit liegt nach 3 000 Jahren als Hauptkomponente der sekundären Minerale vor. Sein Volumenanteil variiert überwiegend von 1 % bis 1,9 % und steigt am Opalinus-Ton auf 2,25% an. Geringe Mengen von Goethit und Magnetit treten im Bentonit auf. Kleine Anteile von Chamosit treten in der Nähe zum Eisenbehälter auf. Greenalit fällt 0,1 m vom Eisenbehälter entfernt aus und variiert in den Volumenanteilen zwischen 0,17 und 0,3 %. Der Anteil in der Zelle angrenzend zum Opalinus-Ton beträgt nur 0,01 %. Der Volumenanteil von Saponit variiert von 0 bis 0,6 m zwischen 0,16 % und 0,55 %. Die Volumenanteile des Magnetits steigen von 0,002 % bei 0,14 m auf 0,05 % bei 0,45 m an. Magnetit tritt ab 76 cm bis zum Opalinus-Ton nicht auf.

Nach 10 000 Jahren ist der Volumenanteil an Beidellit weiter angestiegen. Mit zunehmendem Abstand vom Eisenbehälter wird der Volumenanteil größer. Klinochlor tritt nur wenige cm vom Eisenbehälter entfernt auf. Kleine Volumenanteile von Saponit und Magnetit sind in Bereichen ausgefallen, deren pH im Porenwasser kleiner 9 ist. Auch Greenalit ist ausgefallen. Goethit und Chamosit sind nicht mehr vorhanden. Magnesit ist nur in Spuren vorhanden.

Nach 100 000 Jahren beträgt der Volumenanteil an Klinochlor und Beidellit 14 % bzw. 11 % in der Nähe des Eisenbehälters. Diese sind die Hauptbestandteile der sekundären Minerale. Der Volumenanteil des Klinochlors nimmt mit zunehmenden Abstand auf 3,5 % ab und steigt wieder auf 30 % in der Nähe zum Opalinus-Ton an. Der Volumenanteil des Magnetits im Bentonit liegt zwischen 0,1 und 0,76 m bei 0,05 %. Andere sekundäre Minerale wurden nicht mehr festgestellt.

