

Auftragnehmer: Institut für Nukleare Entsorgung (INE)  
Forschungszentrum Karlsruhe

Titel: Experimentelles Programm zur Bestätigung der  
Ergebnisse von standortspezifischen  
Modellrechnungen für die Schachtanlage Asse

Verfasser: Johannes Lützenkirchen  
Ekkehard Korthaus  
Volker Metz  
Bernhard Kienzler

GSF-Bestellung: 31/182312/02

Auftrag: 45000052

Überprüfung der Gültigkeit thermodynamischer  
Rechnungen für die Einlagerungskammern  
bei Lösungsaustausch

Anmerkung:

Dieser Bericht ist von FZK-INE gemäß Angebot vom 25. Oktober 2002 im Auftrag des GSF-Forschungszentrums/Forschungsbergwerk Asse erstellt worden. Der Auftraggeber behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit seiner Zustimmung zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt oder Dritten zugänglich gemacht werden.

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

Exemplar für BMBF und BMU

## Zusammenfassung

Der vorliegende Bericht stellt Möglichkeiten vor, die es erlauben, die Gültigkeit der Ergebnisse thermodynamischer Rechnungen bei Berücksichtigung von Lösungsaustausch zwischen den Einlagerungskammern der Schachanlage Asse zu überprüfen. Im Rahmen der Rechnungen zur Ermittlung des Radionuklidquellterms werden die Einlagerungskammern als „quasi-geschlossene Systeme“ (QCS) betrachtet. Der QCS-Ansatz wird zur geochemischen Modellierung von Radionuklidlöslichkeiten in den Einlagerungskammern der Schachanlage Asse herangezogen, wobei davon ausgegangen wird, dass die Austauschvorgänge mit der Umgebung der betrachteten Einlagerungskammern hinreichend langsam sind und das Ausmaß des Stoffaustausches hinreichend gering ist. Neben der geochemischen Modellierung, kommt der Modellansatz auch direkt oder indirekt in den Abschätzungen zum Umsatz der organischen Kohlenstoffverbindungen oder zur Gasbildung durch Korrosion von Metallen zur Anwendung. Der Modellansatz „quasi-geschlossenes System“ ist eng mit dem Sicherheitskonzept für die Schachanlage Asse verbunden. Mit Hilfe des QCS-Ansatzes werden Konzentrationsgrenzen für den Radionuklidaustrag ermittelt. Detaillierte Analysen der Austauschvorgänge zwischen den Kammern (so genannte Detailmodellierungen) ergaben, dass Lösungsflüsse über hydraulische Wegsamkeiten zwischen Kammern und Bereichen auftreten können, die nicht a priori vernachlässigt werden können. Daher ist die Gültigkeit des gewählten Modellansatz „quasi-geschlossenes System“ nicht offensichtlich und es ist erforderlich, die Gültigkeit der Ergebnisse der geochemischen Modellrechnungen unter Berücksichtigung von Lösungsaustauschprozessen zwischen den Einlagerungskammern bzw. Einlagerungsbereichen zu überprüfen.

Es werden die Annahmen, die den Rechnungen zu Grunde liegen, zusammengefasst und ihre Gültigkeit für die Einlagerungskammern bewertet. Mittlere Aufenthaltszeiten von Lösungen in den Einlagerungskammern werden in Relation zu experimentell ermittelten Werten der Equilibrierungszeiten der relevanten Stoffsystemen gesetzt. Der Vergleich zeigt, dass sich die unterstellten Gleichgewichte innerhalb der mittleren Aufenthaltszeiten einstellen und somit eine Grundvoraussetzung für die Anwendung des QCS-Ansatz auf die Einlagerungskammern gegeben ist.

Ein entscheidendes Kriterium zur Beurteilung des Einflusses der Austauschvorgänge ist die Veränderung berechneter Radionuklidlöslichkeiten. Für verschiedene Zeitpunkte werden daher die geochemischen Bedingungen und die resultierenden Löslichkeiten von U(VI) und Am(III) unter Berücksichtigung des für die jeweiligen Kammern relevanten Lösungsaustauschs berechnet. Die Modellrechnungen zeigen, dass durch die Austauschvorgänge in der Mehrzahl der Kammern auch über längere Zeiten keine signifikanten Veränderungen in den berechneten Radionuklidlöslichkeiten auftreten, im

Vergleich zu den Fällen, die ohne Berücksichtigung der Austauschvorgänge berechnet wurden.

Darüber hinaus werden Abweichungen der geochemischen Eingangsdaten gegenüber dem Standardrechenfall<sup>1</sup> unterstellt und unterschiedliche geochemische Szenarien infolge der Bandbreiten der Eingangsdaten berechnet. Es zeigt sich, dass Unsicherheiten in den Stoffinventaren zu signifikanten Veränderungen führen können, wobei der pH-Wert als Indikator verwendet wurde. Die Bandbreiten wurden durch Vorgabe von Extremfällen bezüglich der Stoffinventardaten analysiert.

Mittels einer weiteren Modellierungsmethode wird geprüft, inwieweit ein unvollständiger Umsatz der Stoffinventare zu signifikanten Veränderungen im geochemischen Milieu gegenüber dem Standardrechenfall führt. Kammerspezifische Rechnungen zu einem graduellen Umsatz, d.h. wenn nur ein Teil des Standardrechenfall-Lösungsvolumens mit den Feststoffen reagiert, zeigen, dass dies nur wenig Einfluss auf den pH-Wert hat (im Vergleich zum pH-Wert im Standardrechenfall).

Ein robustes geochemisches Milieu wird nach der Umsetzung der geplanten Verfüllmaßnahmen in den Einlagerungskammern erwartet. Die geforderte Robustheit des Gesamtsystems ergibt sich auch aus Modellrechnungen, bei denen die Kammerinventare und die Volumina an Schutzfluid variiert wurden.

---

<sup>1</sup> Der Standardrechenfall wird ausführlich in dem Abschlussbericht zur Ermittlung des Radionuklidquellterms auf Grundlage der Verfüllkonzepte G und MAW erläutert (Metz et al., 2006). Im Standardrechenfall wird die langfristig zu erwartende vollständige Umsetzung der festen Kammerinhaltsstoffe im Schutzfluid betrachtet und die Umsetzung des stofflichen Inventars (Mittelwerte der Stoffmengen) im initialen Lösungsvolumen simuliert.

## Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung .....	8
2	Geochemisch basierter Langzeitsicherheitsnachweis auf Grundlage eines quasi-geschlossenen Systems .....	10
2.1	Beschreibung des Radionuklidverhaltens im Multibarrierensystem eines Endlagers .....	10
2.2	Geochemische Prozesse in den Einlagerungskammern .....	11
2.3	Modellansatz zur Berechnung des geochemischen Milieus und der Radionuklidlöslichkeiten .....	12
2.3.1	Definition und Randbedingungen eines quasi-geschlossenen Systems .....	12
2.3.2	Eingeschränkte Modellsysteme .....	13
2.3.3	Allgemeine Unterschiede zwischen den Modellsystemen und einem realen System – Annahmen und Beschränkungen der Modellrechnungen.....	14
2.4	Berechnungsverfahren .....	15
2.4.1	Verfahren zur Ermittlung des Radionuklidquellterms im Standardrechenfall.....	15
2.4.2	Näherungsverfahren zur Behandlung des Lösungsaustausches .....	17
3	Vorgehensweise zur Bewertung des Gültigkeitsbereichs von thermodynamischen Rechnungen .....	21
3.1	Stoffaustausch im Zusammenhang mit Rechnungen für ein quasi-geschlossenes System – Vergleich von Aufenthalts- mit Equilibrierungszeiten.....	22
3.2	Unsicherheiten bezüglich Gleichgewichtseinstellungen und berücksichtigter Stoffinventare .....	23
3.3	Robustheit des Systems hinsichtlich des Radionuklidquellterms .....	24
4	Ergebnisse und Diskussion .....	26
4.1	Modellierungsergebnisse für den Standardrechenfall .....	26
4.2	Relevante Umsetzungsraten für die geochemischen Reaktionen in den Einlagerungskammern.....	26
4.2.1	Umsetzung von Kammerinhaltsstoffen in Abwesenheit von anorganischen Kohlenstoffverbindungen .....	27
4.2.2	Umsetzung von Kammerinhaltsstoffen in Gegenwart von anorganischen Kohlenstoffverbindungen .....	28
4.2.3	Umsetzung des organischen Kohlenstoffs zu anorganischen Kohlenstoffverbindungen .....	30
4.3	Austauschvorgänge zwischen den Kammern und Aufenthaltszeiten der Lösungen.....	31
4.4	Abflüsse vor der Gleichgewichtseinstellung .....	33

4.5	Beurteilung der Gültigkeit der thermodynamischen Rechnungen .....	34
4.5.1	Bewertung von Aufenthaltszeiten im Vergleich zu Equilibrierungszeiten .....	34
4.5.2	Bewertung anfänglicher Abflüsse für die thermodynamischen Rechnungen.....	35
4.5.3	Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs auf das geochemische Milieu in den Einlagerungskammern .....	37
4.5.3.1	Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs für den Einlagerungsbereich LAW 2.....	38
4.5.3.2	Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs für den Einlagerungsbereich LAW3.....	40
4.5.3.3	Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs für den Einlagerungsbereich LAW 4.....	45
4.5.3.4	Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs für den Einlagerungsbereich LAW 1.....	47
4.5.3.5	Quintessenz der der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs auf das geochemische Milieu in den Einlagerungskammern .....	48
4.5.4	Bewertung von Unsicherheiten bezüglich Gleichgewichtseinstellungen und berücksichtigter Stoffinventare .....	48
5	Schlussfolgerungen .....	55
	Quellen und Literatur .....	57
	ANHANG A: Mittlere Aufenthaltszeiten in den Einlagerungskammern für die verschiedenen, untersuchten Zeiten.....	61
	ANHANG B: Eckdaten für die Berechnungen zum Einfluss der Austauschvorgänge und Darstellung der Ergebnisse in graphischer Form .....	65
	ANHANG C: Details zu den Bandbreitenrechnungen .....	91

## Abbildungsverzeichnis

Abbildung 2-1: Schematische Darstellung einer Einlagerungskammer als quasi- geschlossene Modelleinheit, in der chemische Prozesse durch lokale Gleich- gewichte und Raten kontrolliert werden. ....	13
Abbildung 4-1: Vereinfachte dreidimensionale Darstellung des Grubengebäudes .....	38
Abbildung 4-2: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 7/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung .....	43
Abbildung 4-3: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 7/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern .....	44
Abbildung 4-4: Änderung des berechneten pH-Werts bei Variation der Eingangsdaten des Inventars an Zement und anorganischem Kohlenstoff sowie des verfügbaren Lösungsvolumens. ....	52

## Tabellenverzeichnis

Tabelle 4-1: Berechnete Lösungszusammensetzungen sowie Am(III)- und U(VI)- Löslichkeiten in den Einlagerungskammern nach Umsetzung des stofflichen Inventars im initialen Lösungsvolumen. ....	27
Tabelle 4-2: LAW-Einlagerungsbereiche der Schachtanlage Asse mit den jeweiligen Einlagerungskammern, Nebenkammern sowie vorgelagerten Grubenbauen. ....	32
Tabelle 4-3: Abflüsse und anfängliche Lösungsvolumina in den Einlagerungskammern. ....	34
Tabelle 4-4: Kammerspezifische Daten für anfängliches Lösungsvolumen, mittlere Abflussrate, kumulierte und relative Abflüsse nach 977 Jahren und berechnete Abweichungen des pH-Werts vom Standardrechenfall für einen relativen (initialen) Abfluss von 50 %. ....	36
Tabelle 4-5: Poren- und Lösungsvolumina für die Kammer 7/750. ....	42
Tabelle 4-6: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Kammer 7/750. ....	42
Tabelle 4-7: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Kammer 7/750. ....	43
Tabelle 4-8: Zusammenstellung der kammerspezifischen Inventare für die untersuchten Einlagerungskammern. ....	50
Tabelle 4-9: Zusammenstellung der in den Variationsrechnungen betrachteten Rechenvarianten. ....	51

Exemplar für BMBF und BMU

## 1 Einleitung

Für die Langzeitsicherheitsanalyse wird der Radionuklidquellterm auf der Basis kammer-spezifischer, geochemischer Rechnungen ermittelt bzw. überprüft. Die geochemischen Rechnungen wiederum basieren auf der Annahme, dass die Einlagerungskammern als quasi-geschlossene Systeme betrachtet und behandelt werden können. Eine solche Vorgehensweise bedingt zunächst die Kenntnis der kammer-spezifischen Inventare der zu betrachtenden (geochemischen) Komponenten und der Volumina der verbleibenden Hohlräume, die für zutretende Lösung zur Verfügung stehen.

Vor der Entwicklung des derzeit gültigen Konzepts zur Schließung der Schachanlage Asse II führte das FZK-INE im Rahmen eines Auftrags von GSF FB Asse eine Literaturstudie sowie geochemische Modellrechnungen zur Bewertung von zusätzlich in das Grubengebäude einzubringender Versatzstoffe, sowie zur Beschreibung des geochemischen Milieus und der resultierenden Löslichkeiten von Radionukliden durch (Kienzler et al., 2000a; Kienzler et al., 2000b; Schüßler et al., 2000; Schüßler und Kienzler, 2000). Im Rahmen dieser Arbeiten wurde davon ausgegangen, dass Lösungsbewegungen im Endlagerbereich im Wesentlichen auf die Verdrängung von Lösungen aus den Einlagerungskammern (durch Konvergenz und Gasbildung) beschränken und dass die Austauschvorgänge mit der Umgebung der betrachteten Einlagerungskammern und das Ausmaß des Stoffaustausches vernachlässigbar gering sind. Diese Annahmen implizieren, dass thermodynamische Rechnungen zur Bestimmung des geochemischen Milieus (und der damit verbundenen Radionuklidlöslichkeiten) in den Einlagerungskammern die Verhältnisse in hinreichender Näherung wiedergeben. Eine Einschränkung ist durch die Verdrängung von Lösung vor der Einstellung der thermodynamischen Gleichgewichte gegeben. Aus Laborversuchen (Metz et al., 2006) und aus Langzeitkorrosionsexperimenten im Gebindemaßstab (sog. 1:1-Gebindeexperimente (Kienzler et al., 2004; Kienzler et al., 2002; Kienzler et al., 2000c)) ist bekannt, dass die Einstellung der relevanten Gleichgewichte relativ schnell erfolgt. Daher wurde dieser Effekt als von untergeordneter Bedeutung betrachtet.

Bei der Verwendung des Modellansatzes „quasi-geschlossenes System“ (quasi-closed system, QCS) zur Berechnung des geochemischen Milieus und der Radionuklidlöslichkeiten in den Einlagerungskammern handelt es sich um eine wesentliche Annahme für die Langzeitsicherheitsanalyse. Daher ist es notwendig, die Gültigkeit dieser Annahme einer entsprechenden Überprüfung zu unterziehen. Erste Abschätzungen, zeigten, dass Lösungsbewegungen zwischen den Einlagerungskammern und insbesondere auch die Lösungsmengen, die in die Einlagerungskammern gelangen, weitaus bedeutsamer sind als ursprünglich angenommen. Dieser Befund wurde mittels der „Detaillierten Modellrechnungen



Einleitung

---

zum Lösungsaustausch in den Einlagerungskammern“ überprüft (Wilhelm et al., 2006). Gleichzeitig wurde die Anwendbarkeit von Ergebnissen (im vorliegenden Fall der Radionuklidquellterm) evaluiert, die im Rahmen des QCS-Modellansatzes erhalten wurden. Im Rahmen des vorliegenden Berichts tritt der Begriff „hinreichend“ sehr häufig auf. Es wird darauf hingewiesen, dass dieser Begriff in der Regel eine qualitative Bedeutung hat, bspw. wird die „hinreichend“ schnelle Einstellung von Gleichgewichten ein wichtiger Punkt sein. Hier wird die Forderung nach der hinreichend schnellen Einstellung der Gleichgewichte über den Vergleich von mittleren Aufenthaltszeiten von Lösungen in Einlagerungskammern mit den Ergebnissen zur Umsetzung entsprechender Systeme in Laboruntersuchungen oder in Versuchen mit Abfallfässern überprüft. An anderer Stelle wird von „hinreichendem“ Kontakt einer Lösung mit Feststoffen gesprochen, wobei dies beispielsweise an den Austrittspfaden von Einlagerungskammern eine technische Anforderung an die Verfüllmaßnahmen darstellt. Ziel des vorliegenden Berichts ist, die Überprüfung der Gültigkeit berechneter Radionuklidlöslichkeiten, die im Rahmen des Modellansatzes ermittelt wurden, darzustellen. Dies betrifft einerseits die gewählte Vorgehensweise und andererseits die erhaltenen Ergebnisse.

Exemplar für BMBF und BML

## 2 Geochemisch basierter Langzeitsicherheitsnachweis auf Grundlage eines quasi-geschlossenen Systems

### 2.1 Beschreibung des Radionuklidverhaltens im Multibarrierensystem eines Endlagers

Szenarien für das geologische Langzeitverhalten von Endlagern für radioaktive Abfälle gehen davon aus, dass eine Ausbreitung der Radionuklide nur über den Wasserpfad möglich ist. Dies gilt insbesondere für die Actiniden. Ausnahmen hiervon wie bspw.  $^{14}\text{C}$ , die auch über den Gaspfad in die Biosphäre gelangen können, sind nicht Gegenstand des vorliegenden Berichts. Freisetzung und Transport der im Wasser gelösten Radionuklide hängen maßgeblich vom chemischen Verhalten der einzelnen Spezies in der jeweiligen geochemischen Umgebung des Multibarrierensystems eines Endlagers ab. Die Radionuklide unterliegen in komplexen aquatischen Systemen einer Vielzahl von nebeneinander ablaufenden chemischen Reaktionen. Da die lösliche Menge der Radionuklide in natürlichen Wässern im Nanomol-Konzentrationsbereich liegt und damit gegenüber den Hauptkomponenten verschwindend klein ist, verlangt die Quantifizierung dieser Reaktionen den Einsatz besonderer Methoden und experimenteller Ansätze. Hauptaufgabe der Sicherheitsanalyse ist es, die relevanten geochemischen Prozesse zu identifizieren und zu bewerten, die zur Mobilisierung der Radionuklide aus Abfallmatrices bzw. zu ihrer (ir)reversiblen Immobilisierung in den einzelnen Barrieren führen. Bisher durchgeführte Sicherheitsanalysen berücksichtigen nicht einzelne chemische Reaktionen, sondern bilden das globale Migrationsverhalten durch vereinfachende Parameter (bspw. Verteilungskoeffizienten) ab. Dies trägt zu den großen Unsicherheiten in den Prognosen zur Langzeitsicherheit bei. Die wesentliche Unsicherheit beim Langzeitsicherheitsnachweis betrifft die Frage, in wieweit Voraussagen der Modellierung validierbar sind. Dies läuft in der Hauptsache auf das Problem hinaus, die in kontrollierten, "geschlossenen" Laborsystemen erhaltenen Erkenntnisse auf das natürliche "offene" System eines Endlagers und für geologische Zeiträume zu übertragen. Eine Validierung der Modellierung des Gesamtsystems ist streng genommen nicht möglich. Die Aussageunsicherheit für den Langzeitsicherheitsnachweis des Gesamtsystems kann jedoch durch Validierung der Subsystemmodelle minimiert werden. Der von FZK-INE entwickelte geochemische Ansatz versucht diese Unsicherheiten von Anfang an durch die Betrachtung von wohl definierten Subsystemen für jede einzelne Barriere zu minimieren. Für die einzelnen Subsysteme werden die Systemgrenzen festgelegt. Dann können Vor-/Aussagen über das geochemische Verhalten der Radionuklide innerhalb der Systemgrenzen und ihren Transport über die Systemgrenzen hinaus gemacht werden. Die folgenden Ausführungen beziehen sich auf den

Nahbereich von eingelagerten Abfällen in einem tiefen geologischen Endlager – das Subsystem ist eine Einlagerungskammer im Salinar.