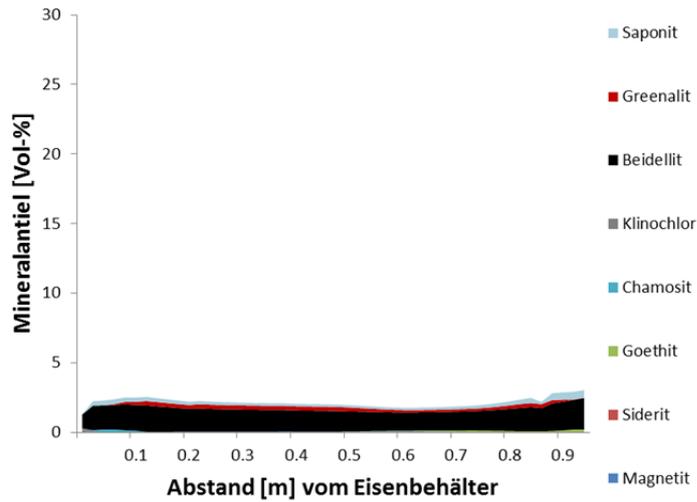


Abb. 6.13 Anteile sekundärer Minerale im Bentonit nach 3 000 Jahren

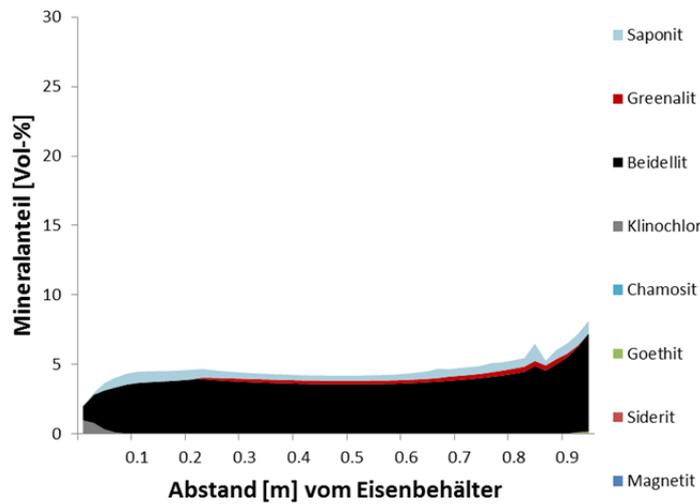


Abb. 6.14 Anteile sekundärer Minerale im Bentonit nach 10 000 Jahren

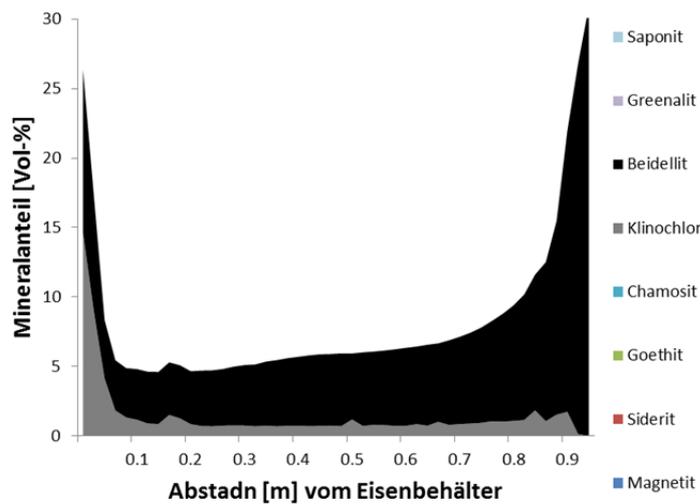


Abb. 6.15 Anteile sekundärer Minerale im Bentonit nach 100 000 Jahren

### **6.2.3 Diskussion**

Es gab deutliche Veränderungen in der Mineralzusammensetzung des Bentonits MX 80 für den Zeitraum bis 100 000 Jahren. Die Diffusion der Korrosionsprodukte führte zur Auflösung und Ausfällung primärer und sekundärer Minerale. Die Änderung des pH-Werts im Porenwasser war vorübergehend. Die Abnahme der Porosität, der Permeabilität und die Veränderung der Mineralzusammensetzung des Bentonits war dauerhaft.

Infolge der Abnahme der Porosität und der Permeabilität in der Nähe des Eisenbehälters dürfte der Transport von Radionukliden durch den Bentonit erschwert sein.

Die Einbeziehung weiterer Prozesse im Detail, wie z. B. Redoxreaktionen, Oberflächenkomplexierung, Kinetik, und Eigenschaften, wie z. B. Temperatur, Druck, sowie eine verbesserte Modellabstraktion, z. B. in 3D, für den reaktiven Transport ist in Entwicklung.



## 7 Zusammenfassung

Die gezeigten Entwicklungen und Ergebnisse zur Übergangsphase sollten in Langzeitsicherheits- und Konsequenzenanalysen als Bestandteil des Sicherheitsnachweises eines Endlagers Eingang finden, da sich Auswirkungen auf grundsätzliche Entscheidungen (Standorteignung) oder Maßnahmen zum Endlagerkonzept ergeben können (z. B. im Sinne einer Optimierung).

Die Einbeziehung weiterer Prozesse und Randbedingungen, die zur Rückhaltung von Radionukliden beitragen können (z. B. Redoxreaktionen, Oberflächenkomplexierung, realitätsnähere thermodynamische Umgebungsbedingungen, verbesserte Modellabstraktion), in Analysen, wie z. B. als reaktive Transportmodellierung, könnte zusätzliche Sicherheitsreserven in der Langzeitsicherheits- und Konsequenzenanalyse aufzeigen. Die gemeinsame numerische Modellierung der verschiedenen physikalischen und geochemischen Prozesse verbessert das grundsätzliche Systemverständnis und damit die Basis zur Bewertung des Langzeitverhaltens eines Endlagers im Sicherheitsnachweis.

Im Vorhaben erfolgten Entwicklungen numerischer Methoden und Untersuchungen von Einzelprozessen und Wechselwirkungen:

1. EOS Modul zur Lösung und Ausfällung von Salz
2. Umströmungsverhalten von Streckenverschlüssen
3. Eindringen von Gas in unverritztes Salzgestein
4. Unsicherheitsanalyse von Prozesswechselwirkungen
5. Kopplung numerischer Simulationen
6. Modellierung des reaktiven Transports von CO<sub>2</sub>
7. Modellierung des reaktiven Transports in Bentonit

Die Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben (VSG) ist die letzte aktuelle Anwendung des Standes von Wissenschaft und Technik für Sicherheitsanalysen eines Endlagerstandortes in Deutschland /FIS 13/. Ergebnisse der oben genannten Studien fanden darin bereits teilweise Berücksichtigung bzw. sollten künftig einen Eingang in Sicherheitsanalysen anderer Standorte finden. Dies wird nachfolgend dargestellt.

## 1. Lösung und Ausfällung von Salz

Die Lösung und Ausfällung von NaCl einschließlich der damit verbundenen Porositäts- und Zustandsänderungen als isothermen Prozess kann im Modul SALTREP für den 2-Phasen-Transport simuliert werden. Darüber hinaus können mit dem SALTREP-Modul eine Hauptgaskomponente und beliebig viele weitere Nebengaskomponenten bzw. Tracer eingeführt werden.

Das physikalisch vorhandene Wasser ist als Phasenkomponente definiert und kann dem System durch Metallkorrosion unter Wasserstoffbildung vollständig entzogen werden. Der Verbrauch des Wassers kann in Verbindung mit der Salzausfällung (NaCl) realitätsnäher simuliert werden. Da NaCl gelöst und ausgefällt werden kann, wird der Einfluss dieser Prozesse auf die Porosität und die thermodynamischen Zustände abgebildet.

Auch die Möglichkeit Systeme mit mehreren Gaskomponenten (z. B. Wasserdampf, Luft, Kohlendioxid und Wasserstoff) zu definieren, führt zu einer realitätsnäheren Abbildung, da bei den gegebenen Bedingungen und Temperaturen im Endlager diese Gase zu erwarten sind.

Diese Prozesse und Zusammenhänge sind im Vorhaben VSG bei der numerischen Simulation nicht erfasst worden, da dieses Modul noch in Entwicklung war.

Eine Anwendung des Moduls nach der Qualitätssicherung in einer Analyse mit TOUGH2 würde die Annahme einer unbegrenzten Wasserverfügbarkeit für die Metallkorrosion sowie Festlegung einer festen Korrosionsrate erübrigen, die eine unbegrenzte Wasserverfügbarkeit und -nachlieferung voraussetzt. Da die Salzausfällung zur Porositäts- und Permeabilitätsverringering führt, wird eine Nachlieferung des verbrauchten Wassers erschwert. Dies würde in erster Näherung zu einer abnehmenden Korrosionsrate und zu einer verringerten Gasbildung führen. Diese hätte Konsequenzen für den Fluidtransport und könnte zu einer Verringerung der potenziellen Strahlenexposition beitragen.

## **2. Umströmungsverhalten von Streckenverschlüssen**

Streckenverschlüsse stellen die wichtigste technische Barriere zur Wiederherstellung des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs dar. Im Rahmen der VSG war ein Nachweis eines über den Wirkzeitraum ausreichenden hydraulischen Widerstandes des Verschlussbauwerks zu erbringen (S. 196, /FIS 13/, /MÜL 12/). Die Gesamtpermeabilität des Verschlussbauwerks ergibt sich aus der Permeabilität der Auflockerungszone und der Kontaktzone und der Permeabilität des Streckenverschlusses.

Der Laugendurchfluss in den Modellrechnungen wurde hauptsächlich vom Fließquerschnitt und der Permeabilität des Streckenverschlusses beeinflusst. Es zeigte sich, dass auch die Zweiphasenfluss-Parameter und die Wahl des Korrekturfaktors für die Kompaktion wenig sensitiv auf den Laugenfluss sind. Die residuale Fluidsättigung wirkt sich erst bei vergleichsweise hohen Werten aus, da zum einen der Fließquerschnitt verringert wird und zum anderen die Auffüllphase schneller abläuft.

Der Streckenverschluss blieb bei den für diese Modellierungen zugrunde gelegten hydraulischen Werten der primäre Strömungspfad gegenüber einer Umströmung.

Dies galt auch obwohl die Modellrechnungen zum Umströmungsverhalten um einen Streckenverschluss möglicherweise den Laugendurchfluss aufgrund der Annahme eines vernetzten Porenraumes überschätzen. Daraus wird gefolgert, dass in der Langzeitsicherheits- und Konsequenzenanalyse der VSG die Ausbreitung von Radionukliden in der gelösten Phase und die daraus resultierende Strahlenexposition auch bei Vernachlässigung einer Umströmung in den Modellrechnungen nicht unterschätzt wird.

## **3. Eindringen von Gas in unverritztes Salzgestein**

Im Rahmen der VSG wurde das Eindringen von Gas in das Salzgestein (d. h. in dilatante Bereiche) bei Druckaufbau über den lithostatischen Druck hinaus unterstellt, ohne die Reichweite des Gases spezifizieren oder den Verbleib des Gases angeben zu können (S. 191, /FIS 13/). Als Mechanismus wurde ein Gaseindringen ohne Makroriss angenommen, da durch die niedrige Druckanstiegsrate ein Makroriss im Steinsalz nicht zu erwarten sei.

Um die Dynamik des Gaseindringens in unverritztes Steinsalz und die Reichweite des Gases im Steinsalz näher zu untersuchen, wurden von /HOT 14a/ stilisierte Gasinjekti-

onsexperimente simuliert. Dabei wurde Steinsalz als poröses Medium ohne Versagensgrenze modelliert, so dass Makrorisse ausgeschlossen waren. Unter diesen Modellannahmen drang sehr wenig Gas in das Gebirge ein. Es kam nicht zu einer großen, plötzlich ins Gebirge eindringenden Gasmenge. Die Simulation eines solchen Gasdurchbruch-Szenarios (ohne Makroriss) könnte allenfalls dadurch gelingen, dass das Modellgebiet um eine für das Injektionsgas erreichbare Gassenke erweitert wird, denn die Rechnungen zeigten trotz der nur kleinen ins Gebirge injizierten Gasmengen teilweise eine unerwartet große Reichweite des Injektionsgases. Darüber hinaus belegte eine Modellrechnung mit reduziertem Bohrlochdurchmesser, dass Effekte der Bohrlochkontur skalenabhängig sind und deshalb nur eingeschränkt von kleinskaligen Versuchen auf die Dimensionen eines Endlagers übertragbar sind.

Aus der Untersuchung kann gefolgert werden, dass das Auftreten eines plötzlichen Gasdurchbruchs in das unverritzte Gebirge trotz der großen Reichweite der injizierten Gase nicht zu erwarten ist, da nur kleine Gasmengen in unverritztes Salzgestein injiziert werden konnten. Sind jedoch Hohlräume in Reichweite vorhanden, könnten gerichtete Gasströmungen auftreten. Die in Sicherheitsanalysen angenommenen Wegsamkeiten in Zweiphasenflussrechnungen beschränken sich häufig auf die vorgegebenen und vernetzten Porenräume in versetzten Kammern und Strecken. Falls Kurzschlüsse zwischen Hohlräumen durch das unverritzte Gebirge auftreten könnten und somit den Transport von Radionukliden mit den Fluiden beeinflussen, wären die bisherigen Annahmen und Ergebnisse zum Zweiphasenfluss in Kammern und Strecken und den damit verbundenen Hohlräumen zu hinterfragen. Eine Langzeitsicherheits- und Konsequenzenanalyse wäre dann unter Berücksichtigung möglicher Kurzschlüsse zwischen Grubenhohlräumen zu erstellen.