## 2.2 Geochemische Prozesse in den Einlagerungskammern

In diesem Abschnitt werden geochemische Prozesse in den Einlagerungskammern auf einem hohen Abstraktionsniveau behandelt. Ein konzeptioneller Ansatz zur quantitativen Beschreibung des geochemischen Milieus und der Radionuklidlöslichkeiten in den Einlagerungskammern wird in Detail in Metz et al. (2006) gegeben. Generell sind die in den Einlagerungskammern eingelagerten Radionuklide in die lokalen Stoffkreisläufe eingebunden, die die Zusammensetzungen von Lösungen, Feststoffmatrices und Gasen bestimmen. Die vielfältigen miteinander gekoppelten geochemischen Reaktionen, die für die Radionuklid-Freisetzung bzw. -Rückhaltung maßgebend sind, sind im Detail sehr komplex. Dennoch lassen sich die ablaufenden Prozesse auf Grundlage chemischer Gesetzmäßigkeiten auf wenige grundlegende Prinzipien zurückführen. Die Abfallprodukte sind in Kontakt mit den eindringenden Salzlösungen thermodynamisch instabil und werden umgesetzt. Das resultierende geochemische Milieu wird durch die Zusammensetzungen und Mengenverhältnisse der festen, flüssigen und gasförmigen Kammerinhaltsstoffe bestimmt. Infolge der Reaktionen zwischen eindringender Lösung und den eingelagerten Kammerinhaltsstoffen kommt es zu simultan ablaufenden Prozessen von Auflösung der Abfallprodukte und Remineralisierung, die das geochemische Milieu beeinflussen. Das bedeutet, es kommt zu

- Veränderungen der Zusammensetzungen von Lösung, Feststoffen und Gasphase,
- Veränderungen in den Mengen der einzelnen Phasen (bspw. Zunahme der Gasphase durch Bildung von Korrosionswasserstoff und / oder Abnahme von primären Festphasen durch Auflösung),
- Veränderungen der Dichten von Lösungen und Feststoffen, der Porositäten sowie weiterer physikochemischer Parameter, wodurch indirekt die Konvergenz und der dichte- und gasgetriebene Lösungstransport beeinflusst werden.

Im idealisierten System einer völlig geschlossenen Einlagerungskammer wird der Endzustand der Korrosion der (zementierten) Abfallprodukte durch das Erreichen eines chemischen Gleichgewichts zwischen Lösung und Feststoffphasen bestimmt. In den realen Einlagerungskammern der Schachanlage Asse wird streng genommen ein thermodynamisches Gleichgewicht nicht erreicht, solange ein Lösungsaustausch stattfindet. Je mehr sich die Zusammensetzung der eindringenden Lösung von derjenigen der Gleichgewichtslösung unterscheidet, desto größer ist die thermodynamische Triebkraft zur Umsetzung der Abfallprodukte und damit die Radionuklid-Freisetzung aus der Abfallmatrix.

## 2.3 Modellansatz zur Berechnung des geochemischen Milieus und der Radionuklidlöslichkeiten

### 2.3.1 Definition und Randbedingungen eines quasi-geschlossenen Systems

Mit den derzeit zur Verfügung stehenden Rechencodes und Datenbanken zur Simulation von gekoppelten Reaktions-Transportprozessen ist es nicht möglich, kontinuierliche Veränderungen des geochemischen Milieus in den Einlagerungskammern der Schachanlage Asse und der daraus resultierenden Radionuklidlöslichkeiten hinreichend genau abzubilden. Daher werden das geochemische Milieu und die Radionuklidlöslichkeiten näherungsweise durch thermodynamische Reaktionsfortschrittsmodellierungen berechnet. Die Rechenergebnisse können nur dann sinnvoll auf reale Systeme angewendet werden, wenn die wesentlichen Prozesse in den Modellrechnungen abgebildet werden. Dies zu beurteilen, erfordert entsprechendes Prozessverständnis für das betrachtete System. Sind die Unterschiede zwischen dem Modellsystem und dem betrachteten realen System nicht zu groß, können die Ergebnisse der thermodynamischen Rechnungen (Zusammensetzung von Lösung, Feststoffen und Gasen) die Verhältnisse im realen System hinreichend genau beschreiben.

Als grundlegende Annahme für die Anwendung thermodynamischer Modellierungen auf eine Einlagerungskammer wird davon ausgegangen, dass diese als ein quasi-geschlossenes System (Abbildung 2-1) betrachtet werden kann, in dem sich innerhalb einer „Equilibrierungszeit“ die geochemischen Reaktionen einem Gleichgewichtszustand angenähert haben. Ein quasi-geschlossenes System ist durch einen geringen und langsamen Stoffaustausch mit der Umgebung charakterisiert. Unter dieser Annahme lässt sich das in einer Einlagerungskammer zu erwartende geochemische Milieu und die daraus resultierenden Spurenelementkonzentrationen bzw. Radionuklid-Löslichkeiten mit Hilfe von thermodynamischen Gleichgewichtsrechnungen in hinreichender Näherung ermitteln.

Im Einzelnen müssen folgende Bedingungen im realen System erfüllt sein, damit es als quasi-geschlossenes System betrachtet werden kann:

- A. Die Aufenthaltszeit der Lösungen und damit der gelösten Reaktanden im System ist größer als die Equilibrierungszeit.
- B. Abflüsse innerhalb der Equilibrierungszeit sind hinreichend gering.
- C. Der Zutritt von Lösungen oder Gasen ist vernachlässigbar, unabhängig vom Zeitpunkt.

## NATÜRLICHES OFFENES SYSTEM

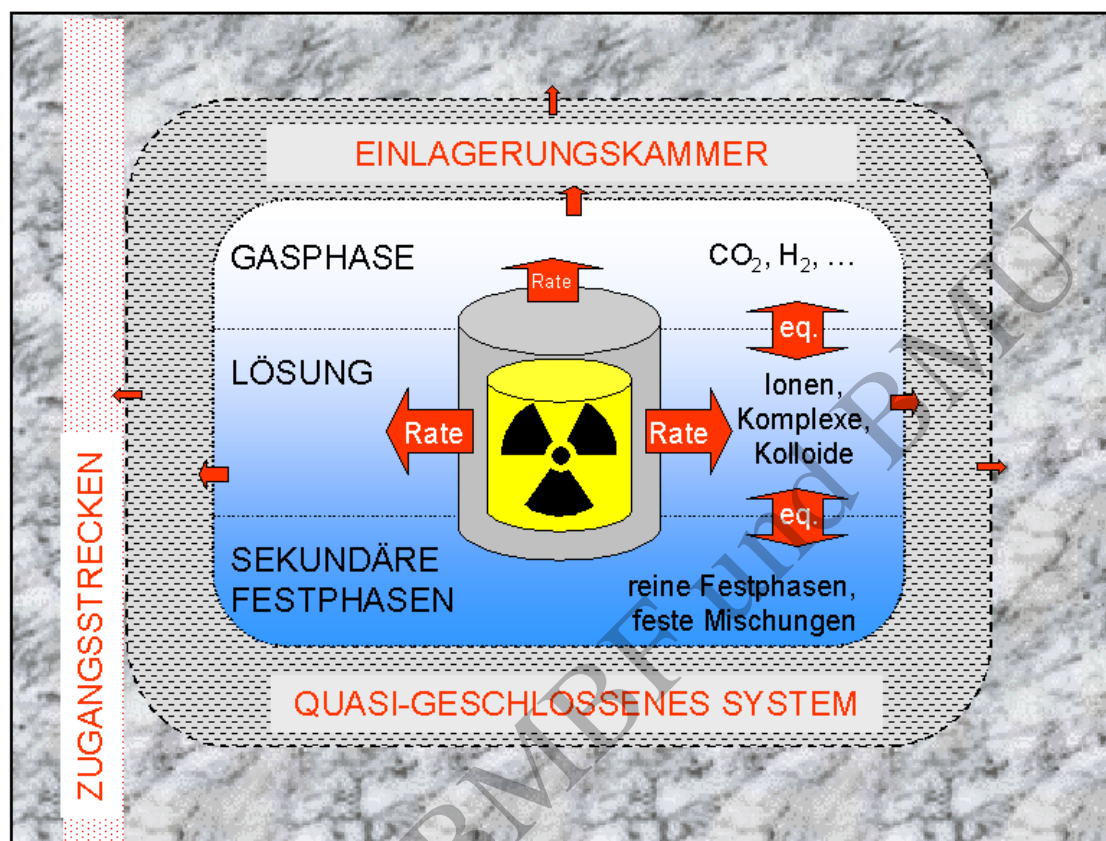


Abbildung 2-1: Schematische Darstellung einer Einlagerungskammer als quasi-geschlossene Modelleinheit, in der chemische Prozesse durch lokale Gleichgewichte (gekennzeichnet durch Doppelpfeile mit eq.) und Raten kontrolliert werden.

### 2.3.2 Eingeschränkte Modellsysteme

Die Rechenergebnisse für das oben beschriebene System entsprechen gemäß der Terminologie von Stumm und Morgan (1996) denen für ein isoliertes System, da in den Rechnungen selbst keinerlei Austausch über die Systemgrenzen hinweg betrachtet wird. Sie gelten exakt auch für das von Köster und Rudolph (1991) definierte „nearly closed system“. In diesem Modellsystem wird – nach der Einstellung eines (meta)stabilen Gleichgewichts – ein Abstrom von Fluiden aus dem System zugelassen. Ein derartiger Abstrom bewirkt keinerlei Änderung der Lösungszusammensetzung und der Zusammensetzung der festen Phasen. Als Beispiel für solch ein System wurde von Köster und Rudolph (1991) eine hypothetische Einlagerungskammer in einer Salinarformation beschrieben, in welche Salzlösung eindringt, die mit den Kammerinhaltsstoffen reagiert und die dann nach der Gleichgewichtseinstellung wieder ausgepresst wird. Im Unterschied zum quasi-geschlossenen System werden per Definition sowohl im isolierten System als auch im

„nearly closed system“ Zufuhr von Komponenten von außerhalb explizit ausgeschlossen (siehe Lützenkirchen et al., 2005).

### 2.3.3 Allgemeine Unterschiede zwischen den Modellsystemen und einem realen System – Annahmen und Beschränkungen der Modellrechnungen

Ein reales System, wie es beispielsweise eine Einlagerungskammer im Salinar darstellt, wird sich in der Regel mehr oder weniger von dem oben beschriebenen Modellsystem bzw. von dem erweiterten System unterscheiden. Wesentliche Punkte in diesem Zusammenhang sind:

- **Stoffinventar:** Das vollständige Stoffinventar in einer realen Einlagerungskammer umfasst weitaus mehr Stoffe (chemische Komponenten) als in den Rechnungen berücksichtigt werden. Eingangsdaten für die Rechnungen sind die zu betrachtenden (relevanten) chemischen Komponenten und ihre Stoffmengen. Die Stoffmengen der verwendeten chemischen Komponenten sind mit Unsicherheiten behaftet. Die Stoffmengen der chemischen Komponenten können sich im realen System aufgrund von Fluid-Austausch mit der Umgebung (über die gewählten Grenzen des Modellsystems hinweg) signifikant ändern, angetrieben durch Hohlraumkonvergenz, Konvektion oder Gasbildung.
- **Gleichgewichtseinstellung:** Es wird davon ausgegangen, dass es langfristig zur Einstellung von thermodynamischen Gleichgewichten bzw. - im Falle kinetischer Hemmungen - von metastabilen Gleichgewichten kommen wird, d.h. vollständige Umsetzung aller Systemkomponenten ohne Berücksichtigung von Reaktionskinetiken. Es wird ein vollständiger Kontakt zwischen Feststoffen und Fluiden angenommen. Das bedeutet, dass innerhalb der Kammern die Lösung mit den reaktiven Feststoffen in Kontakt kommt, die in den Rechnungen berücksichtigt werden. Dagegen ist eine Homogenisierung dieser Kammerinhaltsstoffe nicht erforderlich. Die Rechenergebnisse gelten erst ab dem Zeitpunkt, ab dem das Gesamtsystem das berechnete (meta)stabile Gleichgewicht erreicht hat.
- **Thermodynamische Datenbasis:** Es wird eine thermodynamische Datenbasis verwendet, die zwar nicht alle theoretisch möglichen, jedoch die relevanten Lösungsspezies und Festphasen für die zu betrachtenden Verhältnisse enthält. Sie beinhaltet auch die Parameter für die in den hochsalinaren Lösungen notwendige Anwendung des Pitzer-Formalismus. Die Rechnungen werden für eine konstante Temperatur durchgeführt. Es werden temperaturunabhängige thermodynamische Daten für 25° C verwendet. Der Einfluss erhöhter Temperatur wird als gering eingeschätzt (siehe Metz et al., 2006). Es werden druckunabhängige thermodynamische Daten für 1 bar verwendet. Der Einfluss erhöhter Drücke bis ca.

100 bar (in den Kammern in 750 m Teufe) auf die thermodynamischen Gleichgewichte lässt sich anhand folgender Beziehung beschreiben:

$$\left( \frac{\partial \ln(K)}{\partial P} \right)_T = - \frac{\Delta V}{R \cdot T}$$

Die Druckabhängigkeit lässt sich aus der partiellen Ableitung der Reaktionskonstanten, K, nach dem Druck, P, sowie aus dem Verhältnis der Änderung des Volumens,  $\Delta V$ , zum Produkt der Gaskonstante, R, und der Temperatur, T, als gering abschätzen (Stumm und Morgan, 1996). Volumenänderungen,  $\Delta V$ , durch Bildung oder Abbau von festen Phasen oder einer Gasphase und dadurch bedingte Verdrängungseffekte werden nicht berücksichtigt (konstante Druckrandbedingungen).

## 2.4 Berechnungsverfahren

### 2.4.1 Verfahren zur Ermittlung des Radionuklidquellterms im Standardrechenfall

Die thermodynamische Rechnungen zur Ermittlung des Radionuklidquellterms auf Grundlage der Verfüllkonzepte G und MAW sind für den „Standardrechenfall“ durchgeführt worden. In Metz et al. (2006) werden folgende Komponenten des Berechnungsverfahrens im Detail beschrieben: Verwendeter Rechencode (EQ3/6, Version EQ3/6-V7-REL-V7.2a-UNIX, Wolery, 1992a; Wolery, 1992b; Wolery und Daveler, 1992), verwendete thermodynamische Datenbasis und der Standardrechenfall. Die Beschreibung des Standardrechenfalls beinhaltet das Szenario für den Zutritt von Schutzfluid in die Einlagerungskammern, die betrachteten Prozesse bei der Umsetzung des Schutzfluids mit den Kammerinhaltsstoffen, die Verfüllkonzepte für die Einlagerungskammern, die geochemisch relevanten Stoffinventare und Lösungsvolumina sowie die Zusammensetzungen der geochemisch relevanten Kammerinhaltsstoffe. Im Standardrechenfall wird die langfristig zu erwartende vollständige Umsetzung der festen Kammerinhaltsstoffe im Schutzfluid betrachtet. Im Unterschied zu den langfristigen Gegebenheiten können in einem relativ kurzen Zeitintervall (einem Intervall, das nur einen Bruchteil der Aufenthaltszeit des Schutzfluids in den Kammern umfasst) einige der Kammerinhaltsstoffe nur graduell mit der Salzlösung reagieren. Im Standardrechenfall wird die Umsetzung des stofflichen Inventars (Mittelwerte der Stoffmengen) im initialen Lösungsvolumen simuliert.

Bei der Überprüfung der Gültigkeit von kammer-spezifischen Modellierungen bei Lösungsaustausch spielen die betrachteten Stoffinventare und Lösungsvolumina eine hervorgehobene Rolle. Eine tabellarische Aufstellung dieser Eingangsdaten für den Standardrechenfall ist in Metz et al. (2006) gegeben. Aus speziellen Strömungsmodellierungen zum Gas- und Lösungstransport wird gefolgert, dass ein Kontakt der in Kammer 8a/511 eingelagerten Abfälle mit dem Schutzfluid in der Nachbetriebsphase

unwahrscheinlich ist (Poppei et al., 2006). Da für die MAW-Kammer ein signifikanter Lösungsaustausch nicht erwartet wird, beschränkt sich die Überprüfung der Gültigkeit von thermodynamischen Modellierungen bei Lösungsaustausch auf die zwölf LAW-Kammern bzw. auf das Verfüllkonzept G (Förster und Marggraf, 2005). Im Folgenden werden die für die Überprüfung wichtigsten Angaben aus Metz et al. (2006) zu den Stoffinventaren und Lösungsvolumina qualitativ zusammengefasst.

In den Rechnungen zum geochemischen Milieu wird der Umsatz der eindringenden Salzlösung (R-Lösung mit  $5 \text{ g L}^{-1}$  Brucit) mit den dominierenden Kammerinhaltsstoffen Zementstein, anorganischer Kohlenstoff, Brucit-Granulat und Salzversatz - Halit ( $\text{NaCl(s)}$ ), Anhydrit ( $\text{CaSO}_4\text{(s)}$ ), Kieserit ( $\text{MgSO}_4\cdot\text{H}_2\text{O(s)}$ ), Polyhalit ( $\text{K}_2\text{MgCa}_2(\text{SO}_4)_4\cdot 2\text{H}_2\text{O(s)}$ ) und Carnallit ( $\text{KMgCl}_3\cdot 6\text{H}_2\text{O(s)}$ ) - berücksichtigt. Das Inventar an anorganischen Kohlenstoffverbindungen (Förster und Marggraf, 2005) basiert auf der Abschätzung der mikrobiellen Degradation organischer Abfallkomponente gemäß Bracke und Müller (2005). Für die thermodynamischen Rechnungen wurden folgende Annahmen zum Umsatz der Kammerinhaltsstoffe getroffen:

- Im Standardrechenfall wird davon ausgegangen, dass das gesamte in Metz et al. (2006) genannte Stoffinventar sich mit dem im Porenraum befindlichen Schutzfluid umsetzen kann.
- Es wird angenommen, dass die organischen Abfallkomponenten zu gelösten und gasförmigen Carbonatspezies bzw. Carbonatfestphasen umgesetzt werden. Anorganischer Kohlenstoff wird bereits anfänglich unterstellt. Es wird nicht berücksichtigt, dass durch eine Umsetzung der anorganischen Kohlenstoffverbindungen mit Wasserstoff zu Methan die Lösungszusammensetzung alkalischer und somit in den meisten Fällen günstiger hinsichtlich der Radionuklidlöslichkeiten würde.
- In Anbetracht der relativ langen Equilibrierungszeiten für die Bildung der in diesen Lösungen thermodynamisch stabilen Carbonatfestphasen Magnesit und Dolomit wurde in den Rechnungen für den hier vorgestellten Standardrechenfall die Bildung von metastabilen Mg-Hydroxocarbonaten (wie bspw. Hydromagnesit,  $\text{Mg}_5(\text{CO}_3)_4(\text{OH})_2\cdot 4\text{H}_2\text{O}$ ) berücksichtigt.
- In den Rechnungen zum geochemischen Milieu wird die mikrobiell katalysierte Umsetzung von Sulfat zu Sulfid und nachfolgende Ausfällung von schwerlöslichen Sulfiden (Fe-Sulfide, Actinid-Sulfide) nicht berücksichtigt. Der Einfluss der Umsetzung von Sulfat zu Sulfid auf das geochemische Milieu in den Einlagerungskammern wurde auf Grund der Ergebnisse von Testrechnungen als geringfügig eingeschätzt.
- Die Umsetzung des Eiseninventars wird in den geochemischen Modellierungen nicht berücksichtigt. Aufgrund der geringen Löslichkeit der entstehenden Fe-



Korrosionsphasen sind die Konzentrationen an gelöstem Fe hinsichtlich ihres Beitrags auf das geochemische Milieu vernachlässigbar. In den numerischen Studien zu den Radionuklidlöslichkeiten wird der Unsicherheit hinsichtlich des kammer-spezifischen Redoxpotentials dadurch Rechnung getragen, dass Löslichkeiten redoxsensitiver Radionuklide für gewisse Bandbreiten an gelöstem Sauerstoff  $O_2(aq)$  und gelöstem Wasserstoff  $H_2(aq)$  bzw. für gewisse Bandbreiten des Sauerstoff- und Wasserstoffpartialdrucks berechnet wurden. Für die Bestimmung des kammer-spezifischen Radionuklidquellterms wurden diejenigen Redoxstufen ausgewählt, für die sich rechnerisch die jeweils höhere Löslichkeit ergab.