#### **4. Unsicherheitsanalyse von Prozesswechselwirkungen**

Unsicherheits- und Sensitivitätsanalysen für Endlagersysteme sind für einphasige hydraulische Berechnungen seit langem Stand von Wissenschaft und Technik und werden dementsprechend auch in Langzeitsicherheitsanalysen der Endlagerung radioaktiver Abfälle genutzt. Die Analysen sind oft deterministisch. Die hier durchgeführte probabilistische Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse ausgewählter Parameter basierend auf Zweiphasenflussberechnungen für ein vollständiges Endlagersystem (VSG) war mit akzeptablen Rechenzeiten möglich und zeigte einen überraschenden Zusammenhang auf. Daraus wird gefolgert, dass Daten- und Parameterungewissheiten in Langzeitsicherheits- und Konsequenzenanalysen probabilistisch untersucht werden sollten. Die

grundsätzlichen Ungewissheiten in den vorauszusetzenden Szenarien auf Basis eines FEP-Katalogs sind allerdings einer numerischen Unsicherheits- und Sensitivitätsanalyse nicht zugänglich und können nur verbal-argumentativ eingeschätzt werden.

## **5. Kopplung numerischer Simulationen**

Die Kopplung des einphasigen Strömungstransportcodes MARNIE mit dem geochemischen Rechencode PHREEQC war erfolgreich. Die Ergebnisse der Testrechnungen stellen aufgrund der getroffenen Annahmen und der fiktiven Nuklidkette eine Machbarkeitsstudie dar. Da die grundsätzliche Machbarkeit gezeigt werden konnte, sind unter Erweiterung der thermodynamischen Datenbasis Anwendungen in der Langzeitsicherheitsanalyse mit Quelltermen und zur Analyse der geochemischen Wechselwirkung der Radionuklide mit Versatz und Dammbaustoffen möglich. Damit könnten in zukünftigen Analysen Sicherheitsreserven identifiziert werden.

## **6. Modellierung des reaktiven Transports von CO<sub>2</sub> im Versatz**

Die eindimensionale Transportmodellierung mit PHREEQC zeigte, dass die Einbindung der geochemischen Gleichgewichtsprozesse in Lösung und Festphase zusätzlich zur physikalischen Gaslöslichkeit (Henry-Gesetz) in der numerischen Sicherheitsanalyse zu einer Rückhaltung von CO<sub>2</sub> in Anwesenheit von hochsalinaren Lösungen führt. Aufgrund der geochemischen Gleichgewichte liegen neben CO<sub>2</sub>(aq) weitere aquatische Spezies und Festphasen abhängig von der Lösungszusammensetzung vor. Dies führt zu einer zeitweisen Immobilisierung von CO<sub>2</sub> und somit letztlich auch von <sup>14</sup>CO<sub>2</sub>. Die Verzögerung des Transportes von <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> erhöht wiederum den Zeitraum, der für dessen radioaktiven Zerfall innerhalb des einschlusswirksamen Gebirgsbereichs zur Verfügung steht.

Demnach würde die potentielle Strahlenexposition durch <sup>14</sup>C geringer ausfallen als in der Konsequenzenanalyse der VSG berechnet /LAR 13/. Für eine detaillierte Bestimmung in einer Sicherheitsanalyse sollte deshalb die Transportmodellierung mit einem geochemischen Rechencode gekoppelt werden, um die geochemischen Wechselwirkungen bei einem Transport im Endlager zu berücksichtigen (z. B. TOUGH2 mit Modul TOUGHREACT oder MARNIE mit PHREEQC). Die grundsätzliche Machbarkeit der Kopplung zwischen PHREEQC und dem Transportprogramm MARNIE wurde bereits gezeigt /FIH 14/.

## **7. Modellierung des reaktiven Transports in Bentonit**

Der reaktive Transport von Eisenkorrosionsprodukten im Bentonit MX 80 wurde anhand eines eindimensionalen Modells numerisch für einen Zeitraum bis 100 000 Jahren studiert. Dabei wurde Diffusion, Auflösung und Ausfällung primärer und sekundärer Minerale im Bentonit beobachtet. Der pH-Wert der Porenlösung, die Mineralzusammensetzung, die Porosität und die Permeabilität änderten sich deutlich. Die Porosität und Permeabilität in der Nähe des Eisenbehälters sank kontinuierlich. Daraus wurde gefolgert, dass ein denkbarer Abtransport von Radionukliden aus dem Behälter in den umgebenden Bentonit und darüber hinaus erschwert wird. Der reaktive Transport ist daher in Langzeitsicherheitsanalysen eines Konzepts für Standort im Tonstein als bedeutender Prozess zu berücksichtigen.

## Literaturverzeichnis

- /BAU 00/ Baudoin, P., Gay, D., Certes, C., Serres, C., Alonso, J., Lührmann, L., Martens, K.-H., Dodd, D., Marivout, J., Vieno, T.: Spent fuel disposal Performance Assessment (SPA Project). Final Report EUR 19132 EN, European Commission, Community Research, Nuclear Science and Technology, 2000.
- /BET 08/ Bethke, C. M.: Geochemical and Biogeochemical Reaction Modeling. 543 Seiten, ISBN 978-0-521-15570-0, Cambridge University Press: New York, 2008.
- /BIS 14/ Bischofer, B., et., al.: Chemical behavior and retention of long-lived fission and activation products in the near field of a nuclear waste repository. GRS in Vorbereitung, GRS-xxx, ISBN 978-3-xxx, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2014.
- /BMU 10/ Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und Reaktorsicherheit (BMU): Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle. Bonn, Stand: 30. September 2010.
- /BOE 00/ Boese, B., Hirsekorn, R.-P., Storck, R.: Vergleich der Rechenprogramme LOPOS und MARNIE. GRS-169, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Braunschweig, Oktober 2000.
- /BOL 11/ Bollingerfehr, W., Filbert, W., Lerch, C., Tholen, M.: Endlagerkonzepte. Bericht zum Arbeitspaket 5, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-272, ISBN 978-3-939355-48-9, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2011.
- /BOL 12/ Bollingerfehr, W., Filbert, W., Dörr, S., Herold, P., Lerch, C., Burgwinkel, P., Charlier, F., Thomauske, B., Bracke, G., Kilger, R.: Endlagerauslegung und -optimierung. Bericht zum Arbeitspaket 6, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-281, ISBN 978-3-939355-57-1, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2012.

- /BRA 11a/ Bracke, G.: Provisional Safety Analysis Gorleben, 13th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere - Migration'11: Peking, 2011.
- /BRA 11b/ Bracke, G.: Preliminary Safety Analysis Gorleben, ISBN 978-3-86644-912-1, KIT Scientific Publishing, Proceedings of the International Workshop ABC-Salt (II) and HiTAC 2011 (KIT Scientific Reports ; 7625) Karlsruhe.
- /BRA 13a/ Bracke, G.: Preliminary Safety Assessment of the Gorleben Site. S. 2, ABC-Salt Workshop III, Actinide Brine Chemistry, April 15-17, 2013: Santa Fe.
- /BRA 13b/ Bracke, G.: C-14 as carbon dioxide and saline solutions of a HLW repository. S. 1, ABC-Salt Workshop III, Actinide Brine Chemistry, April 15-17, 2013: Santa Fe.
- /BRA 13c/ Bracke, G., Fischer-Appelt, K.: Preliminary Assessment of the Gorleben Site, Book of Abstracts, 14th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere“ (MIGRATION): The Brighton Centre, UK.
- /BRA 13d/ Bracke, G., Fischer-Appelt, K.: Preliminary Safety Analysis of the Gorleben Site. In: The Safety Case for Deep Geological Disposal of Radioactive Waste: 2013 State of the Art, Vol. in prep., NEA (Editor), NEA: Paris, 2013d.
- /BRA 14/ Bracke, G.: Gekoppelte (T)HMC-Prozesse eines Endlagers für Wärme entwickelnde radioaktive Abfälle in der Übergangsphase – Synthese und Abschlussbericht. GRS-350, ISBN 978-3-944160-30-3, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln.
- /CAD 96/ Cadelli, N., Escalier des Orres, P., Marivoet, J., Martens, K.-H., Prij, J.: Evaluation of elements responsible for the effective engaged dose rates associated with the final Storage of radioactive waste: Everest project. Summary Report EUR 17122 EN, 296 Seiten, European Commission, 1996.

- /CAR 07/ Carlson, L.: Experimental studies of the interactions between anaerobically corroding iron and bentonite. Physics and Chemistry of the Earth, Vol. 32, S. 334-345.
- /COR 54/ Corey, A. T.: The Interrelation Between Gas and Oil Relative Permeabilities. Producers Monthly, No. November S. 38-41, 1954.
- /DEL 10/ Delta h: Spring 4.0 - Benutzerhandbuch. Delta h: Witten, 2010.
- /EUR 11/ RICHTLINIE 2011/70/EURATOM DES RATES vom 19. Juli 2011 über einen Gemeinschaftsrahmen für die verantwortungsvolle und sichere Entsorgung abgebrannter Brennelemente und radioaktiver Abfälle.
- /FIH 14/ Fischer, H., Seher, H., Bracke, G.: Untersuchungen zur Kopplung des Transportprogrammes MARNIE mit dem geochemischen Rechencode PHREEQC. GRS-334, ISBN 978-3-944161-14-3, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln.
- /FIS 07/ Fischer, H., Martens, K.-H., Moog, H.: Kopplung des Transportprogrammes MARNIE mit der Programmierbibliothek ChemApp zur Durchführung thermodynamischer Gleichgewichtsrechnungen. GRS-A-3264, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2007.
- /FIS 13/ Fischer-Appelt, K., Baltés, B., Buhmann, D., Larue, J., Mönig, J.: Synthesebericht. Bericht zum Arbeitspaket 13, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben GRS-290, ISBN: 978-3-939355-66-3, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, März 2013.
- /FRI 13/ Frieling, G., Bracke, G.: TOUGH2 Modellierung Prä- und Postprozessing. GRS-315, ISBN 978-3-939355-94-6, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Cologne, 2013
- /FRI 14/ Frieling, G., Bracke, G.: TOUGH2 Modellrechnungen zum Umströmungsverhalten von Streckenverschlüssen in einem salinaren Endlager. GRS-320, ISBN 978-3-939355-99-1, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Cologne.