#### **2.4.2 Näherungsverfahren zur Behandlung des Lösungsaustausches**

Ergebnisse von ausführlichen Modellrechnungen zu den aufgrund von Gasbildung, Konvektion und Hohlraumkonvergenz längerfristig zu erwartenden Lösungsbewegungen in den Einlagerungsbereichen (Wilhelm et al., 2005; Wilhelm und Holoher 2006a, 2006b, 2006c; Wilhelm et al., 2006) zeigen, dass es zumindest nach langen Zeiten zu einem nicht vernachlässigbaren Lösungsaustausch zwischen den Einlagerungskammern untereinander sowie zwischen Einlagerungskammern und Nebenkammern kommen kann. Es stellt sich daher die Aufgabe, kammer-spezifisch zu überprüfen inwieweit es durch die Austauschvorgänge zu Änderungen des geochemischen Milieus und der Radionuklidlöslichkeiten im Vergleich zu den Ergebnissen des Standardrechenfalls kommen kann.

Eine konsequente Behandlung dieser Aufgabenstellung würde die Durchführung von gekoppelten Modellrechnungen erfordern, d.h. Rechnungen, in denen gleichzeitig der Lösungs- und Gastransport unter Berücksichtigung von Konvergenzvorgängen sowie die dabei ablaufenden chemischen Reaktionen zwischen den Lösungen und den Kammerinhaltsstoffen modellmäßig erfasst werden. Eine rechnerische Entkopplung von Transport und chemischen Reaktionen ist streng genommen nicht möglich, da sich sowohl die Lösungsbewegungen auf das geochemische Milieu auswirken als auch die chemischen Reaktionen über die Gasbildung und Änderungen der Lösungsdichte und des Bodenkörpers den Lösungstransport beeinflussen. Für derartige gekoppelte Rechnungen steht allerdings z.Z. kein Instrumentarium zur Verfügung (siehe Abschnitt 2.3.1). Alternativ wird ein Verfahren unter Verwendung des Programmpakets EQ3/6 zur näherungsweisen Behandlung der gekoppelten Vorgänge angewendet, um damit die zu erwartenden Auswirkungen auf das geochemische Milieu und die Radionuklidlöslichkeiten in den LAW-Kammern zu ermitteln. Dem Näherungsverfahren liegen wie bei den Rechnungen für den Standardrechenfall mittlere Inventare und mittlere initiale Hohlraumvolumina zugrunde. Die Änderungen der Löslichkeiten von zwei Radioelementen, Am(III) und U(VI), in Abhängigkeit vom

Lösungsaustausch werden als Indikatoren für den Gültigkeitsbereich der kammer-spezifischen Modellierungen bei Lösungsaustausch herangezogen. Daher werden die Ergebnisse der vorliegenden Überprüfung der Gültigkeit thermodynamischer Rechnungen für die Einlagerungskammern als exemplarisch eingestuft. Für die Auswahl von Näherungsverfahren zur Abschätzung der Auswirkungen des Lösungsaustausches waren folgende Gegebenheiten ausschlaggebend:

- Die Rechnungen zum Lösungstransport (Wilhelm et al., 2005; Wilhelm und Holocher, 2006a, 2006b, 2006c; Wilhelm et al., 2006; ohne bzw. mit sehr unvollständiger Berücksichtigung geochemischer Effekte) sind als gegeben zu betrachten. Eine weitergehende Berücksichtigung der zuvor beschriebenen Auswirkungen der geochemischen Prozesse war auszuschließen. Ihre möglichen Auswirkungen werden im Vergleich zu den ohnehin vorhandenen Modellunsicherheiten als eher gering eingeschätzt.
- Aus den verfügbaren Detailmodellierungen zum Lösungstransport (Wilhelm et al., 2006) können die während vorgegebener Zeitintervalle zwischen den Kammern ausgetauschten Lösungsvolumina entnommen werden. Diese können zur Abschätzung der Auswirkung des Lösungsaustausches auf das geochemische Milieu herangezogen werden, wobei jedoch der potentielle Einfluss der Diffusion der Lösungsbestandteile unberücksichtigt bleibt. Für die Zusammensetzung der aus den jeweiligen Nachbarkammern zufließenden Lösungen werden in erster Näherung die ohne Lösungsaustausch berechneten Gleichgewichtslösungen dieser Kammern angenommen.
- In den Detailmodellierungen (Wilhelm et al., 2005; Wilhelm und Holocher, 2006a, 2006b, 2006c; Wilhelm et al., 2006) wird zusätzlich der Transport von kammer-spezifischen inerten Tracern durch Advektion und Diffusion berechnet. Daraus wurden die Beiträge der verschiedenen Nachbarkammern - nicht nur der unmittelbar benachbarten Kammern - zum Lösungsvolumen und zu den Lösungsbestandteilen jeder einzelnen Einlagerungskammer zu vorgegebenen Zeitpunkten abgeleitet. Die so ermittelten Lösungsvolumina berücksichtigen damit zusätzlich den Transport von Lösungsbestandteilen durch Diffusion, allerdings in gröberer Näherung in den Fällen, in denen die transportierten Stoffe signifikant chemisch in Form von Fällungen oder Auflösungen reagieren. Diese Lösungsvolumina (Beiträge) können ebenfalls zur Abschätzung der Auswirkungen des Lösungsaustausches auf das geochemische Milieu herangezogen werden. Zusammen mit den ausgetauschten Volumina werden diese Beiträge im Zusammenhang mit der Ergebnisdarstellung für jede Einlagerungskammer angegeben.

- Mit Hilfe thermodynamischer Reaktionspfadrechnungen mit dem Rechencode EQ6 aus dem EQ3/6-Programmpaket, wie sie für die Ermittlung der kammer-spezifischen Gleichgewichtslösungen verwendet werden, können prinzipiell auch die Änderungen der Lösungszusammensetzungen durch Zuflüsse vorgegebener Mengen anderer Lösungen und definierte Abflüsse von nach dem Zufluss entstandener Gleichgewichtslösung berechnet werden. In Verbindung mit den oben genannten Daten aus den Transportrechnungen zum Lösungsaustausch können mit Hilfe von EQ6 daher - im Rahmen der genannten Einschränkungen bzw. Näherungsannahmen - Abschätzungen zum Einfluss des Lösungsaustausches auf die Lösungszusammensetzungen in den Einlagerungskammern erhalten werden. Durch eine Inkrementierung der Zu- und Abflüsse (entsprechend einer Unterteilung der vorgegebenen Zeitintervalle in Subintervalle) kann eine ständige Durchmischung der Lösungen simuliert werden.

Aufgrund der Untersuchung von mehreren sukzessiven Zeitintervallen und jeweils mehreren zu berücksichtigenden Nachbarkammern der zwölf LAW-Einlagerungskammern erfordern derartige Modellrechnungen eine Vielzahl von zu erstellenden Eingabegrößen in Verbindung mit einer Reihe von Hilfsoperationen für die korrekte Mengenbilanzierung. Die Simulation einer laufenden Durchmischung erhöht die Anzahl der Rechenoperationen zusätzlich. Dies ist praktisch nicht zu bewältigen ohne ein geeignetes Rahmenprogramm zum automatisierten Programmaufruf von EQ6 und von Hilfsprogrammen zur Erstellung der EQ6-Startdateien aus den Daten zum Lösungsaustausch und unter Auswertung von Ausgabedateien von vorausgehenden EQ6-Rechnungen. Für die Abschätzung der Auswirkungen des Lösungsaustauschs auf das geochemische Milieu in den Einlagerungskammern wurde daher ein FORTRAN-Programm erstellt, das die Durchführung entsprechender Rechnungen nach zwei Optionen erlaubt:

**Option Flüsse** - Verwendung gegebener Austauschvolumina mit den (direkten) Nachbarkammern während der betrachteten Zeitintervalle.

**Option Beiträge** - Verwendung von Beiträgen aus den relevanten Kammern der Umgebung zur Lösungszusammensetzung der Kammer am Ende der Zeitintervalle.

Der Ablauf der Rechnungen ist in Korthaus et al. (2006b) detailliert dargestellt. In diesen Rechnungen werden keine Dichteänderungen der betrachteten Lösungen berücksichtigt. Vielmehr wird von einer konstanten Dichte von  $1.3 \text{ kg L}^{-1}$  ausgegangen, um damit die in den EQ6-Rechnungen auftretenden Lösungsmengen (in kg Lösung) zu bilanzieren. Gemessen an den übrigen Unsicherheiten dieser Modellierungen wird der Effekt von Dichteänderungen als gering bewertet. Die mit diesen Verfahren aufgrund der enthaltenen Näherungen verbundenen Unsicherheiten lassen sich schwer quantifizieren. Daher wurden grundsätzlich

die Ergebnisse beider Optionen betrachtet und das jeweils ungünstigere Ergebnis als Maß für die Auswirkung des Lösungsaustausches herangezogen.

Exemplar für BMBF und BMU

### 3 Vorgehensweise zur Bewertung des Gültigkeitsbereichs von thermodynamischen Rechnungen

Auf Grundlage der in Kapitel 2 diskutierten Bedingungen, Annahmen und Beschränkungen werden Kriterien definiert, die zur Überprüfung der Gültigkeit der thermodynamischen Rechnungen im Rahmen des QCS-Ansatzes herangezogen werden. Im Rahmen einer solchen Überprüfung wird der Standardrechenfall als Vergleichsgrundlage verwendet. Für die Gültigkeit der thermodynamischen Rechnungen können hinreichende und notwendige Bedingungen unterschieden werden. Ob die entsprechenden Bedingungen erfüllt sind, wird grundsätzlich kammer-spezifisch überprüft. Zusätzlich sind die Bedingungen auch radionuklidspezifisch zu überprüfen, da Veränderungen im geochemischen Milieu für ein Radioelement (Aa) zu einer signifikanten Änderung in der berechneten Löslichkeit führen kann, jedoch nicht für ein anderes Radioelement (Bb). In einer bestimmten Einlagerungskammer kann daher eine bestimmte Bedingung für Radioelement (Aa) erfüllt sein, für Radioelement (Bb) aber nicht.

Der QCS-Modellansatz wird in den thermodynamischen Rechnungen zum geochemischen Milieu und zu den Radionuklidlöslichkeiten kammer-spezifisch angewandt. Dabei wird eine Einlagerungskammer als geschlossenes System gegenüber dem Eintritt von Lösung behandelt und alle abfließende Lösung wird als Gleichgewichtslösung betrachtet (siehe Abschnitt 2.3). Wenn sich eine reale Kammer genau so verhält, wird ihr Gesamtinventar nur durch abfließende Lösung verändert (verringert). Da es sich dann bei der abfließenden Lösung um eine Gleichgewichtslösung handelt, kommt es durch diesen Abfluss in der Kammer selbst zu keinen weiteren Umsetzungen. In einer realen Kammer wird zutretende Lösung ebenfalls das Gesamtinventar verändern, wenn die zutretende Lösung sich in Menge und Zusammensetzung von der abfließenden (als bereits equilibriert unterstellten) Lösung unterscheidet. In einer numerischen Studie wurde als einfachster Fall für Lösungszufuhr, der Zutritt einer Lösung mit der Zusammensetzung des Schutzfluids selbst nach langen Zeiten unterstellt (Korthaus et al., 2006a). Realistischer ist jedoch die Betrachtung eines Zutritts von alterierter Lösung, so wie sie im oben beschriebenen Näherungsverfahren (Abschnitt 2.4.2) berücksichtigt wird. Wenn die Herkunft dieser Lösung bekannt ist und deren Zusammensetzung ebenfalls kann (unter den Annahmen, die für die thermodynamischen Rechnungen notwendig sind) entsprechend ein neuer Gleichgewichtszustand berechnet werden. Relevant bezüglich der Änderungen des geochemischen Milieus bzw. Änderungen der Radionuklidlöslichkeiten sind letztlich das Ausmaß von Abflüssen aus und Zuflüssen zu den Kammern sowie die Zusammensetzungen von abfließenden und zufließenden Lösungen. Die durch das Näherungsverfahren gewonnenen Ergebnisse werden in Abschnitt 4.5 dargestellt und diskutiert. Dem vorangestellt ist aber eine Betrachtung des

Stoffaustauschs im Zusammenhang mit den QCS-basierten Rechnungen (Abschnitt 3.1) und der Unsicherheiten bezüglich der Gleichgewichtseinstellungen und der Stoffinventare (Abschnitt 3.2).

### *3.1 Stoffaustausch im Zusammenhang mit Rechnungen für ein quasi-geschlossenes System – Vergleich von Aufenthalts- mit Equilibrierungszeiten*

Eine grundlegende und notwendige Bedingung für die Behandlung der Einlagerungskammern als quasi-geschlossene Systeme ist, dass sich die geochemischen Gleichgewichte in kürzerer Zeit (Equilibrierungszeit) einstellen, als sich die Lösung im Mittel in der Einlagerungskammer aufhält (Aufenthaltszeit). Dies entspricht der Bedingung A in Abschnitt 2.3.1) und kann durch einen Vergleich von Daten für diese Zeiten beurteilt werden. Hier können grundsätzlich zwei Fälle unterschieden werden:

1. Aufenthaltszeit ist größer als Equilibrierungszeit und Zuflüsse zur Kammer sind vernachlässigbar: In diesem Fall muss beurteilt werden, inwieweit während der Equilibrierungszeit Lösung abfließt (Überprüfung der Bedingung B aus Abschnitt 2.3.1).
2. Aufenthaltszeit ist größer als Equilibrierungszeit und Zuflüsse zur Kammer sind nicht vernachlässigbar: Im Prinzip können weiterhin thermodynamische Rechnungen durchgeführt werden. Es muss aber der Einfluss der Zuflüsse berücksichtigt werden. Bedingung C aus Abschnitt 2.3.1 ist nicht erfüllt, und es muss geprüft werden, inwieweit die Rechnungen, die im Rahmen des QCS-Ansatzes durchgeführt wurden, von den Zuflüssen beeinflusst werden.

Grundsätzlich müssen also (mittlere) Aufenthaltszeiten von Lösungen in den Einlagerungskammern mit Equilibrierungszeiten für die relevanten Lösungs-Feststoffsysteme verglichen werden. Dies beinhaltet, dass für den Fall 1 das Ausmaß von Abflüssen innerhalb der bekannten Equilibrierungszeiten verglichen wird. Diese Abflüsse werden dann als insignifikant eingeordnet, wenn sie keine signifikante Änderung des geochemischen Milieus bzw. der Radionuklidlöslichkeiten bezogen auf den Standardrechenfall bewirken.

Als signifikant wird definiert, dass Änderungen in den Radionuklidlöslichkeiten höchstens eine Größenordnung betragen, da Radionuklidlöslichkeiten gegenwärtig nur mit einer Ungenauigkeit von etwa einer Größenordnung (Faktor 10) durch geochemische Modellrechnungen abgeschätzt werden können (Altmaier et al., 2004; Bundesamt für Strahlenschutz, 2005). Die Bandbreite von  $\pm 1$  Größenordnung ergibt sich ausschließlich aus der Ungenauigkeit der verwendeten thermodynamischen Daten. Unsicherheiten im geochemischen Milieu auf Grund der Bandbreiten der Inventarangaben werden hierbei nicht abgedeckt.

Wenn keine Daten zu den Radionuklidlöslichkeiten vorliegen, wird zur Orientierung die Veränderung des pH-Werts herangezogen. Grundsätzlich hängen die für den Quellterm relevanten Radionuklidlöslichkeiten jedoch von der Lösungszusammensetzung im Allgemeinen (d.h. den Konzentrationen der geochemisch relevanten Komponenten) ab. Analog kann für Fall 2 vorgegangen werden.

### 3.2 Unsicherheiten bezüglich Gleichgewichtseinstellungen und berücksichtigter Stoffinventare

Bei vernachlässigbaren Auswirkungen von Stoffaustauschvorgängen nähert sich das System zunehmend einem Gleichgewichtszustand an, der durch vollständigen Umsatz der reaktiven Stoffe charakterisiert ist. Bis zu einer hinreichenden Gleichgewichtsannäherung ist nur ein gradueller Kontakt der reaktiven Stoffe miteinander und ein gradueller Stoffumsatz des Inventars gegeben. Der Einfluss eines graduellen Umsatzes kann durch Bandbreitenrechnungen simuliert werden. Die Ergebnisse der Bandbreitenrechnungen können mit denen für den Standardrechenfall verglichen werden. Bandbreitenrechnungen können somit auch zur Beurteilung von Unsicherheiten in den berücksichtigten Stoffinventaren herangezogen werden.

Eine Basis für die Rechnungen zum geochemischen Milieu sind die Angaben zu den Inventardaten für die relevanten Komponenten. Es wurde bereits angesprochen, dass grundsätzlich auf den Standardrechenfall Bezug genommen wird, für den die mittleren Daten für diese Inventarangaben verwendet wurden. Für die Daten zu den Inventaren existieren Unsicherheiten, die in prozentualen Abweichungen von den mittleren Werten angegeben sind (Förster und Marggraf, 2005). Es wurde eine Studie durchgeführt, in der die möglichen Extrem-Situationen untersucht wurden (Korthaus et al., 2006a). Hierbei wurden keine Korrelationen zwischen den Unsicherheiten unterstellt. Anhand der von Korthaus et al. (2006a) ermittelten Bandbreiten können hinreichende Bedingungen (bspw. für pH oder Radionuklidlöslichkeiten) für die Anwendbarkeit der thermodynamischen Rechnungen für den Standardrechenfall abgeleitet werden. Beispielsweise kann als hinreichend definiert werden, dass der Einfluss von Lösungsaustausch höchstens den ohnehin bestehenden Bandbreiten (des geochemischen Milieus oder der Radionuklidlöslichkeiten) auf Grund der Unsicherheiten in den Inventardatenangaben entspricht. Ebenso könnte mit den innerhalb der Equilbrierungszeit abfließenden Lösungsvolumina verfahren werden. Wenn die abfließende Lösungsmenge noch im Bereich der Unsicherheiten des Hohlraumvolumens liegt, kann argumentiert werden, dass die Abflüsse vor der Equilbrierung keine größeren Auswirkungen haben werden als durch die Unsicherheiten bedingte Variationen von Lösungszusammensetzung und Radionuklidlöslichkeiten.

Es können verschiedene Maßstäbe herangezogen werden, um hinreichende Bedingungen zu definieren. Dadurch ist eine entsprechende Willkür gegeben. In Hinsicht auf den Quellterm erscheint ein Bezug auf die Radionuklidlöslichkeiten am besten geeignet. Um eine Anwendbarkeit der QCS basierten Radionuklidlöslichkeiten trotz signifikanter Austauschvorgänge weiterhin vertreten zu können, muss daher untersucht werden, welchen Einfluss diese zutretenden Lösungsvolumina auf die berechneten Radionuklidlöslichkeiten haben. Dies gilt ebenfalls für Fall 2 in Abschnitt 3.1, wobei geprüft werden muss, ob die Zuflüsse hinreichend gering sind.