- /GEN 80/ Van Genuchten , M. T.: A Closed-Form Equation for Predicting the Hydraulic Conductivity of Unsaturated Soils. Soil Sci. Soc., Vol. 44, S. 892 - 898.
- /GOM 97/ Gomit, J. M., Hirsekorn, R.-P., Martens, K.-H., Prij, J.: Evaluation of elements responsible for the effective engaged dose rates associated with the final storage of radioactive waste: EVEREST project. Vol. 3b, Final report EUR 17449/3b EN, European Commission: Luxemburg, 1997.
- /HAN 13a/ Hansmeier, C., Bracke, G., Reichert, B.: Numerical Modeling of Iron-Corrosion and Interaction with Bentonite in Clay Formations. S. 324-325, Book of Abstracts, 14th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere“ (MIGRATION): The Brighton Centre, UK.
- /HAN 13b/ Hansmeier, C., Bracke, G., Reichert, B.: Numerical Modeling of Iron-Corrosion and Interaction with Bentonite. Mineralogical Magazine, Vol. 77, No. 5, S. 1.
- /HAN 14a/ Hansmeier, C., Bracke, G., Reichert, B.: Numerical Modeling of Iron Corrosion and Interaction with Bentonite in Clay Formations. S. 319-332, Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe, International Conference on the Performance of Engineered Barriers: Hannover, Germany, 2014.
- /HAN 14b/ Hansmeier, C.: Modellierung der Eisenkorrosion und der Wechselwirkungen mit Bentonit mit ToughReact. In Vorbereitung, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln.
- /HAN 14c/ Hansmeier, C.: Kurzbeschreibung von PetraSim 5 mit TOUGHREACT 1.2 und Modellaufbau. GRS-344, ISBN 978-3-944161-24-2, 80 Seiten, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln.
- /HEN 03/ Henry, W.: Experiments on the Quantity of Gases Absorbed by Water at Different Temperatures and under Different Pressures. Philosophical Transactions of the Royal Society of London, Vol. 1, S. 245.

- /HER 11/ Herbert, H.-J., Kasbohm, J., Lan, N. T., Thao, H. T. M., Xie, M.: Fe-Bentonite Experiments and Modelling of the Interactions of Bentonites with Iron. GRS-295, ISBN 978-3939355-72-4, GRS mbH: Brunswick, Germany.
- /HOT 14a/ Hotzel, S.: Gasausbreitung in unverritztes Steinsalz, Hydro-mechanisch gekoppelte Modellrechnungen mit dem Simulationstool TFC. GRS - 339, ISBN 978-3-944161-19-8, GRS mbH: Köln.
- /HOT 14b/ Hotzel, S.: Das THM-Simulationstool TFC. in Vorbereitung, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH.
- /IAEA 06/ International Atomic Energy Agency (IAEA): Geological Disposal of Radioactive Waste: Safety Requirements. IAEA Safety Standards Series No. WS-R-4, ISBN 92-0-105705-9: Wien, 2006.
- /ITA 09/ ITASCA: FLAC3D: Fast Lagrangian Analysis of Continua in 3 Dimensions. 4. Edition, Version 4.0, ITASCA Consulting Group Inc.: Minneapolis, Minnesota, USA, 2009.
- /JOH 12/ Johnson, L., Spahiu, K., Boulanger, D., Martin, C., Wollrath, J., Martinez-Esparza, A., Bracke, G., Wood, P., Comments and recommendations of the EUG of the FIRST-Nuclides Project. 2012.
- /KLO 08/ Kloos, M.: SUSA Software for Uncertainty and Sensitivity Analyses, User's Guide and Tutorial. GRS - P 5, GRS mbH: Köln.
- /KOC 12/ Kock, I., Eickemeier, R., Frieling, G., Heusermann, S., Knauth, M., Minkley, W., Navarro, M., Nipp, H.-K., Vogel, P.: Integritätsanalyse der geologischen Barriere. Bericht zum Arbeitspaket 9.1, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-286, ISBN: 978-3-939355-62-5, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2012.
- /KOC 14/ Kock, I., Hotzel, S.: Probabilistische Analysen zum Zweiphasenfluss in einem salinaren Endlager. GRS-325; ISBN 978-3-944161-05-1, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln.

- /LAM 97/ Lambers, L.: Rechnungen von Modellfällen mit dem Programmcode MARNIE. GRS-A-2497, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, August 1997.
- /LAR 13/ Larue, J., Baltés, B., Fischer, H., Frieling, G., Kock, I., Navarro, M., Seher, H.: Radiologische Konsequenzenanalyse. Bericht zum Arbeitspaket 10, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-289, ISBN 978-3-939355-65-6, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2013.
- /LEE 11/ Lee, L., Goldhaber, M.: The Geochemist's Workbench Computer Program. erreichbar unter: [http://crustal.usgs.gov/projects/aqueous\\_geochemistry/geochemists\\_workbench.html](http://crustal.usgs.gov/projects/aqueous_geochemistry/geochemists_workbench.html).
- /MAR 97/ Martens, K.-H., Fischer, H.: Orientierende und vergleichende Analyse zum Nuklidtransport in dem salinaren Endlager Morsleben. GRS-A-2461, 98 Seiten, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, April 1997.
- /MAR 02/ Martens, K.-H., Fischer, H., Romstedt, P.: Beschreibung des Rechenprogrammes MARNIE. 135 Seiten, GRS-A-3027, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, Juni 2002.
- /MAR 10/ Marty, N. C. M., Fritz, B., Clément, A., Michau, N.: Modeling the long term alteration of the engineered bentonite barrier in an underground radioactive waste repository. Applied Clay Science, Vol. 47, S. 82-90, 2010.
- /MAT 05/ Mathworks: Learning Matlab 7. MATLAB Manual. 336 Seiten, ISBN 0-9755787-6-6, Mathworks Inc., 2005.
- /MRU 11/ Mrugalla, S.: Geowissenschaftliche Langzeitprognose. Bericht zum Arbeitspaket 2, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-275, ISBN 978-3-939355-51-9, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, Juli 2011.

- /MÜL 12/ Müller-Hoeppe, N., Breustedt, M., Czaikowski, O., Wieczorek, K., Wolf, J. W.: Integrität geotechnischer Barrieren – Teil 2: Vertiefte Nachweisführung. Bericht zum Arbeitspaket 9.2, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-288, ISBN: 978-3-939355-64-9, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2012.
- /NAG 02/ NAGRA, Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle: Konzept für die Anlage und den Betrieb eines geologischen Tiefenlagers, Entsorgungsnachweis für abgebrannte Brennelemente, verglaste hochaktive sowie langlebige mittelaktive Abfälle. Projekt Opalinuston NTB 02-02, nagra: Wettingen, Schweiz, Dezember 2002.
- /NAG 04/ NAGRA, Nationale Genossenschaft für die Lagerung radioaktiver Abfälle: Effects of Post-disposal Gas Generation in a Repository for Spent Fuel, High-level Waste and Long-lived Intermediate Level Waste Sited in Opalinus Clay. Technical Report 04-06, nagra: Wettingen, Schweiz.
- /NAV 13a/ Navarro, M., Beuth, T., Bracke, G., Fischer, H., Hotzel, S., Kock, I., Seher, H.: Forschung und Entwicklung zum Nachweis der Langzeitsicherheit von tiefen geologischen Endlagern, Abschlussbericht zum Vorhaben 3609R03210. GRS-A-3705, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2013.
- /NAV 13b/ Navarro, M.: Handbuch zum Code TOUGH2-GRS.00a, Erweiterungen des Codes TOUGH2 zur Simulation von Strömungs- und Transportprozessen in Endlagern. GRS-310, ISBN 978-3-939355-89-2, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, 2013.
- /NAV 14/ Navarro, M.: Das EOS-Modul SALTREP für den Code TOUGH2-GRS. GRS-321, ISBN 978-3-944161-01-3, 65 p. Seiten, 2014.
- /NEA 04/ Organization for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency (OECD-NEA): Post-Closure Safety Case for Geological Repositories. NEA No. 3679, ISBN 92-64-02075-6: Paris, 2004.

- /NEA 07/ Organization for Economic Co-operation and Development - Nuclear Energy Agency (OECD-NEA): Symposium "Safety cases for the deep disposal of radioactive waste: Where do we stand?". ISBN 978-92-64-99050-0, Nuclear Energy Agency PARIS, France, 23-25 January 2007.
- /PAL 04/ Palandri, J. L., Kharaka, Y. K.: A Compilation of rate parameters of water mineral interaction kinetics for application to geochemical modeling. USGS: California, USA, 2004.
- /PAR 99/ Parkhurst, D. L., Appelo, C. A. J.: User's Guide to PHREEQC (Version 2) - A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport and inverse geochemical calculations. Water-Resources Investigation Report 99-4259, 312 Seiten, U.S. Department of the Interior, U.S. Geological Survey: Denver, 1999.
- /PAR 13/ Parkhurst, D. L., Appelo, C. A. J.: Description of input and examples for PHREEQC version 3—A computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations. U.S. Geological Survey Techniques and Methods, Vol. 6 - A43, available only at <http://pubs.usgs.gov/tm/06/a43>, 497 Seiten, U.S. Department of the Interior, U.S. Geological Survey: Denver, 2013.
- /PAT 12/ Patel, R., Punshon, C., Nicholas, J., Bastid, P., Zhou, R., Schneider, C., Bagshaw, N., Howse, D., Hutchinson, E., Asano, R., King, F.: Canister Design Concepts for Disposal of Spent Fuel and High Level Waste. In: Technical Report 12-06, Editor: nagra ISSN 105-2636, 12-06, National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste: Wettingen, 2012.
- /PEI 11a/ Peiffer, F., McStocker, B., Gründler, D., Ewig, F., Thomauske, B., Havenith, A., Kettler, J.: Abfallspezifikation und Mengengerüst. Basis Ausstieg aus der Kernenergienutzung (Juli 2011). Bericht zum Arbeitspaket 3, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-278, ISBN 978-3-939355-54-0, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, September 2011.

- /PEI 11b/ Peiffer, F., McStocker, B., Gründler, D., Ewig, F., Thomauske, B., Havenith, A., Kettler, J.: Abfallspezifikation und Mengengerüst. Basis Laufzeitverlängerung der Kernkraftwerke (September 2010). Bericht zum Arbeitspaket 3, Vorläufige Sicherheitsanalyse für den Standort Gorleben, GRS-274, ISBN 978-3-939355-50-2, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln, Juli 2011.
- /PET 07/ Peterson, S., Hack, K.: The thermochemistry library ChemApp and its applications. *Journal of Materials Research*, Vol. 98, No. 10, S. 935-945, DOI: 10.3139/146.101551, 2007.
- /POP 12/ Popp, T., Salzer, K., Schulze, O., Stührenberg, D.: Hydromechanische Eigenschaften von Salzgrusversatz - Synoptisches Prozessverständnis und Datenbasis. Memorandum, Institut für Gebirgsmechanik (IFG), Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR): Leipzig, 30.05.2012.
- /PRU 99/ Pruess, K., Oldenburg, C., Moridis, G.: TOUGH2 User's Guide, Version 2.0. Paper LBNL-43134, 198 Seiten, LBNL-43134, Lawrence Berkeley National Laboratory: Berkeley, November 1999.
- /SEH 13/ Seher, H., Fischer, H., Larue, J.: Inventory of a deep geological radioactive waste repository in a salt formation, Book of Abstracts, 14th International Conference on the Chemistry and Migration Behaviour of Actinides and Fission Products in the Geosphere“ (MIGRATION): The Brighton Centre, UK.
- /WER 08/ Wersin, P., Birgersson, M., Olsson, S., Karnland, O., Snellman, M., Oy, S., Oy, R.: Impact of corrosion-derived iron on the bentonite buffer within the KBS-3H disposal concept. SKB Rapport R-08-34, ISSN 1402-3091: Stockholm, Sweden.
- /WEY 13/ Weyand, T.: Modellierung des Transportes von CO<sub>2</sub> in hochsalinaren Lösungen eines Endlagers mit PHREEQC. Masterarbeit, 67 Seiten, Steinmann Institut, Universität Bonn, Bonn, Bonn, Oct. 2013.