Für die Gültigkeit der geochemischen Rechnungen muss gefordert werden, dass die relevanten Kammerinhaltsstoffe in dem Ausmaß miteinander reagieren können, wie dies in den geochemischen Rechnungen unterstellt wird. Somit muss ein hinreichender Kontakt aller relevanten Kammerinhaltsstoffe gewährleistet sein. Der „Umsatzgrad“ in einer Einlagerungskammer kann im Zusammenhang mit den Bandbreiten gesehen werden, die im oben diskutiert wurden. Es handelt sich um die Fragen, welche Stoffmengen tatsächlich umgesetzt werden, und welches geochemische Milieu aus diesem Umsatz resultiert. Die Radionuklidlöslichkeiten können als Funktion der entsprechenden Variation berechnet werden. Hinreichend wäre in diesem Zusammenhang, wenn eine größere Menge Feststoff mit einem geringeren Volumen Schutzfluid (jeweils im Vergleich zum Standardrechenfall) reagiert und dies rechnerisch zu keiner signifikanten Änderung des berechneten geochemischen Milieus bzw. der berechneten Radionuklidlöslichkeiten führt. Analog wäre ein entsprechender Umsatz von weniger Feststoff mit mehr Schutzfluid (bezogen auf den Standardrechenfall) zu bewerten.

### 3.3 Robustheit des Systems hinsichtlich des Radionuklidquellterms

Im Zusammenhang mit der Ermittlung des Radionuklidquellterms ist die numerische Beschreibung eines System umso robuster, je enger die Bandbreiten der berechneten Radionuklidlöslichkeiten sind, d.h. je weniger der abgeleitete Quellterm durch die oben genannten Unsicherheiten beeinflusst wird. Ein robustes System wird dann erwartet, wenn die Zusammensetzung von Lösung, die in eine Einlagerungskammer zutritt, weitgehend derjenigen entspricht, die sich bereits in der Einlagerungskammer befindet. Dies bedeutet, dass es durch den Lösungszutritt bzw. Lösungsaustausch in einem Gleichgewichtssystem zu keiner signifikanten Veränderung des geochemischen Milieus kommt. Die Robustheit kann – hinsichtlich des Radionuklidquellterms - dadurch gewährleistet werden, wenn an den Lösungsaustrittspfaden hinreichende Mengen an Verfüllmaterial (Mg-Depot) vorhanden sind, um in den austretenden Lösungen möglichst ein günstiges geochemisches Milieu einzustellen.



Durch den Lösungszutritt wird gegenüber dem quasi-geschlossenen System eine Menge an Radionukliden aus der Einlagerungskammer mobilisiert, welche dem insgesamt austretenden Lösungsvolumen ungefähr proportional ist. Für ein quasi-geschlossenes System würde diese Menge maximal dem anfänglichen Lösungsvolumen in der Kammer entsprechen. Je größer der Lösungszutritt ist, umso mehr Lösungsvolumen wird entsprechend mit den Radionukliden der Einlagerungskammern reagieren und austreten. Ein Kriterium basierend auf einem Vergleich der zu einer Kammer zutretenden und aus ihr austretenden Lösungszusammensetzungen kann streng genommen nicht zur Überprüfung des QCS-Modellansatzes dienen, wenn die Austauschvolumina groß sind. Allerdings würde ein solcher Vergleich, vorausgesetzt die Lösungszusammensetzungen sind gleich, gewährleisten, dass der QCS-basierte Radionuklidquellterm verwendet werden kann, um die Mobilisierung von Radionukliden aus den Einlagerungskammern abzubilden. Dies ist eine Option, die ein ausgeprägt robustes System charakterisieren würde.

Exemplar für BMBF und BMBU

## 4 Ergebnisse und Diskussion

### 4.1 Modellierungsergebnisse für den Standardrechenfall

Im Standardrechenfall wird die vollständige Umsetzung der geochemisch relevanten Kammerinhaltsstoffe im initialen Lösungsvolumen (Volumen an Schutzfluid) simuliert. Die Ergebnisse für diesen Rechenfall, d.h. kammer-spezifische Daten zum geochemischen Milieu und den Radionuklidlöslichkeiten, sind in Detail in Metz et al. (2006) dargestellt. Da Ergebnisse des Standardrechenfalls als Vergleichsgrundlage für die Rechnungen zum Lösungsaustausch und für Bandbreitenrechnungen dienen, werden in diesem Abschnitt einige dieser Ergebnisse zusammengefasst. Die in Tabelle 4-1 gegebenen Lösungszusammensetzungen werden als Referenzwerte verwendet für

- das berechnete geochemische Milieu
- und die berechneten Radionuklidlöslichkeiten für Am(III) und U(IV)

in der Beurteilung der Auswirkungen von Austauschvorgängen. Hierbei werden die Abweichungen von den jeweiligen Referenzwerten herangezogen, die sich ggf. durch die Austauschvorgänge ergeben, um die Anwendbarkeit der Referenzwerte für den Radionuklidquellterm bei Berücksichtigung von Lösungsaustausch zu überprüfen. Im Unterschied zu den berechneten Am(III)- und U(VI)-Referenzwerten, werden für die Ermittlung des kammer-spezifischen Quellterms (Metz et al., 2006) - insbesondere für U(VI) – auch experimentelle Löslichkeitsgrenzen verwendet werden.

### 4.2 Relevante Umsetzungsraten für die geochemischen Reaktionen in den Einlagerungskammern

Der Kenntnisstand hinsichtlich der Umsetzungsraten von relevanten Kammerinhaltsstoffen (inklusive Versatzstoffe) ist in der Regel auf einfache Systeme beschränkt. Diese werden im Folgenden diskutiert. Hierbei muss Bezug genommen werden auf experimentelle Untersuchungen, die mit Q-Lösung durchgeführt wurden. Es wird aufgrund von Modellrechnungen erwartet (Korthaus et al., 2005), dass sich für die Einstellung des geochemischen Milieus durch den Einsatz der R-Lösung anstelle von Q-Lösung keine wesentlichen Veränderungen ergeben. Im Folgenden wird unterschieden zwischen Carbonat-freien und Carbonat-haltigen Systemen.

**Tabelle 4-1: Berechnete Lösungszusammensetzungen sowie Am(III)- und U(VI)-Löslichkeiten in den Einlagerungskammern nach Umsetzung des stofflichen Inventars im initialen Lösungsvolumen.**

	1/750	2/750	4/750	5/750	6/750	7/750
pH <sub>EQ3/6</sub>	8.7	8.7	8.9	7.8	11.0	8.6
log(m <sub>H+</sub> )	-9.4	-9.4	-9.6	-8.7	-11.7	-9.3
Ca / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.02	0.02	2.0	0.2	3.5	3.3
Cl / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	6.5	6.5	7.4	9.2	8.4	8.9
K / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.8	0.8	0.7	0.4	0.4	0.4
Mg / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.5	0.5	0.2	4.0	2e-05	0.5
Na / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	4.8	4.8	2.3	0.5	1.1	0.9
S / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	1e-01	1e-01	1e-03	2e-03	5e-04	4e-04
CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	1e-05	1e-05	5e-07	1e-05	5e-07	5e-07
Am* / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	6e-08	6e-08	9e-07	2e-07	1e-06	3e-06
U* / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	2e-08	2e-08	4e-08	2e-08	3e-07	4e-08
	8/750	10/750	11/750	12/750	2/750Na2	7/725Na2
pH <sub>EQ3/6</sub>	7.8	7.7	11.0	8.7	5.1	7.8
log(m <sub>H+</sub> )	-8.7	-8.7	-11.7	-9.4	-6.1	-8.7
Ca / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.2	0.05	3.4	0.02	0.01	2e-03
Cl / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	9.4	9.4	8.3	6.6	9.4	9.1
K / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.4	0.3	0.4	1.0	0.4	0.5
Mg / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	4.1	4.3	5e-05	0.5	4.5	4.2
Na / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.4	0.4	1.2	4.7	0.4	0.5
S / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	2e-03	6e-03	5e-04	1e-01	4e-02	2e-01
CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup> / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	1e-05	1e-05	5e-07	1e-05	3e-04	1e-05
Am* / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	2e-07	2e-07	1e-06	6e-08	3e-05	6e-07
U* / mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	2e-08	2e-08	3e-07	2e-08	2e-08	2e-08

\*Die in dieser Tabelle angegebenen Daten zu Am(III) und U(VI) unterscheiden sich teilweise von denjenigen des Am- und U-Quellterms (Metz et al., 2006). Im Unterschied zu den kammer-spezifischen Quelltermen werden in dieser Tabelle die berechneten Löslichkeiten angegeben, während für den Quellterm - insbesondere für U(VI) - auch experimentelle Löslichkeitsgrenzen verwendet werden.

#### 4.2.1 Umsetzung von Kammerinhaltsstoffen in Abwesenheit von anorganischen Kohlenstoffverbindungen

Experimentelle Untersuchungen zum System Mg-Depot/Q-Lösung im Rahmen des Experimentellen Programms haben gezeigt, dass für die unterschiedlichen Formen des Mg-Depots (d.h. bspw. Rezeptur „INE22“, Brucit-Granulat, Q-Lösung-Brucit-Suspension) die

Umsetzung mit Q-Lösung so schnell abläuft, dass die Dauer der Umsetzung gegenüber den Zeiträumen, die für die Sicherheitsanalyse relevant sind, aber auch verglichen mit den Abschätzungen der mittleren Aufenthaltszeiten (Anhang A), hinreichend gering ist. Die experimentellen Befunde sind im Abschlussbericht zu Teil 5 des Experimentellen Programms (Metz et al., 2003a) für das Mg-Depot „Rezeptur INE22“ sowie im Abschlussbericht zur Studie „Nachweis der geochemischen Wirksamkeit von Versatzstoffen aus Mg-Hydroxid/Mg-Oxychlorid in Q-Lösung“ (Metz et al., 2004a) für Ergebnisse mit verschiedenen Brucit- und Brucit-Granulat-Proben dargestellt. In der Regel wurden die Experimente mit Pulvern durchgeführt. In Experimenten mit Brucit-Granulat und Brucit wurden jeweils zwei Korngrößen verwendet. Bei den verschiedenen Variationen wurden keine signifikanten Unterschiede in der Kinetik beobachtet. Auf der Grundlage der vorliegenden experimentellen Ergebnisse ist davon auszugehen, dass die Umsetzung für ein aus Brucit und/oder Mg-Oxychlorid bestehendes Mg-Depot mit  $MgCl_2$ -reicher Lösung (R- oder Q-Lösung) so schnell abläuft, dass die Kinetik der Umsetzungen im Rahmen der vorliegenden Studie keine Rolle spielt.

Sowohl aus den 1:1-Gebindeuntersuchungen in der Schachtanlage Asse (Kienzler et al., 2000c, 2002, 2004) als auch aus den Laborexperimenten im Rahmen von Teil 1 des Experimentellen Programms (Schüßler et al. 2002) ergibt sich für das System Zement/Q-Lösung, dass Zement in Q-Lösung innerhalb von 10 - 15 Jahren bzw. innerhalb der Versuchsdauer von Laborexperimenten, die mit Pulvern durchgeführt wurden, vollständig umgesetzt ist. Im Vergleich zu den für die Sicherheitsanalyse relevanten Zeiträumen und insbesondere verglichen mit abgeschätzten mittleren Aufenthaltszeiten (Anhang A) sind die Zeiträume gering. Daher muss die Kinetik dieser Umsetzung im Rahmen dieser Studie nicht betrachtet werden.

Die Untersuchungen im Rahmen von Teil 1 des Experimentellen Programms (Schüßler et al. 2002) zeigen, dass auch im System Zement/Mg-Depot/Q-Lösung die Umsetzung schnell (innerhalb von Monaten) erfolgt. Die Dynamik der Gleichgewichtseinstellung für dieses System entsprach der für das System Zement(pulver)/Q-Lösung. Daher muss die Kinetik der Umsetzungen in diesem System im Rahmen der vorliegenden Studie nicht weiter betrachtet werden. Es ist plausibel, dass sich das System Zementstein/Mg-Depot/Q-Lösung bzgl. der Kinetik der Umsetzung analog zu den 1:1-Gebindeuntersuchungen verhält.

#### **4.2.2 Umsetzung von Kammerinhaltsstoffen in Gegenwart von anorganischen Kohlenstoffverbindungen**

Die eingelagerten Abfälle enthalten organischen Kohlenstoff. Dieser kann mikrobiell in anorganischen Kohlenstoff umgewandelt werden. Im Zusammenhang mit dem anorganischen Kohlenstoff werden folgende Begriffe unterschieden: TIC (total inorganic carbon), DIC (dissolved inorganic carbon) und gasförmiges  $CO_2$ . In Angaben für DIC ist

gelöstes Kohlendioxid enthalten, welches mit dem gasförmigen  $\text{CO}_2$  im Gleichgewicht steht. Mit PIC (particulate inorganic carbon) wird der in Festphasen gebundene anorganische Kohlenstoff bezeichnet. Die Summe aus DIC, PIC und  $\text{CO}_2$  ergibt TIC.

Die Bildung der thermodynamisch stabilen Phase Magnesit im System Mg-Depot/Q-Lösung durch die Reaktion von anorganischem Kohlenstoff (in den jeweiligen Experimenten wurde  $\text{CO}_2$ ,  $\text{NaHCO}_3$  und  $\text{Na}_2\text{CO}_3$  eingesetzt) und Q-Lösung (sowie in weiteren Ansätzen NaCl-Lösung und einer Mischung aus Q-Lösung und NaCl-Lösung) mit Mg-Depot bzw. mit dessen Hauptmineralphasen Brucit und Mg-Oxychlorid ist bei  $\text{CO}_2$ -Partialdrücken von  $p\text{CO}_2 < 1$  bar kinetisch gehemmt (Metz et al. 2004a). Unter diesen Bedingungen wird innerhalb des Beobachtungszeitraums statt Magnesit die Bildung von Mg-Hydroxocarbonaten oder Mg-Hydroxochlorocarbonaten beobachtet. Im Vergleich zu Magnesit weisen diese metastabilen Carbonatphasen eine höhere Löslichkeit auf. Dies führt zu Konzentrationen an gelöstem anorganischen Kohlenstoff (DIC), die deutlich über der thermodynamisch berechneten DIC-Konzentration (unter Einbeziehung von Magnesit) liegt, jedoch zu gering ist, um vierwertige Actiniden signifikant zu komplexieren (Metz et al. 2006). In den Abschlussberichten zu Teil 5 des *Experimentellen Programms* (Metz et al., 2003a) und zur Studie „Nachweis der geochemischen Wirksamkeit von Versatzstoffen aus Mg-Hydroxid/Mg-Oxychlorid in Q-Lösung“ (Metz et al., 2004a) ist die Umsetzung von Mg-Depot mit anorganischem Kohlenstoff in Q-Lösung detailliert beschrieben.

In Zement-haltigen Systemen wird in der Regel in Gegenwart von anorganischem Kohlenstoff die Ausfällung von Calcit beobachtet. Die Ausfällung von Calcit ist im Vergleich zur Bildung der thermodynamisch stabilen Phasen Magnesit und Dolomit ein schnell ablaufender Prozess. In Zement-haltigen Systemen mit Ca Überschuss (gegenüber anorganischem Kohlenstoff) wird eine schnelle Calcit-Ausfällung und daher keine erhöhten DIC-Werte erwartet. Wie bereits oben erwähnt, ist die Bildung von Magnesit kinetisch gehemmt. Da die Bildung von Dolomit ebenfalls kinetisch gehemmt ist, wird es in diesem Zusammenhang wie Magnesit behandelt. Da die thermodynamischen Rechnungen im Standardrechenfall so durchgeführt werden, dass die kinetischen Hemmungen berücksichtigt werden, ist eine Einschränkung in der Anwendung von thermodynamischen Rechnungen auf die Einlagerungskammern in diesen Systemen nicht zu erwarten.

Hinsichtlich langer Zeiträume ist zu erwarten, dass die metastabilen Carbonatphasen zu stabilem Magnesit umgesetzt werden. Die Einstellung des thermodynamischen Gleichgewichts mit Magnesit wird die DIC-Konzentration dann langfristig weiter senken. Um die kinetische Hemmung von Magnesit in den kammer-spezifischen Rechnungen abzubilden, werden entsprechende Variationsrechnungen durchgeführt, bei denen die Bildung von Magnesit unterdrückt wird, während die metastabile Phase berücksichtigt wird. Die Anwesenheit von Zement (bzw. des bei der Zementkorrosion freigesetzten Calciums) wirkt

sich in diesem Zusammenhang ebenfalls positiv aus, d.h. in Richtung einer DIC-Absenkung (siehe nächster Abschnitt).

#### **4.2.3 Umsetzung des organischen Kohlenstoffs zu anorganischen Kohlenstoffverbindungen**

Die Kenntnisse zur Kinetik der mit dem mikrobiellen Abbau des organischen Kohlenstoffs in den Einlagerungskammern verbundenen Prozesse sind mit großen Unsicherheiten behaftet. Daher wird eine Bewertung der Kinetik der Umsetzung von organischem Kohlenstoff zu anorganischem Kohlenstoff hier nicht vorgenommen. Die Bildung von anorganischem Kohlenstoff kann eine bedeutsame Rolle für das geochemische Milieu spielen. Im Standardrechenfall wird ein vollständiger Umsatz von Kammerinhaltsstoffen basierend auf den Stoffmengen der mittlerer Inventardaten (Förster und Marggraf, 2005) vorausgesetzt. Das Inventar an anorganischen Kohlenstoffverbindungen ist in diesen Inventardaten vorgegeben. Die Umsetzung des organischen Kohlenstoffs zu anorganischen Kohlenstoffverbindungen ist mit einer Kinetik verbunden, die Auswirkungen auf das kammer-spezifische geochemische Milieu haben kann. Da diese wie oben erwähnt nicht bewertet werden kann, werden im Folgenden Extremfälle diskutiert.

- Die Bildung der anorganischen Kohlenstoffverbindungen aus den organischen Abfällen geschieht schneller als die Bildung der unterstellten Carbonat-haltigen Festphasen (Calcit, Mg-Hydroxycarbonat): Dies ist unwahrscheinlich, da die Calcit- und die Mg-Hydroxycarbonat-Bildung schnell, d.h. innerhalb von Tagen bis Wochen geschieht. Außerdem liegt ein großer Teil der organischen Abfälle fixiert in Zement oder Bitumenmatrix vor. Zur Reaktion des im Zement fixierten organischen Abfalls ist die Korrosion des Zements notwendig, d.h. es wird Ca freigesetzt. Bitumen zersetzt sich sehr langsam.
- Die Bildung der anorganischen Kohlenstoffverbindung läuft gar nicht ab: In der Regel werden bei diesem Szenario für die Einlagerungskammern günstigere Bedingungen oder keine signifikanten Unterschiede gegenüber dem Standardrechenfall erwartet. Geochemische Rechnungen zeigen, dass jedoch das geochemische Milieu für die Einlagerungskammern 1/750 und 2/750 in diesem Szenario sich signifikant von demjenigen des Standardrechenfalls unterscheidet. Wenn - im Unterschied zum Standardrechenfall - keine Umsetzung organischer Abfallkomponenten berücksichtigt wird, dann werden für diese Kammern deutlich alkalischere Lösungszusammensetzungen erwartet.
- Die Bildung der anorganischen Kohlenstoffverbindung läuft langsamer ab als die Bildung von Magnesit bzw. Dolomit. D.h. Magnesit und Dolomit müssten als Festphasen in den geochemischen Rechnungen unterstellt werden. Dies kann zu

Änderungen des geochemischen Milieus im Vergleich zum Standardrechenfall führen. Ein solches Szenario ist für verschiedene Kammern bereits betrachtet worden (siehe Tabellen in Anhang C, Vergleich der Fälle „Ref“ für den Standardrechenfall und „Mgs“ für die Betrachtung von Magnesit und Dolomit). Auch ein solches Szenario inklusive gradueller Bildung von anorganischen Kohlenstoffverbindungen kann durch thermodynamische Rechnungen berücksichtigt werden.