- /WEY 14/ Weyand, T., Bracke, G., Reichert, B.: PHREEQC – Modellierung des Transportes von CO<sub>2</sub> in hochsalinaren Lösungen eines Endlagers. GRS-323, ISBN 978-3-944161-03-7, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH: Köln.
- /XU 06/ Xu, T., Sonnenthal, E., Spycher, N., Pruess, K.: TOUGHREACT User's Guide: A Simulation Program for Non-isothermal Multiphase reactive Geochemical Transport in Variably Saturated Geologic Media. Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California: Berkeley, California, USA.
- /XU 14/ Xu, T., Sonnenthal, E., Spycher, N., Zheng, L.: TOUGHREACT V3.0-OMP Reference Manual: A Parallel Simulation Program for Non-Isothermal Multiphase Geochemical Reactive Transport. LBNL-Draft, 141 Seiten: Earth Sciences Division, Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley, CA 94720, 2014.

## Abbildungsverzeichnis

Abb. 2.1	Visualisierung mit FLAC3D .....	8
Abb. 2.2	Schematische Abbildung des Workflows eines TOUGH2-Rechenlaufes und dessen Auswertung in der GRS .....	9
Abb. 2.3	Elemente des Netzwerkes in MARNIE /MAR 02/ .....	15
Abb. 2.4	Kompartimente in PHREEQC und von GRS genützte Interaktionen .....	18
Abb. 3.1	Gittermodell mit einem rechteckigen Querschnitt.....	24
Abb. 3.2	Modellgebiet „Tortenstück“ .....	26
Abb. 4.1	Aufsicht auf das verwendete Grubengebäudemodell.....	29
Abb. 4.2	Zeitreihe des RGI aus 100 Modellläufen .....	31
Abb. 6.1	Vergrößerter Ausschnitt des Einlagerungsfeldes Ost 11 .....	40
Abb. 6.2	Konzeptionelles Modell .....	40
Abb. 6.3	Konzentration von CO <sub>2</sub> (aq) (rot) und C(aq) (schwarz) in Abhängigkeit vom Zeitschritt in Zelle 17 (a) und Zelle 39 (b).....	42
Abb. 6.4	Stoffmenge an Magnesit in der Richtstrecke (Zellen 17 – 39) in Abhängigkeit vom Zeitschritt .....	42
Abb. 6.5	Schematische Darstellung der technischen Barriere mit Bentonit .....	44
Abb. 6.6	1D Modell (Behälterwandung: rot, Bentonit: weiß, Opalinus-Ton: blau). Die Gesamtlänge ist 1 m.....	45
Abb. 6.7	pH-Wert des Porenwassers im Bentonit .....	48
Abb. 6.8	Porosität des Bentonits .....	48
Abb. 6.9	Permeabilität des Bentonits .....	48
Abb. 6.10	Primäre Mineralanteile des Bentonits .....	50
Abb. 6.11	Primäre Mineralanteile des Bentonits nach 10 000 Jahren.....	50
Abb. 6.12	Primäre Mineralanteile des Bentonits nach 100 000 Jahren.....	50
Abb. 6.13	Anteile sekundärer Minerale im Bentonit nach 3 000 Jahren.....	52
Abb. 6.14	Anteile sekundärer Minerale im Bentonit nach 10 000 Jahren.....	52
Abb. 6.15	Anteile sekundärer Minerale im Bentonit nach 100 000 Jahren.....	52



## Tabellenverzeichnis

Tab. 1.1	Publikationen zum Vorhaben 3610 R 03230.....	4
Tab. 6.1	Mineralzusammensetzung des MX 80 Bentonits und Auflösungsraten ....	46
Tab. 6.2	Porenwasserzusammensetzung in Bentonit und Opalinus-Ton.....	46
Tab. 6.3	Sekundäre Minerale .....	46

**Gesellschaft für Anlagen-  
und Reaktorsicherheit  
(GRS) mbH**

Schwertnergasse 1  
**50667 Köln**

Telefon +49 221 2068-0

Telefax +49 221 2068-888

Forschungszentrum

**85748 Garching b. München**

Telefon +49 89 32004-0

Telefax +49 89 32004-300

Kurfürstendamm 200

**10719 Berlin**

Telefon +49 30 88589-0

Telefax +49 30 88589-111

Theodor-Heuss-Straße 4

**38122 Braunschweig**

Telefon +49 531 8012-0

Telefax +49 531 8012-200

[www.grs.de](http://www.grs.de)