Zusammenfassend ist festzuhalten, dass die verschiedenen Szenarien durch thermodynamische Bandbreitenrechnungen abgebildet werden können.

#### 4.3 Austauschvorgänge zwischen den Kammern und Aufenthaltszeiten der Lösungen

Triebkräfte für die Lösungsbewegungen sind in der Regel Lösungsverdrängungen durch Konvergenz und Gasbildung in den Einlagerungskammern (advective Beiträge) sowie Dichteunterschiede zwischen Lösungen in benachbarten Bereichen (Konvektion). Die Dichteunterschiede hängen von den jeweiligen (zeitlich veränderlichen) Lösungszusammensetzungen ab. Eine Berücksichtigung dieser Zeitabhängigkeit würde voll gekoppelte Berechnungen erfordern, die derzeit nicht möglich sind. Zudem werden auch Diffusionvorgänge im Zusammenhang mit den Austauschvorgängen diskutiert. Daten zu Lösungsbewegungen wurden von FZK-INE aus den von FB Asse übermittelten Informationen übernommen. Die Daten sind kammer-spezifisch in Anhang A und B dargestellt. Die für die abschließende Bewertung verwendeten Daten zum Lösungsaustausch stammen aus Modellrechnungen von Wilhelm et al. (2005, 2006) sowie von Wilhelm und Holoher (2006a, 2006b, 2006c), in denen Lösungsbewegungen und Tracertransport unter dem Einfluss von Dichteunterschieden, Gasbildung und Hohlraumkonvergenz sowie von Diffusion berechnet wurden. In den Rechnungen zum Lösungsaustausch wurden die Einlagerungsbereiche, abgekürzt mit ELB (Tabelle 4-2), größtenteils mit so genannten Detailmodellen behandelt, in denen die einzelnen Kammern dieser Bereiche sowie die verschiedenen Verbindungswegsamkeiten modelliert wurden:

- ELB LAW2 mit den Einlagerungskammern 4/750, 8/750 und 10/750 sowie der Nebenkammer NK 9/750 und den Verbindungen zwischen den Einlagerungskammern untereinander und zwischen den Einlagerungskammern und dem Nahbereich.
- ELB LAW3 mit den Einlagerungskammern 5/750, 6/750, 7/750 und 11/750 sowie den Verbindungen zwischen den Einlagerungskammern untereinander und zwischen den Einlagerungskammern und dem Nahbereich.

- ELB LAW4 mit den Einlagerungskammern 1/750, 2/750 und 12/750 sowie den Verbindungen zwischen den Einlagerungskammern untereinander und zwischen den Einlagerungskammern und dem Nahbereich.
- Für den Einlagerungsbereich LAW1 mit den Teilbereichen LAW1A (Einlagerungskammer 2/750Na2, NK 1/750, NK 3/750) und LAW1B (7/725Na2, NK 6/725, NK 8/725) wurde kein gesondertes Detailmodell erstellt. Hier wurden bereichsspezifische Daten aus der Rechnung mit dem Detailmodell für ELB LAW2 abgeleitet, das die Einlagerungsbereiche LAW1A und LAW1B berücksichtigt, deren einzelne Kammern aber nicht gesondert abbildet.

Die Kammer 8a/511 wurde nicht betrachtet, da hier keine Austauschvorgänge erwartet werden.

**Tabelle 4-2: LAW-Einlagerungsbereiche der Schachanlage Asse mit den jeweiligen Einlagerungskammern, Nebenkammern sowie vorgelagerten Grubenbauen.**

Einlagerungs- bereiche	LAW1A	LAW1B	LAW2	LAW3	LAW4
Einlagerungs- kammern	2/750(Na2)	7/725(Na2)	10/750 8/750 4/750	5/750 6/750 7/750 11/750	12/750 2/750 1/750
Neben-/ Abbau- kammern	1/750(Na2) 3/750(Na2)	6/725(Na2) 8/725(Na2)	9/750	-	-
nördlich vorgelagerte Grubenbaue	-	-	südliche Richtstrecke nach Westen	südliche Richtstrecke nach Osten	-

Zur Verwendung der Ergebnisse dieser Rechnungen für die vorliegenden Untersuchungen wurden fünf Zeitintervalle festgelegt, die den zu betrachtenden Zeitraum bis  $10^5$  a im logarithmischen Maßstab in etwa gleichmäßig aufteilen. Die vorliegenden Daten zum Lösungsaustausch in den vier Einlagerungsbereichen umfassen:

- die durch Kammerkonvergenz mit der Zeit stark sinkenden Poren- und Lösungsvolumina in den Kammern bzw. Bereichen am Ende der Zeitintervalle sowie die durch Gasbildung abnehmende Porensättigung. Dies wird im Folgenden nicht weiter kommentiert.
- die während der gewählten Zeitintervalle ausgetauschten Lösungsvolumina, die für die Rechnungen nach der Option **Flüsse** verwendet wurden.
- die am Ende der Zeitintervalle zu verzeichnenden Beiträge aus den benachbarten Kammern bzw. Bereichen, die im Falle der Option **Beiträge** Verwendung finden.



Diese Daten sind im Anhang B aufgeführt. Einige vernachlässigbar geringe Beiträge wurden aus Gründen der Übersichtlichkeit weggelassen. Die Summe der Lösungsbeiträge aus den verschiedenen Modellsegmenten entspricht jeweils den angegebenen Lösungsvolumina in den Kammern zu diesen Zeitpunkten. Die Abnahme der Lösungsvolumina ist durch die Gasspeicherung und die Kammerkonvergenz bedingt. Die Bilanzierung der aufgeführten Zu- und Abflüsse sollte ebenfalls zu diesen Werten führen, was aber aufgrund der unterschiedlichen Mittelungsverfahren nur in gewisser Näherung erfüllt ist. In den Rechnungen nach der Option **Flüsse** wurden die Abflüsse aus den betrachteten Einlagerungskammern jeweils so korrigiert, dass sich am Ende der einzelnen Zeitintervalle die angegebenen Lösungsmengen ergaben, unabhängig von den Änderungen der Lösungsmengen durch Auflösung oder Ausfällung von Festphasen während der Austauschprozesse.

Als Zusammensetzung der zufließenden Lösungen bzw. der Lösungsbeiträge aus den verschiedenen Modellsegmenten wurden im Falle von Einlagerungskammern die anfänglichen Gleichgewichtslösungen dieser Kammern gemäß Verfüllkonzept G (Förster und Marggraf, 2005) verwendet. Teilweise mussten auch Zuflüsse bzw. Beiträge aus Nebenkammern oder anderen benachbarten Abbauen berücksichtigt werden, die mit Salzgrusversatz verfüllt sind. Für diese Zuflüsse wurde in Absprache mit GSF FB Asse eine Lösung angenommen, die sich aus dem Schutzfluid (SF, d.h. R-Lösung mit Zusatz von 5 g L<sup>-1</sup> Brucit) nach Equilibrierung mit Salzmineralphasen entsprechend ihrem Vorkommen im Versatz und Anstehendem einer typischen Nebenkammer ergibt. Das derart konditionierte Schutzfluid unterscheidet sich jedoch in seiner Zusammensetzung nur vernachlässigbar wenig vom ursprünglichen Schutzfluid und wird daher im Folgenden weiterhin abgekürzt mit SF bezeichnet.

Die aus den Detailmodellen erhaltenen Aufenthaltszeiten liegen für alle Kammern und Zeiten (Wilhelm et al., 2005, 2006; Wilhelm und Holocher, 2006a, 2006b, 2006c) bei über 500 Jahren. Die Daten sind im Anhang A kammer-spezifisch dokumentiert.

#### 4.4 Abflüsse vor der Gleichgewichtseinstellung

Wie in Abschnitt 2.3 erläutert, müssen Abflüsse vor der Gleichgewichtseinstellung hinreichend gering sein, damit die thermodynamischen Rechnungen im Rahmen des QCS-Ansatzes trotz potentieller Veränderungen des Stoffinventars gültig sind. Zu den Abflüssen in den ersten 100 Jahren (Zeitraum, in dem mit Ausnahme der organischen Abfallkomponenten die Kammerinhaltsstoffe umgestetzt werden) gibt es keine konkreten Angaben. In der Tabelle 4-3 sind Daten zusammengefasst, die kammer-spezifisch eine Beurteilung des Einflusses von Abflüssen, die möglicherweise vor der Gleichgewichtseinstellung geschehen, erlauben.

Lediglich als Indikator kann hier die berechnete Veränderung des pH-Wertes (bezogen auf den Standardrechenfall) dienen, die sich aus entsprechenden Gleichgewichtsrechnungen unter Verwendung des halben anfänglichen Lösungsvolumen ergibt. Dies entspricht einem Szenarium, in dem zwar alle relevanten Feststoffe reagieren können, aber nur die halbe Lösungsmenge. Die nicht für die Reaktion zur Verfügung stehende Lösungsmenge könnte entsprechend durch Abflüsse bereits vor der Equilibrierung aus der Kammer ausgepresst worden sein. Die Tabelle 4-3 beinhaltet kammer-spezifische Daten zu den Abflüssen und den anfänglichen Lösungsvolumina. Diese Daten wurden aus Anhang A zusammengestellt und können verwendet werden, um Abflüsse in der Zeit bis 977 Jahre abzuschätzen. Sie können somit dazu verwendet werden, das Ausmaß der „anfänglichen“ Abflüsse zu bewerten.

**Tabelle 4-3: Abflüsse und anfängliche Lösungsvolumina in den Einlagerungskammern.**

Einlagerungskammer	12/750	11/750	10/750	8/750	7/750
Anfängliches Lösungsvolumen in m <sup>3</sup>	1856	2932	3671	3205	5303
Mittlere Abflussrate bis 977 a in m <sup>3</sup> /a	0.94	3.4	3.5	4.1	4.6
kumulierte Abflüsse nach 977 a in m <sup>3</sup>	917	3277	3462	4050	4511

Einlagerungskammer	6/750	5/750	4/750	2/750	1/750
Anfängliches Lösungsvolumen in m <sup>3</sup>	4305	4766	1754	1022	1285
Mittlere Abflussrate bis 977 a in m <sup>3</sup> /a	3.8	3.7	1.3	0.8	1.2
kumulierte Abflüsse nach 977 a in m <sup>3</sup>	3684	3586	1243	783	1157

#### 4.5 Beurteilung der Gültigkeit der thermodynamischen Rechnungen

Unter Verwendung der in den Abschnitten 4.1 - 4.4 angegebenen Daten wird in diesem Abschnitt die Gültigkeit der thermodynamischen Rechnungen an Hand der in Kapitel 3 vorgestellten Vorgehensweise überprüft.

##### 4.5.1 Bewertung von Aufenthaltszeiten im Vergleich zu Equilibrierungszeiten

Als notwendige Bedingung wird gefordert werden, dass die mittlere Aufenthaltszeit der in den Rechnungen berücksichtigten Komponenten mindestens so groß ist wie die Zeit, in der sich die unterstellten Gleichgewichte einstellen. Anhand der Aussagen zu den relevanten geochemischen Umsatzraten (Abschnitt 4.2) und zu den Aufenthaltszeiten der Lösungen (Abschnitt 4.3) ergibt sich, dass eine weitgehende Gleichgewichtseinstellung für die

relevanten Stoffsystem möglich ist. Potentielle Ausnahmen sind die Bildung von Magnesit und Dolomit, die im Standardrechenfall nicht berücksichtigt werden. Eine andere Ausnahme ist die Degradation organischer Abfallkomponenten bzw. die Bildung der anorganischen Kohlenstoffverbindungen (siehe Diskussion in Abschnitt 4.2.3). Diese wird für den Standardrechenfall entsprechend den Inventardaten unterstellt. Eine langsamere Bildung der anorganischen Kohlenstoffverbindungen kann dazu führen, dass der pH-Wert in einigen Kammern hoch bleibt und das geochemische Milieu Ca-dominiert ist. Dies kann in der Ableitung des Radionuklidquellterms entsprechend berücksichtigt werden.

Grundsätzlich wirken sich die langen Aufenthaltszeiten günstig auf die Anwendbarkeit der Ergebnisse der thermodynamischen Rechnungen aus. Eine Überprüfung der anfänglichen Abflüsse ist jedoch notwendig. Es muss weiterhin beurteilt werden, inwieweit die Komponenten miteinander in Kontakt kommen können. Aufgrund der starken Austauschvorgänge ist zudem für die Kammern zu überprüfen, inwieweit diese zu Abweichungen gegenüber den Berechnungen für das mittlere, anfängliche Inventar führen können.

#### **4.5.2 Bewertung anfänglicher Abflüsse für die thermodynamischen Rechnungen**

Wie in Abschnitt 4.4 dargestellt, sind konkrete Daten für Zeiten vor der Gleichgewichtseinstellung (d.h. kleiner ca. 100 Jahre) nicht verfügbar. Die vorliegenden Daten für mittlere jährliche Abflussraten sind zudem möglicherweise zu niedrig, da sie über 977 Jahre gemittelt sind, während die höchsten Abflussraten eigentlich zu Beginn erwartet werden. Um hohe anfängliche Abflüsse abzudecken, wurde über die mittleren Raten der Zeitpunkt berechnet, zu dem eine Lösungsmenge aus den Kammern ausgepresst wird, die der Hälfte des initialen Lösungsvolumens entspricht. Aus kammer-spezifischen Rechnungen für einen Zutritt von Q-Lösung wurde für das halbe anfängliche Lösungsvolumen die sich ergebende Differenz des pH gegenüber dem Referenzwert, der dem gesamten initialen Lösungsvolumen entspricht, ermittelt. Für das dem Standardrechenfall zu Grunde liegende Verfüllkonzept G liegen keine Berechnungen vor, anhand derer die Veränderung geochemischer Eigenschaften für das halbe anfängliche Lösungsvolumen beurteilt werden könnte. Für die Betrachtungen werden daher Ergebnisse zum Verfüllkonzept gemäß Förster und Marggraf (2004) verwendet. Unterschied zwischen den beiden genannten Varianten des Verfüllkonzepts G ist, dass in Förster und Marggraf (2004) für die 8/750 und 10/750 kein Mg-Depot berücksichtigt wurde und als Schutzfluid Q-Lösung statt einer R-Lösung mit Brucit vorgesehen wurde. Aus den Rechnungen, die im Rahmen der Arbeiten zu Teil 11 des Experimentellen Programms (Lützenkirchen et al., 2005) erfolgten, wurden die Differenzen des pH gegenüber den entsprechenden Referenzwerten entnommen, die den jeweiligen gesamten initialen Lösungsvolumina entsprechen. Die kammer-spezifischen Ergebnisse sind

in Tabelle 4-4 aufgeführt. Es zeigt sich, dass die Abweichungen für den pH-Wert für alle Kammern gering sind.

**Tabelle 4-4: Kammerspezifische Daten für anfängliches Lösungsvolumen, mittlere Abflussrate, kumulierte und relative Abflüsse nach 977 Jahren und berechnete Abweichungen des pH-Werts vom Standardrechenfall für einen relativen (initialen) Abfluss von 50 %.**

Einlagerungskammer	12/750	11/750	10/750	8/750	7/750
Anfängliches Lösungsvolumen in m <sup>3</sup>	1856	2932	3671	3205	5303
Mittlere Abflussrate bis 977 a in m <sup>3</sup> /a	0.94	3.4	3.5	4.1	4.6
kumulierte Abflüsse nach 977 a in m <sup>3</sup>	917	3277	3462	4050	4511
relativer Abfluss nach 977 a <sup>1)</sup>	0.49	1.12	0.94	1.26	0.85
Zeitpunkt für einen relativen Abfluss von 50 % <sup>2)</sup> in a	987	431	524	391	576
ΔpH für einen relativen Abfluss von 50 % <sup>3)</sup>	-0.09	-0.07	0.26	0.14	-0.27

Einlagerungskammer	6/750	5/750	4/750	2/750	1/750
Anfängliches Lösungsvolumen in m <sup>3</sup>	4305	4766	1754	1022	1285
Mittlere Abflussrate bis 977 a in m <sup>3</sup> /a	3.8	3.7	1.3	0.8	1.2
kumulierte Abflüsse nach 977 a in m <sup>3</sup>	3684	3586	1243	783	1157
relativer Abfluss nach 977 a <sup>1)</sup>	0.86	0.75	0.71	0.77	0.90
Zeitpunkt für einen relativen Abfluss von 50 % <sup>2)</sup> in a	566	644	675	639	535
ΔpH für einen relativen Abfluss von 50 % <sup>3)</sup>	-0.23	-0.60	-0.05	-0.06	0.00

<sup>1)</sup> relativer Abfluss definiert als kumulierter Abfluss bezogen auf das anfängliche Lösungsvolumen

<sup>2)</sup> basierend auf anfänglichem Lösungsvolumen und mittlerer Abflussrate

<sup>3)</sup> basierend auf geochemischen Rechnungen für Verfüllkonzept gemäß Förster und Marggraf (2004) für die Reaktion des relevanten mittleren Kammerinventars mit einem Lösungsvolumen, welches 50 % des anfänglichen Lösungsvolumens entspricht

Es ergibt sich somit, dass auch bei sehr starken anfänglichen Abflüssen der pH-Wert in den Kammern nicht signifikant vom Referenzwert abweichen würde. Es ist einschränkend zu bemerken, dass die thermodynamischen Rechnungen auf einem Verfüllkonzept beruhen, welches nicht exakt dem Verfüllkonzept entspricht, das für die Transportmodellierungen zu

Grunde gelegt wurde (siehe oben). Neben dieser Inkonsistenz muss auch darauf hingewiesen werden, dass der pH-Wert nur als ein Indikator verwendet werden kann, während die Beeinflussung der berechneten Radionuklidlöslichkeiten als relevanter Maßstab dienen sollte. Der Indikator pH zeigt an, dass die Einflüsse wahrscheinlich nicht groß sein werden. Für die Kammern 7/725Na2 und 2/750Na2 wird kein nennenswerter Austausch erwartet. Für einen relativen Abfluss von 0.5 sind die pH-Variationen allerdings so gering, dass signifikante Effekte für den Radionuklidquellterm nicht zu erwarten sind.

#### **4.5.3 Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs auf das geochemische Milieu in den Einlagerungskammern**

Wie aus den Rechnungen zum Ausmaß von Austauschvorgängen hervorgeht, ist es wenig sinnvoll, die Einlagerungskammern als isolierte Systeme zu betrachten (vgl. Daten in Anhang A und B). Folglich sind die Ergebnisse der thermodynamischen Rechnungen zum geochemischen Milieu und zu den Radionuklidlöslichkeiten, die kammer-spezifisch unter der Annahme von quasi-geschlossenen Systemen durchgeführt wurden, entsprechend zu überprüfen. Im Folgenden werden die Austauschdaten und die Ergebnisse der Rechnungen zunächst für die Kammern der Einlagerungsbereiche LAW2, LAW3 und LAW4 dargestellt und diskutiert. Die Ergebnisse für den ELB LAW1 werden anschließend vorgestellt. Für diesen Bereich liegen Ergebnisse zu den Lösungsbewegungen nur aus dem Detailmodell zum LAW2 vor, in dem die Teilbereiche LAW1A und LAW1B des LAW1 zwar enthalten sind, die einzelnen Kammern dieser Bereiche aber nicht detailliert abgebildet werden. Hier mussten für die Rechnungen zu den Auswirkungen des Lösungsaustauschs zusätzliche Näherungsannahmen getroffen werden.

Abbildung 4-1 verdeutlicht, dass es sich bei dem Grubengebäude der Schachanlage Asse um ein sehr komplexes geometrisches Gebilde handelt, welches für die Sicherheitsanalyse vereinfacht werden muss. Die Diskussion des Lösungsaustauschs zwischen Kammern berücksichtigt die komplexe Geometrie und die zwischen den einzelnen Kammern vorhandenen Verbindungen. Die Betrachtungen in diesem Bericht beschränken sich auf die Einlagerungskammern und gegebenenfalls auf benachbarte Bereiche. Die vereinfachenden Annahmen, die in den Detailmodellen getroffen wurden, sind in den entsprechenden Dokumenten dargestellt (Wilhelm et al, 2005, 2006; Wilhelm und Holocher, 2006a-c) und werden hier nicht wiederholt. Nicht explizit dargestellt, in der Diskussion aber berücksichtigt, werden die Ergebnisse von Rechnungen zur Löslichkeit von Am(III) und U(VI) im Verlauf der betrachteten Austauschvorgänge. Diese Radionuklide (RN) wurden als Indikatoren für die relevanten Radionuklide verwendet. Es werden daher im Falle von Am(III) auch Effekte nach langen Zeiten diskutiert, obwohl diese für Am allein schon wegen des radioaktiven Zerfalls keine Rolle mehr spielen.

Die einzelnen Darstellungen und Tabellen mit den verwendeten Eckdaten sind im Anhang B zusammengestellt. Im Folgenden wird exemplarisch für die Kammer 7/750 die Argumentation dargestellt (Abschnitt 4.5.3.2).

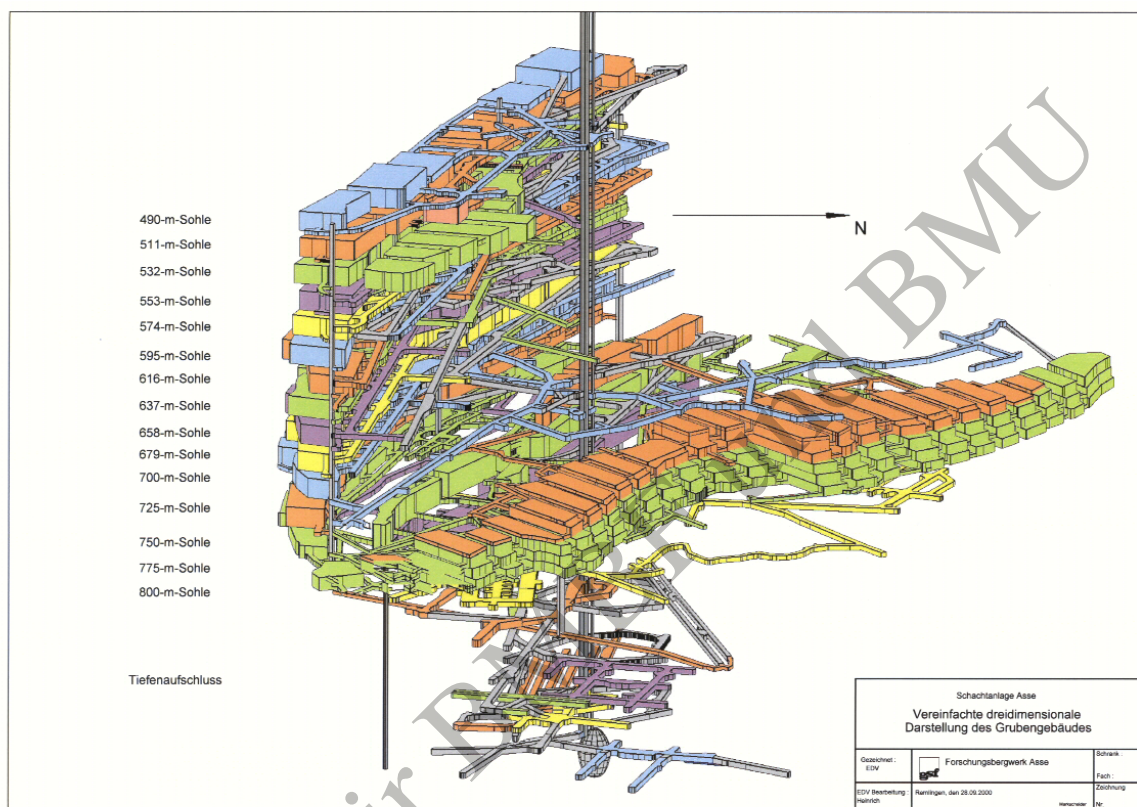


Abbildung 4-1: Vereinfachte dreidimensionale Darstellung des Grubengebäudes (bereitetgestellt von GSF FB Asse).

#### 4.5.3.1 Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs für den Einlagerungsbereich LAW 2

##### Einlagerungskammer 4/750

Diese Kammer erhält direkte Zuflüsse von der benachbarten Einlagerungskammer 8/750 sowie von den Neben- bzw. Abbaukammern 3/750 und 9/750 sowie von der 725-m-Sohle (siehe entsprechende Tabelle im Anhang B). Aus den Eckdaten wird zudem ersichtlich, dass aus einer ganzen Reihe von anderen als den genannten Kammern und Bereichen Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung in dieser Kammer geliefert werden (Wilhelm und Holocher, 2006a). Für die Zusammensetzung der Zuflüsse aus den Nebenkammern 3/750 und 9/750 und von der 725-m-Sohle wird Schutzfluid angenommen. Im Falle der Beiträge aus den Einlagerungsbereichen (LAW1A, LAW1B, LAW3) wurden für die Rechnungen (entsprechend den Volumenanteilen) gewichtete Kombinationen aus Schutzfluid und den Gleichgewichtslösungen der relevanten Einlagerungskammern

verwendet. Damit dominiert der Beitrag von Schutzfluid längerfristig deutlich, bei den Flüssen (siehe entsprechende Tabelle A-2-1c im Anhang B) allerdings erst im letzten Zeitintervall. Die Ergebnisse der Rechnungen zur Auswirkung des Lösungsaustausches zeigen, dass sich nach 10000 Jahren signifikante Änderungen in den Konzentrationen von Ca, S und C ergeben (insbesondere bei Option **Beiträge**, Abbildung A-2-1b im Anhang B), während eine Abnahme des pH um etwa eine Einheit nach 30000 Jahren zu verzeichnen ist (Abbildung A-2-1a im Anhang B, Option **Flüsse**). Die Ergebnisse von Rechnungen für Am(III) und U(VI) zeigen einen Anstieg der Am(III)-Löslichkeit um etwa eine Größenordnung nach 10000 Jahren (u. a. bedingt durch die verstärkte Bildung eines Am-Sulfato-Komplexes), während sich bei U(VI) eine geringe Abnahme der Löslichkeit ergab. Bezüglich der Entwicklung des Bodenkörpers im Verlauf der Austauschprozesse sind bei dieser Kammer im Wesentlichen Umwandlungen des Brucit in Mg-Oxychlorid zu verzeichnen, bedingt durch den Zustrom des Carbonat-armen und MgCl<sub>2</sub>-reichen Schutzfluids (Option **Flüsse**).

#### Einlagerungskammer 8/750

Diese Kammer erhält direkte Zuflüsse von der Einlagerungskammer 4/750 sowie von der 725-m-Sohle, der Abbaukammer 9/750 und aus dem ELB LAW1A über den Durchhieb AS2 (siehe entsprechende Tabelle A-2-2b im Anhang B). Es wird außerdem ersichtlich, dass aus einer ganzen Reihe von Kammern und Bereichen Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung in dieser Kammer geliefert werden (Wilhelm und Holocher, 2006/a). Die Zuordnung von Lösungszusammensetzungen für die Rechnungen erfolgte wie bei Einlagerungskammer 4/750. Sowohl bei den Zuflüssen als auch bei den Beiträgen überwiegt langfristig das Schutzfluid deutlich. Die Ergebnisse der Rechnungen zur Auswirkung des Lösungsaustausches zeigen bis 30000 Jahre nur geringe Änderungen der Lösungszusammensetzung und des pH, lediglich nach 100000 Jahren kommt es zu deutlichen Änderungen bei Ca und S (Option **Flüsse**, vgl. auch entsprechende Abbildung A-2-2a im Anhang B). Letzteres hat eine leichte Erhöhung (um deutlich weniger als eine Größenordnung) der Am(III)-Löslichkeit zur Folge. Bezüglich der Entwicklung des Bodenkörpers im Verlauf der Austauschprozesse sind auch bei dieser Kammer im Wesentlichen die Umwandlung des Calcits in Ca-Sulat bzw. Hydromagesit zu verzeichnen, bedingt durch den Zustrom des Carbonat-armen und MgCl<sub>2</sub>-reichen Schutzfluids (Option **Flüsse**).

### Einlagerungskammer 10/750

Diese Kammer erhält keine direkten Zuflüsse von anderen Einlagerungskammern. Aus dem ELB LAW1A wird Lösung über den Durchhieb AS2 zugeführt. Für die Zuflüsse von der 725-m-Sohle und der Abbaukammer 9/750 (siehe entsprechende Tabelle A-2-3b zu dieser Kammer in Anhang B) wurde auch hier Schutzfluid unterstellt. Aus den Detailmodellen ergab sich, dass aus einer ganzen Reihe von Kammern und Bereichen Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung in dieser Kammer geliefert werden, wobei wie auch bei den Zuflüssen der Beitrag von Schutzfluid langfristig deutlich überwiegt (Wilhelm und Holocher, 2006/a). Die Zuordnung von Lösungen zu den Beiträgen der anderen Einlagerungsbereiche (LAW1A, LAW1B, LAW3) erfolgte wie bei ELK4/750 erläutert. Die Ergebnisse der Rechnungen zur Auswirkung des Lösungsaustausches zeigen über den gesamten Zeitraum nur geringe Änderungen des pH, während es zu bereits früh einsetzenden Änderungen in den Konzentrationen von Ca und S kommt, wodurch sich rechnerisch nach etwa 3000 Jahren eine Erhöhung der Am(III)-Löslichkeit um etwa eine Größenordnung ergibt. Dagegen bleibt die berechnete U(VI)-Löslichkeit praktisch konstant. Bei dieser Kammer sind im Verlauf der Austauschprozesse nur vernachlässigbar geringe Änderungen des Bodenkörpers zu verzeichnen.

#### **4.5.3.2 Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs für den Einlagerungsbereich LAW3**

### Einlagerungskammer 5/750

Diese Kammer erhält direkte Zuflüsse von der benachbarten Einlagerungskammer 6/750 sowie von der Nebenkammer 3/750 und von der 725-m-Sohle (vergleiche entsprechende Tabelle A-2-4b für diese Kammer in Anhang B). Es wird aus den Detailmodellen ersichtlich, dass auch bei dieser Einlagerungskammer aus einer ganzen Reihe von Kammern und Bereichen Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung geliefert werden (Wilhelm et al., 2005, 2006). Für die Zuflüsse aus der Nebenkammer 3/750 und von der 725-m-Sohle wurden wieder Schutzfluid, für die ELB (LAW1A, LAW2 und LAW4) gewichtete Kombinationen aus Schutzfluid und den Gleichgewichtslösungen der relevanten Einlagerungskammern angenommen. Der Beitrag von Schutzfluid wird erst im letzten Zeitintervall dominierend. Die Ergebnisse der Rechnungen zur Auswirkung des Lösungsaustausches zeigen Änderungen im geochemischen Milieu, die bei 30000 Jahren mit einem Anstieg des pH um etwa 0.5 Einheiten ihr größtes Ausmaß erreichen (für die Option **Flüsse**). Die Ergebnisse von Rechnungen für Am(III) und U(VI) ergaben nur geringe Änderungen der Löslichkeiten um weniger als eine halbe Größenordnung zu diesem Zeitpunkt. Bei dieser Kammer sind im Verlauf der Austauschprozesse geringe Änderungen



des Bodenkörpers zu verzeichnen in Form einer Zunahme des ausgefallenen Calcits und Mg-Oxychlorids um jeweils etwa 30 %.

#### Einlagerungskammer 6/750

Diese Kammer erhält direkte Zuflüsse von den benachbarten Einlagerungskammern 5/750 und 7/750 sowie von der 725-m-Sohle (vgl. entsprechende Tabelle A-2-5b für diese Kammer in Anhang B). Die Detailmodelle ergeben, dass auch bei dieser Einlagerungskammer aus einer ganzen Reihe von Kammern und Bereichen Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung geliefert werden (Wilhelm et al., 2005, 2006). Für die Zuflüsse von der 725-m-Sohle wurden wieder Schutzfluid, für die ELB (LAW1A, LAW2 und LAW4) gewichtete Kombinationen aus Schutzfluid und den Gleichgewichtslösungen der relevanten Einlagerungskammern angenommen. Während bei den Zuflüssen (vgl. entsprechende Tabelle A-2-5b für diese Kammer in Anhang B) ab dem zweiten Zeitintervall die Einlagerungskammer 7/750 dominiert, zeigen sich bei den Beiträgen (vgl. entsprechende Tabelle A-2-5c für diese Kammer in Anhang B) zeitlich stark variierende Gewichtungen. Der Beitrag von Schutzfluid nimmt mit der Zeit zu und wird im letzten Zeitintervall dominierend. Die Ergebnisse der Rechnungen zur Auswirkung des Lösungsaustausches zeigen nur geringe Änderungen im geochemischen Milieu. Auch die nach dem letzten Zeitintervall zu verzeichnende Abnahme des pH beträgt lediglich etwa 0.3 Einheiten (für die Option **Flüsse**). Dementsprechend ergaben die Rechnungen für Am(III) und U(VI) nur vernachlässigbar geringe Änderungen der Löslichkeiten. Bei dieser Kammer sind im Verlauf der Austauschprozesse nur geringe Änderungen des Bodenkörpers zu verzeichnen in Form einer leichten Zunahme des Brucits.

#### Einlagerungskammer 7/750

Für die Kammer 7/750 wird eine ausführliche Darstellung durchgeführt, die als exemplarisch für die anderen Kammern gelten kann, was die Verarbeitung der Informationen aus den Detailrechnungen zum Lösungsaustausch angeht. Tabelle 4-5 gibt die zeitlichen Veränderungen des Porenvolumens und des Lösungsvolumens in dieser Kammer wieder.

Die Sättigung ist das Verhältnis von Lösungsvolumen zu Porenvolumen, gibt also an, welcher Anteil des Gesamtporenvolumens mit Lösung gefüllt ist. Diese Werte basieren maßgeblich auf den Annahmen zum Konvergenzverhalten und zur Gasbildung. Es wird deutlich, dass es zu einer sehr schnellen Verringerung des Porenvolumens kommt, welches bereits nach 1000 Jahren auf weniger als die Hälfte des anfänglichen Wertes gesunken ist. Die Gasbildung verringert das tatsächliche Lösungsvolumen, in dem Radionuklide gelöst werden können um ein Weiteres.

**Tabelle 4-5: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 7/750.**

<b>Zeit [a]</b>	<b>Porenvolumen [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Sättigung [-]</b>	<b>Lösungsvolumen [m<sup>3</sup>]</b>
0	5816	0.912	5303
977	2152	0.741	1595
2951	1235	0.741	916
9772	697	0.741	517
29512	526	0.741	390
100000	434	0.742	322

Die Kammer 7/750 erhält direkte Zuflüsse von den benachbarten Kammern 6/750 und 11/750 sowie von der 725-m-Sohle und dem Modellsegment AS2 (Tabelle 4-6). Aus Tabelle 5-3c wird ersichtlich, dass auch bei dieser Einlagerungskammer aus einer ganzen Reihe von Kammern und Bereichen Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung geliefert werden (Wilhelm et al., 2005, 2006). Für die Zuflüsse sowohl von der 725-m-Sohle als auch aus AS2 wurden Schutzfluid, für die ELB (LAW1A, LAW2 und LAW4) gewichtete Kombinationen aus Schutzfluid und den Gleichgewichtslösungen der relevanten Einlagerungskammern angenommen. Bei den Zuflüssen (Tabelle 4-6) tritt ab dem zweiten Zeitintervall nur noch Schutzfluid auf, bei den Beiträgen (Tabelle 4-7) wird das Schutzfluid erst ab 30000 Jahren dominierend.

**Tabelle 4-6: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 7/750.**

<b>Zeitintervall [a]</b>	<b>Abflüsse [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Zuflüsse [m<sup>3</sup>]</b>			
	<b>Gesamt</b>	<b>von AS2</b>	<b>725-m-Sohle</b>	<b>von 6/750</b>	<b>von 11/750</b>
0 - 977	4511	31	178	532	62
977 - 2951	718	33	2	0	0
2951 - 9772	787	30	351	0	0
9772 - 29512	781	19	628	0	0
29512 - 100000	1019	104	839	0	0

Tabelle 4-7: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 7/750.

Zeit [a]	Lösungsbeiträge [m <sup>3</sup> ]							
	LAW1A	LAW2	5/750	6/750	7/750	11/750	LAW4	andere (SF)
0	0	0	0	0	5303	0	0	0
977	0	0	3	123	1405	2	0	63
2951	1	0	2	68	781	1	0	63
9772	9	1	15	35	288	8	3	157
29512	18	6	18	22	72	9	9	235
100000	22	18	10	12	18	4	6	230

Die in Abbildung 4-2 und Abbildung 4-3 dargestellten Ergebnisse der Rechnungen zeigen als wesentliche Auswirkungen des Lösungsaustausches bei beiden Optionen nach längeren Zeiten eine Abnahme des pH um bis zu 0.7 Einheiten in Verbindung mit einer Abnahme der Ca-Konzentration und einer Zunahme der C- und Mg-Konzentrationen.

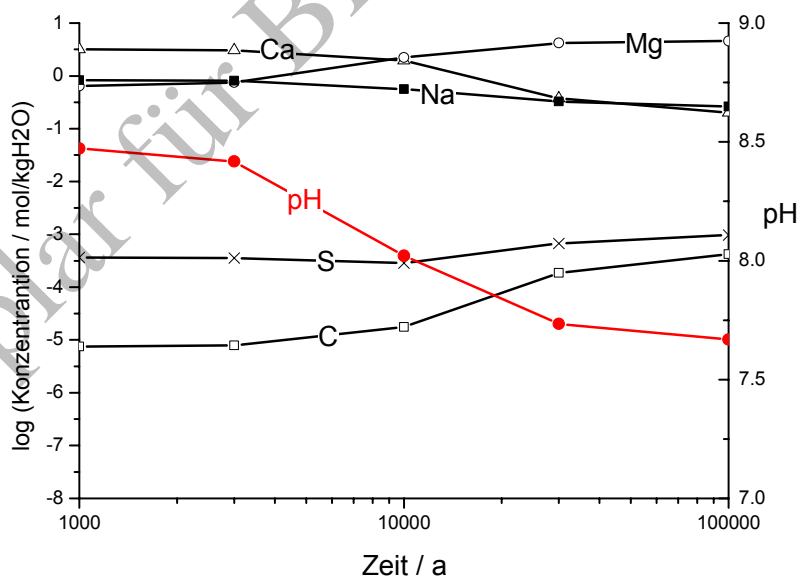
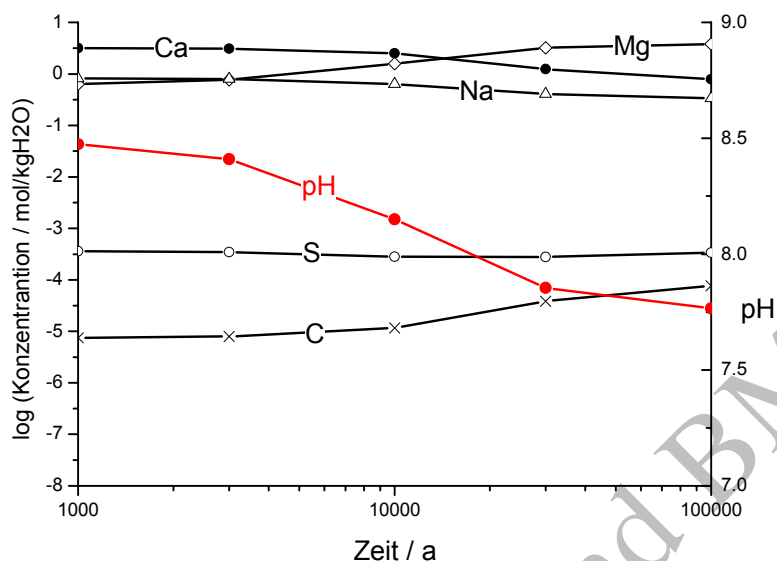


Abbildung 4-2: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 7/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option Flüsse)



**Abbildung 4-3: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 7/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option Beiträge)**

Die Rechnungen für Am(III) und U(VI) erbrachten einen Anstieg der Am(III)-Löslichkeit um etwa eine Größenordnung nach 30000 Jahren und eine geringfügige Abnahme der U(VI)-Löslichkeit. Bei dieser Kammer sind im Verlauf der Austauschprozesse im Bodenkörper eine geringfügige Umwandlung von Calcit in Ca-Sulfat und Hydromagnesit zu verzeichnen.

#### Einlagerungskammer 11/750

Diese Kammer erhält direkte Zuflüsse von der benachbarten Einlagerungskammer 7/750, aus dem Einlagerungsbereich LAW4, von der 725-m-Sohle und aus dem Modellsegment AS2 (vgl. entsprechende Tabelle A-2-7b für diese Kammer im Anhang B). Aus den Ergebnissen der Rechnungen mit den Detailmodellen ergibt sich, dass auch bei dieser Einlagerungskammer aus einer ganzen Reihe von Kammern und Bereichen Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung geliefert werden (Wilhelm et al., 2005, 2006). Für die Zuflüsse von der 725-m-Sohle und aus dem Modellsegment AS2 wurden Schutzfluid, für die Einlagerungsbereiche (LAW1A, LAW2 und LAW4) gewichtete Kombinationen aus Schutzfluid und den Gleichgewichtslösungen der relevanten Einlagerungskammern angenommen. Schutzfluid wird erst im letzten Zeitintervall dominierend sowohl bei den Zuflüssen (Tabelle A-2-7b für diese Kammer in Anhang B) als auch bei den Beiträgen (entsprechende Tabelle A-2-7c in Anhang B). Die Ergebnisse der Rechnungen zur Auswirkung des Lösungsaustausches zeigen bis 30000 Jahre kaum Änderungen im geochemischen Milieu, danach ergibt sich eine starke Abnahme des pH, eine starke Zunahme der Mg- und C-Konzentrationen und, in geringerem Maße, Änderungen bei Ca

und Na (Option **Flüsse**). Die Rechnungen für Am(III) und U(VI) ergaben bei dieser Option im letzten Zeitintervall eine Abnahme der U(VI)-Löslichkeit um etwa eine Größenordnung und eine Zunahme der Am(III)-Löslichkeit um ebenfalls etwa eine Größenordnung auf allerdings immer noch niedrige Werte. Bei dieser Kammer sind im Verlauf der Austauschprozesse gewisse Änderungen des Bodenkörpers zu verzeichnen in Form einer Umwandlung des Brucit in Mg-Oxychlorid sowie eines kleinen Teils des Calcit in Ca-Sulfat und Hydromagnesit.

#### **4.5.3.3 Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs für den Einlagerungsbereich LAW 4**

##### Einlagerungskammer 1/750

Diese Kammer erhält direkte Zuflüsse von der benachbarten Einlagerungskammer 2/750 und dem Carnallitit-Baufeld (siehe Tabelle A-2-8b für diese Kammer in Anhang B). Es ergibt sich aus den Detailmodellen, dass weitere relevante Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung lediglich aus der Einlagerungskammer 12/750 geliefert werden, die Beiträge aus den Bereichen LAW1A und LAW3 sind sehr klein (Wilhelm und Holocher, 2006/b). Für die Zuflüsse von dem Carnallitit-Baufeld wurde wieder Schutzfluid angenommen. Während bei den Zuflüssen Lösungen aus der Einlagerungskammer 2/750 im ganzen Zeitraum überwiegen, wird bei den Beiträgen das Schutzfluid nach dem vierten Zeitintervall dominierend. Die Ergebnisse der Rechnungen zeigen nur kleine Auswirkungen des Lösungsaustausches. Bei der Option **Flüsse** ist nach 100000 Jahren eine geringe Abnahme des pH um etwa 0.2 Einheiten in Verbindung mit einer geringen Zunahme der Ca- und Mg-Konzentration zu verzeichnen. Die Rechnungen für Am(III) und U(VI) ergaben praktisch unveränderte Am(III)- und U(VI)-Löslichkeiten. Bei dieser Kammer sind im Verlauf der Austauschprozesse im Bodenkörper eine Umwandlung des Brucit in Mg-Oxychlorid sowie von einem kleinen Teil von Calcit in Ca-Sulfat und Hydromagnesit zu verzeichnen.

##### Einlagerungskammer 2/750

Diese Kammer erhält direkte Zuflüsse von der benachbarten Einlagerungskammer 12/750 und dem Carnallitit-Baufeld sowie in geringem Maße aus der Einlagerungskammer 1/750 (vgl. Tabelle A-2-9b für diese Kammer in Anhang B). Aus den Resultaten der Detailmodelle wird ersichtlich, dass neben den genannten Kammern und dem Schutzfluid nur noch sehr kleine Lösungsmengen aus den Bereichen LAW1A und LAW3 zur resultierenden Lösungszusammensetzung beitragen (Wilhelm und Holocher, 2006/b). Für die Zuflüsse aus dem Carnallitit-Baufeld wurde Schutzfluid angenommen. Während bei den Zuflüssen die Einlagerungskammer 12/750 im ganzen Zeitraum überwiegt, wird bei den Beiträgen das Schutzfluid ab dem dritten Zeitintervall dominierend. Die Ergebnisse der Rechnungen zu

den Einflüssen der Lösungsaustauschprozesse zeigen nur vernachlässigbar kleine Auswirkungen des Lösungsaustausches. Dementsprechend erbrachten auch die Rechnungen für Am(III) und U(VI) praktisch unveränderte Am(III)- und U(VI)-Löslichkeiten. Bei dieser Kammer sind im Verlauf der Austauschprozesse im Bodenkörper eine Umwandlung des Brucit in Mg-Oxychlorid sowie von einem kleinen Teil des Calcit in Ca-Sulfat zu verzeichnen.

#### Einlagerungskammer 12/750

Diese Kammer erhält direkte Zuflüsse aus dem Carnallit-Baufeld sowie in geringem Maße von der benachbarten Einlagerungskammer 2/750 und dem Einlagerungsbereich LAW3 (vgl. entsprechen Tabelle A-2-10b in Anhang B für diese Kammer). Aus den Rechnungen wird ersichtlich, dass weitere relevante Beiträge zur resultierenden Lösungszusammensetzung lediglich aus der Einlagerungskammer 1/750 geliefert werden, ein Beitrag aus dem Bereich LAW1A ist vernachlässigbar klein (Wilhelm und Holocher, 2006b). Für die Zuflüsse von dem Carnallit-Baufeld wurde Schutzfluid angenommen. Bei den Zuflüssen dominiert das Schutzfluid während des ganzen Zeitraums, bei den Beiträgen ab dem dritten Zeitintervall. Die Ergebnisse der Rechnungen zeigen keinerlei Auswirkungen des Lösungsaustausches. Dementsprechend sind auch keine Änderungen bei den Radionuklidlöslichkeiten zu erwarten. Bei dieser Kammer sind im Verlauf der Austauschprozesse im Bodenkörper eine Umwandlung des größten Teils des Brucit in Mg-Oxychlorid sowie von einem kleinen Teil Calcit in Ca-Sulfat und Hydromagnesit zu verzeichnen. Aus der detaillierten Aufstellung der berechneten Abflüsse aus den einzelnen Einlagerungskammer geht hervor, dass es Abflüsse von der Einlagerungskammer 11/750 des ELB LAW3 zur Einlagerungskammer 12/750 gibt, die nicht in den ursprünglichen Zuflussdaten von Einlagerungskammer 12/750 enthalten sind und die durch die zusätzlich in der Tabelle A-2-10b zu dieser Kammer in Anhang B (in Klammern gesetzten) Werte wiedergegeben werden. Mit diesen Daten werden die in einer zusätzlichen Abbildung für diese Kammer (siehe Anhang B) dargestellten Ergebnisse erhalten. Sie zeigen bis 30000 Jahre keine Änderungen im geochemischen Milieu, nach 100000 Jahren sind jedoch eine Abnahme des pH um 0.5 Einheiten sowie ein deutlicher Anstieg der Ca- und Mg-Konzentrationen und eine geringere Abnahme der Na-Konzentration zu verzeichnen. Die Rechnungen für Am(III) und U(VI) erbrachten nun einen Anstieg der Am(III)-Löslichkeit um knapp einen Faktor 5 und einen geringfügigen Anstieg der U(VI)-Löslichkeit.

#### **4.5.3.4 Ergebnisse der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs für den Einlagerungsbereich LAW 1**

Für diesen Einlagerungsbereich wurde kein Detailmodell für die Berechnung der Lösungsbewegungen und des Tracertransports erstellt. Die Teilbereiche LAW1A und LAW1B, die jeweils eine Einlagerungskammer und zwei Nebenkammern umfassen, sind jedoch Bestandteil des Detailmodells für den Bereich LAW2. Dementsprechend liegen für diese Teilbereiche Ergebnisse zum Lösungsaustausch bzw. zu den Beiträgen der umliegenden Kammern zur Lösungszusammensetzung vor (Wilhelm und Holoher, 2006c). Die für die Austauschrechnungen benötigten kammerbezogenen Lösungsvolumina, Austauschvolumina und Lösungsbeiträge wurden aus diesen Daten unter der Annahme abgeleitet, dass sich die kammerbezogenen Anteile wie die Anfangsporenvolumina (bzw. anfänglichen Lösungsvolumina) zu den bereichsbezogenen Volumina verhalten.

##### Einlagerungskammer 2/750Na2

Diese Kammer erhält als Bestandteil des LAW1A direkte Zuflüsse vor allem aus dem Bereich LAW1B und von der 775-m-Sohle sowie in geringerem Maße aus dem Carnallit-Baufeld und dem Modellsegment AS2 (vgl. Tabelle A-2-11b in Anhang B für diese Kammer). Die aus der 775-m-Sohle, dem Carnallit-Baufeld und dem Modellsegment AS2 zuströmenden Lösungen sind als Schutzfluid anzunehmen. Dies kommt auch in den Daten zu den Lösungsbeiträgen für diese Kammer zum Ausdruck. Bei einem anfänglichen Lösungsvolumen von  $7438 \text{ m}^3$  dieser Kammer ergab sich hier das Verhältnis zwischen den initialen Kammer- und Bereichslösungsvolumina zu 0.38. Die Ergebnisse der Rechnungen zur Auswirkung des Lösungsaustausches auf das geochemische Milieu in der Kammer 2/750Na2 für die beiden Optionen zeigen über den gesamten Zeitraum nur geringe Änderungen, entsprechend gering sind die Auswirkungen auf die berechneten Löslichkeiten von Am(III) und U(VI). Die Auswirkungen auf den Bodenkörper sind ebenfalls vernachlässigbar. Bei diesen Rechnungen war die initiale Gleichgewichtslösung der Kammer 7/725Na2 als Zusammensetzung der aus LAW1B in die Kammer 2/750Na2 zufließenden Lösungen angenommen worden. Die Annahme einer Mischung aus dieser Lösung und Schutzfluid, entsprechend den anfänglichen Volumenanteilen der Kammer 7/725Na2 und der Nebenkammern (6/725 und 8/725) im Einlagerungsbereich LAW1B, erbrachte keine wesentlichen Änderungen in den Ergebnissen.

##### Einlagerungskammer 7/725Na2:

Diese Kammer erhält als Bestandteil des LAW1B direkte Zuflüsse aus dem Bereich LAW1A sowie in sehr geringem Maße von der 700-m-Sohle und dem Modellsegment AS2 (vgl. die Werte in der entsprechenden Tabelle A-2-12b für diese Kammer in Anhang B). Die aus der

700-m-Sohle und dem Modellsegment AS2 zuströmenden Lösungen sind als Schutzfluid anzunehmen. Dies kommt auch in den entsprechenden Daten zu den Lösungsbeiträgen zum Ausdruck. Bei einem anfänglichen Lösungsvolumen von 4577 m<sup>3</sup> dieser Kammer ergab sich hier das Verhältnis zwischen den initialen Kammer- und Bereichslösungsvolumina zu 0.41. Die Ergebnisse der Rechnungen zur Auswirkung des Lösungsaustausches auf das geochemische Milieu in der Kammer 7/725Na2 für die beiden Optionen zeigen über den gesamten Zeitraum nur geringe Änderungen, entsprechend gering sind die Auswirkungen auf die berechneten Löslichkeiten von Am und U. Die Auswirkungen auf den Bodenkörper sind ebenfalls vernachlässigbar. Bei diesen Rechnungen war die initiale Gleichgewichtslösung der Kammer 2/750Na2 als Zusammensetzung der aus LAW1A in die Kammer 7/725Na2 zufließenden Lösungen angenommen worden. Die Annahme einer Mischung aus dieser Lösung und Schutzfluid, entsprechend den anfänglichen Volumenanteilen der Kammer 2/750Na2 und der Nebenkammern (1/750 und 3/750) im Einlagerungsbereich LAW1A, erbrachte keine wesentlichen Änderungen in den Ergebnissen.

#### **4.5.3.5 Quintessenz der der Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustauschs auf das geochemische Milieu in den Einlagerungskammern**

Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass gemäß der in Abschnitt 4.5.3 dargestellten Ergebnisse die Austauschvorgänge keinen signifikanten Einfluss auf die berechneten Radionuklidlöslichkeiten von U(VI) und Am(III) haben. In der Regel bleibt das geochemische Milieu der Einlagerungskammern, welches für die Randbedingungen eines quasi-geschlossenen Systems berechnet wurde, auch für längere Zeiten und die prognostizierten Austauschvolumina konstant. Dies hat zur Folge, dass auch die berechneten Radionuklidlöslichkeiten in der Regel nicht um mehr als eine Größenordnung von den Vergleichswerten abweichen, die für den Standardrechenfall und die Randbedingungen eines quasi-geschlossenen Systems berechnet wurden.

#### **4.5.4 Bewertung von Unsicherheiten bezüglich Gleichgewichtseinstellungen und berücksichtigter Stoffinventare**

In den Abschnitte 4.2 - 4.5 wurde gezeigt, dass die notwendigen Bedingungen für die Anwendbarkeit des QCS-Modellansatzes auf die Einlagerungskammern, d.h. ein langsamer Lösungsaustausch (nachgewiesen über hinreichend lange Aufenthaltszeiten der Lösungen) und ein geringer Lösungsaustausch (nachgewiesen über nicht-signifikante Effekte des Austauschs auf das geochemische Milieu und Radionuklidlöslichkeiten), gegeben sind. Für die Anwendbarkeit der Ergebnisse der thermodynamischen Rechnungen wird außerdem gefordert, dass die in den Rechnungen unterstellten Stoffinventare vollständig miteinander in reagieren. Dies bedeutet, dass die Komponenten (geochemisch relevante



Kammerinhaltsstoffe) miteinander in Kontakt kommen. Prinzipiell ist die Einstellung der unterstellten Gleichgewichte auch unabhängig von einer potentiellen Heterogenität in der Verteilung der unterstellten Stoffinventare in den Kammern, solange die Komponenten vor Verlassen der Kammer miteinander in Kontakt kommen. Dieser Kontakt kann für die Einlagerungskammern nicht belastbar nachgewiesen werden. Daher wurde und wird für die Gültigkeit der thermodynamischen Rechnungen gefordert, dass an den Austrittspfaden der Lösungen hinreichende Mengen an Mg-Depot vorhanden sind, um dort in den austretenden Lösungen neutral bis schwach alkalische Lösungszusammensetzungen einzustellen, sofern diese sich nicht bereits innerhalb der Kammern gebildet haben. Dies ist durch die geplanten Verfüllmaßnahmen gewährleistet. Der Standardrechenfall gilt für die mittleren Kammerinventare und beinhaltet somit nicht Szenarien, die sich auf die Austrittspfade beziehen.

Ergebnisse von Bandbreitenrechnungen zum geochemischen Milieu können herangezogen werden, um den Einfluss in der Variation der Stoffinventare, wie bspw. einem unvollständigen Kontakt verschiedener Kammerinhaltsstoffe, zu beurteilen. Korthaus et al. (2006a) berechnete Bandbreiten des kammer-spezifischen geochemischen Milieus ohne Berücksichtigung eines Lösungsaustauschs. Zur Beurteilung der Bandbreiten des geochemischen Milieus wurden die Eingangsparameter Lösungsvolumen, Zementsteinmasse, Masse an Mg-Depot und Stoffmenge an anorganischem Kohlenstoff im Rahmen der Unsicherheiten des Inventars variiert. Die von Korthaus et al. (2006a) durchgeführte Bandbreitenvariation für Verfüllkonzept G ist als eine extreme Variation anzusehen, da die jeweils ungünstigsten Inventardaten herangezogen wurden (d.h. beispielsweise kammer-spezifisch das Minimum an Zement kombiniert mit dem Maximum an anorganischem Kohlenstoff). Solche Kombinationen sind zwar unwahrscheinlich, können aber Auskunft darüber geben, wie sensibel das geochemische Milieu in einer Kammer auf eine Variation von Inventardaten reagiert. Inwieweit die Ungenauigkeiten der von GSF FB Asse bereitgestellten Inventardaten korrelieren, ist nicht bekannt.

Für die Einlagerungskammern 5/750, 11/750 und 2/750Na<sub>2</sub> wurden die oben beschriebenen Rechnungen zu den Bandbreitenvariationen durchgeführt. Die Einlagerungskammer 5/750 repräsentiert eine Kammer mit einem etwa neutralen geochemischen Milieu, die Einlagerungskammer 11/750 eine Kammer mit einem stark alkalischen geochemischen Milieu und die Einlagerungskammer 2/750Na<sub>2</sub> eine Kammer mit einem sauren geochemischen Milieu. Die aus dem stofflichen Inventar und den Hohlraumbilanzen (Förster und Marggraf, 2005) abgeleiteten Eingangsdaten sind in Tabelle 4-8 zusammengefasst. Die Angaben der Datenungenauigkeiten sind ebenfalls in der Tabelle 4-8 aufgeführt.

**Tabelle 4-8: Zusammenstellung der kammer-spezifischen Inventare (Mittelwerte und Datenungenauigkeiten aus Förster und Marggraf, 2005) für die untersuchten Einlagerungskammern.**

Einlagerungskammer		5/750	11/750	2/750Na2
Zementprodukt	kg (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.36	1.42	0.45
Ungenauigkeit		7%	6%	14%
Kohlenstoff (TIC)*	mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	2.61	4.05	4.26
anorgan. Kohlenstoff (Masse CO <sub>2</sub> )	kg (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.115	0.178	0.188
Ungenauigkeit		20%	20%	20%
verfügbares Lösungsvolumen	m <sup>3</sup>	5137	3206	7998
Ungenauigkeit		20%	20%	12%
Brucit in Suspension	kg (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.0057	0.0057	0.0057
Brucit-Granulat	kg (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.08	0.41	
Ungenauigkeit		5%	5%	
Sorelbeton	kg (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>		0.033	

\* Für das maximale Inventar an anorganischen Kohlenstoff (TIC) wurde der Umsatz des organischen Kohlenstoffs gemäß Bracke und Müller (2005) berücksichtigt.

Für jede der Einlagerungskammern werden sechs Varianten unterschieden, die in Tabelle 4-9 erläutert werden. Für die Beschreibung der Ergebnisse werden im Folgenden die in Tabelle 4-9 genannten Abkürzungen der Rechenvarianten verwendet. Die Ergebnisse der Bandbreiten-Variationsrechnungen sind im Detail in Anhang C zusammengefasst. Es wird dort für jede betrachtete Einlagerungskammer das geochemische Milieu für die sechs betrachteten Fälle aufgeführt.

#### Bandbreiten des kammer-spezifischen geochemischen Milieus – Kammer 5/750

Abbildung 4-4 zeigt, dass für vier der untersuchten Rechenvarianten (Ref, Mgs, CL1 und CL2) der pH Wert praktisch nicht variiert. Für die Rechenvarianten, in denen die maximal mögliche Menge an anorganischen Kohlenstoff (TIC) angenommen wird, bei gleichzeitig minimaler Menge an Zement, ergibt sich eine Absenkung des pH um 2 Einheiten. In diesem Fall steigt die berechnete Carbonat-Konzentration an. Der Festphasenbestand der Kammer 5/750 für die verschiedenen Rechenvarianten ist ebenfalls in der Tabelle A-3-1-1 (Anhang C) zusammengefasst. Es wird deutlich, dass bei den minimalen Gehalten an anorganischem Kohlenstoff Mg-Hydroxocarbonat nicht mehr auftritt. Offensichtlich tritt in allen Rechenvarianten, in denen die Bildung von metastabilen Mg-Carbonatphasen (statt Magnesit oder Dolomit) angenommen wird, die Ausfällung von Calcit auf. Die Rechnung ergibt keine Bildung von Calcit und Hydromagnesit, wenn Dolomit ausgefällt werden kann.

Dies unterstreicht die Rolle von Calcit bezüglich der Carbonatausfällung für den Fall, dass metastabiles Mg-Hydroxocarbonat gebildet wird.

**Tabelle 4-9: Zusammenstellung der in den Variationsrechnungen betrachteten Rechenvarianten.**

Abkürzung	Beschreibung
Ref	Verwendung aller Mittelwerte; Unterdrückung von Magnesit / Dolomit
Mgs	Verwendung aller Mittelwerte; Berücksichtigung von Magnesit / Dolomit
CH1	maximale Menge an anorganischem Kohlenstoff, minimale Menge Zement, maximales Lösungsvolumen; Unterdrückung von Magnesit / Dolomit
CH2	maximale Menge an anorganischem Kohlenstoff, minimale Menge Zement, minimales Lösungsvolumen; Unterdrückung von Magnesit / Dolomit
CL1	minimale Menge an anorganischem Kohlenstoff, maximale Menge Zement, maximales Lösungsvolumen; Unterdrückung von Magnesit / Dolomit
CL2	minimale Menge an anorganischem Kohlenstoff, maximale Menge Zement, minimales Lösungsvolumen; Unterdrückung von Magnesit / Dolomit

Bandbreiten des kammer-spezifischen geochemischen Milieus – Kammer 11/750

Es handelt sich bei der Einlagerungskammer 11/750 um eine Kammer mit einem relativ hohen Zement-Inventar im Vergleich zum verfügbaren Lösungsvolumen. Ausschließlich im Fall der Rechenvariante CH1, für die die maximale Stoffmenge an anorganischen Kohlenstoff und das maximale Lösungsvolumen angenommen werden, kommt es zu signifikanten Veränderungen des geochemischen Milieus gegenüber dem der Referenz-Variante und den anderen vier Rechenvarianten (Abbildung 4-4). Aufgrund des angenommenen maximalen Lösungsvolumens und dem damit verbundenen maximalen Eintrag an  $MgCl_2$  wird im Vergleich zur Referenz-Variante mehr Zement umgesetzt. Das führt in der Rechenvariante CH1 dazu, dass die Mg-Konzentration signifikant erhöht ist und Mg-Oxychlorid ausfällt, während in den anderen fünf Rechenvarianten die Ausfällung von Brucit berechnet wird. Für die Rechenvarianten mit Zement-Überschuss gegenüber  $MgCl_2$  ergibt sich für die Einlagerungskammer 11/750 kein nennenswerter Einfluss der Bildung von metastabilen Mg-Carbonaten im Vergleich zur Berücksichtigung der Bildung von Magnesit und Dolomit.

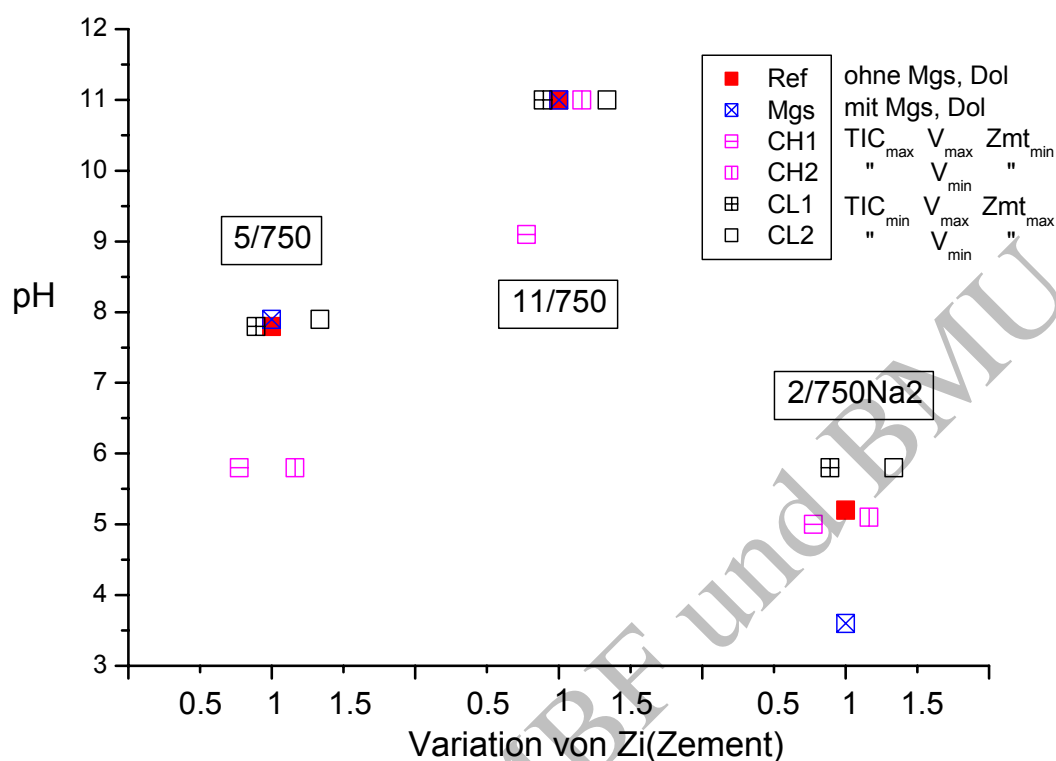


Abbildung 4-4: Änderung des berechneten pH-Werts bei Variation der Eingangsdaten des Inventars an Zement und anorganischem Kohlenstoff sowie des verfügbaren Lösungsvolumens.

#### Bandbreiten des kammer-spezifischen geochemischen Milieus – Kammer 2/750Na2

Die Ergebnisse der Bandbreitenrechnungen für die Einlagerungskammer 2/750Na2 sind in Tab A-3- (siehe Anhang C) zusammengefasst. Es zeigt sich, dass die Berücksichtigung der Bildung von metastabilen Mg-Carbonaten zu einer geringeren Versauerung der Kammer führt im Vergleich zur Rechenvariante Mgs, in der die Bildung von Magnesit und / oder Dolomit berücksichtigt wird. Das bedeutet, dass die Bildung von Calcit und gegebenenfalls von metastabilen Mg-Carbonaten eine weniger starke Versauerung bewirkt als die Bildung des thermodynamisch stabilen Dolomits. Dies zeigt, dass hinsichtlich des Einflusses der Mg-Carbonat-Festphasen auf das geochemische Milieu nicht a priori angenommen werden kann, dass die Bildung von metastabilen Mg-Carbonaten gegenüber der Bildung von stabilen Mg-Carbonaten (Magnesit / Dolomit) zu höheren Radionuklidlöslichkeiten führen wird. Es wird des Weiteren deutlich, dass in dieser Kammer der Partialdruck des Kohlendioxid auch für pH 5 sehr groß (und insbesondere höher als für pH 4) werden kann. Die Verringerung der  $\text{CO}_3^{2-}$ -Konzentration ist in der Rechnung mit Dolomit eine Folge des Kohlensäure-Gleichgewichts, welches stark auf der Seite von  $\text{HCO}_3^-$  und Kohlensäure liegt.

### Bandbreiten des kammer-spezifischen geochemischen Milieus – Vergleich der Ergebnisse

In Abbildung 4-4 werden exemplarisch für das jeweilige geochemische Milieu die berechneten pH-Werte der drei untersuchten Einlagerungskammern miteinander verglichen. Die dargestellten Ergebnisse zur Änderung des berechneten geochemischen Milieus bei Variation der Eingangsdaten des Inventars an Zement und anorganischem Kohlenstoff sowie des verfügbaren Lösungsvolumens lassen sich wie folgt zusammenfassen: In ein bis zwei der untersuchten Rechenvarianten zeigt sich, dass innerhalb der Variation eine signifikante Veränderung des pH-Werts (Abbildung 4-4) und der Hauptlösungskomponenten (siehe Anhang C) auftritt. Von Bedeutung ist auch die berechnete Bandbreite der  $\text{CO}_3^{2-}$ -Konzentration in Lösung (Anhang C). Während die großen Abweichungen von der Referenz-Rechenvariante (Ref) zu geringeren  $\text{CO}_3^{2-}$ -Konzentrationen hin keinen erheblichen Einfluss auf die Radionuklidlöslichkeiten erwarten lassen, kann die berechnete Erhöhung der  $\text{CO}_3^{2-}$ -Konzentration im Fall der Einlagerungskammer 5/750 (Rechenvarianten CH1 und CH2) um etwa eine Größenordnung zu einer signifikanten Erhöhung der Löslichkeiten insbesondere von U(VI) führen.

Wenn auch hier ausschließlich Extremsituationen betrachtet wurden so zeigt sich, dass die Bandbreitenrechnungen wichtige Informationen zu möglichen Variation im geochemischen Milieu liefern können. Neben den kammer-spezifischen Extremwertsituationen im geochemischen Milieu, die aus den Unsicherheiten im Stoffinventar resultieren, können die Bandbreitenrechnungen auch dahingehend interpretiert werden, dass sie eine Aussage liefern, für den Fall, dass beispielsweise nur ein Teil der Kammerinhaltsstoffe mit dem gesamten Lösungsvolumen reagiert, bspw. für CH1 und CL1, d.h. für den Fall, dass der vorhandene Zement nicht vollständig reagiert.

Im Sicherheitskonzept für die Schachanlage Asse wird unterstellt, dass die Einlagerungskammern mit Schutzfluid und  $\text{Mg}(\text{OH})_2$ -haltigem Versatz verfüllt werden und anschließend Lösung ausgepresst wird. Dieses Sicherheitskonzept ist gemäß dem derzeitigen Kenntnisstand relativ robust gegenüber Austauschvorgängen. Dies entspricht bspw. auch den Ergebnissen von Rechnungen, die von Korthaus et al. (2004) durchgeführt wurden. In diesen Rechnungen wurde eine „Verdünnung“ der Lösungen in den Einlagerungskammern mit Schutzfluid modelliert. Stellt man den pH (als einen Indikator für das geochemische Milieu, der aber keineswegs alleingültig für die Bewertung ist) als Funktion der ausgetauschten Volumina dar, so ergeben sich in der Regel auch bei mehrfachem Austausch des initialen kammer-spezifischen Lösungsvolumens (Verdünnung) pH-Veränderungen von weniger als einer pH-Einheit.

Die aktuellen Daten zum Lösungsaustausch zeigen, dass in vielen Einlagerungskammern der Beitrag von Schutzfluid insbesondere zu späteren Zeiten dominiert. Die Rechnungen zeigen zudem, dass die geochemischen, in der Regel  $\text{Mg}(\text{OH})_2$ - $\text{MgCl}_2$ -gepufferten

Bedingungen durch die Austauschvorgänge nicht verändert werden. Zusammenfassend zeigt sich, dass die geochemischen Bedingungen in den Kammern entweder als robust angesehen werden können, oder die Veränderungen so sind, dass sie von einem Ca-dominierten zu einem Mg-dominiertem System übergehen. Dies kann zu geringeren Radionuklidlöslichkeiten in Lösung führen und ist damit eher günstiger für das Sicherheitskonzept der Schachanlage Asse.

Exemplar für BMBF und BMU

## 5 Schlussfolgerungen

Im vorliegenden Bericht werden Möglichkeiten aufgezeigt, an Hand derer die Gültigkeit der Ergebnisse thermodynamischer Rechnungen bzw. des angewendeten QCS-Ansatzes bei Berücksichtigung von Lösungsaustausch zwischen den Einlagerungskammern der Schachanlage Asse zu überprüfen ist. Die notwendigen Bedingungen für die Anwendbarkeit des QCS-Modellansatzes auf die Einlagerungskammern, d.h. ein langsamer und geringer Lösungsaustausch, wurden über einen Vergleich von Equilibrierungs- mit Lösungsaufenthaltszeiten sowie über Rechnungen zum Effekt des Lösungsaustausch auf das geochemische Milieu und Radionuklidlöslichkeiten nachgewiesen.

Aus Detailrechnungen zu den Lösungsbewegungen in und zwischen den Einlagerungskammern wurden Aufenthaltszeiten der Lösungen in den Einlagerungskammern und Austauschströme erhalten. Es zeigt sich, dass die mittleren Aufenthaltszeiten deutlich länger sind als die Equilibrierungszeiten, die für die Umsetzung der geochemisch relevanten Komponenten erwartet werden. Chemische Reaktionen, wie die Degradation von organischen Abfallkomponenten und die Bildung von Mg-haltigen Carbonatfestphasen, deren Equilibrierung große Zeitintervalle benötigt oder deren Equilibrierungszeiten sich nicht belastbar bestimmt lassen, können über Variationen der thermodynamischen Rechnungen simuliert werden.

Der Stoffaustrag innerhalb der Equilibrierungsphase konnte abgeschätzt werden, wobei als Indikator die Veränderung des pH-Werts bei einer unterstellten Halbierung des für Reaktionen zur Verfügung stehenden Lösungsvolumens herangezogen wurde. Es ergaben sich derart geringe Abweichungen für alle Einlagerungskammern, dass der Einfluss des Stoffaustrags als vernachlässigbar eingestuft wird.

Die Ergebnisse der Detailrechnungen zu den Lösungsbewegungen ermöglichten eine Überprüfung, inwieweit die Austauschvorgänge die geochemischen Ergebnisse für den Standardrechenfall beeinflussen. Hierzu wurden entsprechende geochemische Rechnungen durchgeführt. Aus diesen Rechnungen wurde der Einfluss der längerfristig zu erwartenden Austauschströme auf das geochemische Milieu und – anhand der als Indikatoren verwendeten Elemente Am(III) und U(VI) – die Radionuklidlöslichkeiten in den Einlagerungskammern beurteilt. Die Untersuchungen ergaben, dass mit Ausnahme der Einlagerungskammer 10/750 bis 10000 Jahre keine signifikanten Einflüsse zu erwarten sind, d.h. die Änderungen im pH betragen deutlich weniger als eine Einheit und die Konzentrationen der relevanten Makrokomponenten bzw. der untersuchten Radionuklide Am(III) und U(VI) ändern sich in der Regel um deutlich weniger als eine Größenordnung. Für die Einlagerungskammer 10/750 ergaben sich bereits nach 3000 Jahren Änderungen der

Ca- und Sulfatkonzentration und damit verbunden ein Anstieg der Am(III)-Löslichkeit um etwa eine Größenordnung. Nach 30000 Jahren zeigten sich in den Einlagerungskammern 4/750 und 7/750 Abnahmen des pH um bis zu eine Einheit und damit verbunden eine Zunahme der Am(III)-Löslichkeiten um etwa eine Größenordnung. Nach 100000 Jahren ergaben sich in der Einlagerungskammer 11/750 eine Abnahme des pH um etwa drei Einheiten und damit verbunden eine Abnahme der U(VI)-Löslichkeit sowie eine Zunahme der Am(III)-Löslichkeit um jeweils etwa eine Größenordnung. Nach dieser langen Zeit ergab sich in der Einlagerungskammer 12/750 eine pH-Absenkung um 0.5 Einheiten und damit verbunden ein Anstieg der Am(III)-Löslichkeit um etwa einen Faktor fünf. Noch nennenswert ist das Ergebnis bei Einlagerungskammer 5/750 nach 30000 Jahren, wo sich eine pH-Erhöhung um 0.5 Einheiten und damit verbunden kleinere Änderungen der Am(III)- und U(VI)-Löslichkeiten um weniger als einen Faktor drei ergaben. Diese Ergebnisse besagen, dass durch die Austauschvorgänge signifikante Abweichungen von den Verhältnissen bei Vorliegen eines quasi-geschlossenen Systems (QCS) nur in vier der zwölf LAW-Kammern und erst nach langen Zeiten zu erwarten sind. Unter den getroffenen Annahmen kann festgehalten werden, dass in den Einlagerungskammern durch die Austauschvorgänge das robuste geochemische Milieu in der Regel nicht signifikant verändert wird. Veränderungen treten zu späten Zeiten auf, führen aber nicht notwendigerweise zu höheren Radionuklidlöslichkeiten für Am(III) und U(VI).

Bei extremer Variation der Eingangsdaten des Inventars an Zement und anorganischem Kohlenstoff sowie des verfügbaren Lösungsvolumens (Bandbreitenrechnungen) zeigen sich für einige Bedingungen deutliche Abweichungen vom geochemischen Milieu, das für den Standardrechenfall berechnet wird. Bandbreitenrechnungen können Aussagen dazu liefern, inwiefern ein unvollständiger Kontakt zwischen den Reaktionspartnern zu signifikanten Beeinflussung des geochemischen Milieus führen kann. Vollständiger Kontakt, bzw. vollständiger Umsatz der in den Rechnungen unterstellten Komponenten (bzw. ihrer Stoffmengen) ist eine grundlegende Voraussetzung für die Anwendbarkeit von Ergebnissen der thermodynamischen Rechnungen. Da diese Voraussetzung praktisch nicht nachweisbar ist, wird gefordert, dass an den Austrittspfaden der Einlagerungskammern hinreichend Versatzmaterial vorhanden ist, um das geochemische Milieu, bzw. die Zusammensetzung der Lösung, in Bereichen zu halten, die die Radionuklidkonzentrationen begrenzen. Dies ist durch die geplanten Verfüllmaßnahmen gewährleistet.

Allgemein wird durch eine Verfüllung mit  $MgCl_2$ -reichem Schutzfluid und  $Mg(OH)_2$ -haltigem Versatz ein robustes geochemisches System erzeugt, welches nach den vorliegenden Untersuchungen auch durch die Austauschvorgänge nicht signifikant gestört wird, was ebenso für die berechneten Löslichkeiten von ausgewählten Radionukliden zutrifft.



## Quellen und Literatur

M. Altmaier, V. Brendler, D. Bosbach, B. Kienzler, C. Marquardt, V. Neck, A. Richter (2004). Geochemische Prozesse bei der Ausbreitung von Schadstoffen aus einem Endlager für radioaktive Abfälle: Sichtung, Zusammenstellung von Daten zur geochemischen Modellierung. FZK-INE 002/04, Forschungszentrum Karlsruhe.

G. Bracke, W. Müller (2005). Abbaubarkeit von organischem Kohlenstoff unter salinaren Bedingungen – Darstellung der stöchiometrischen Berechnung einer sicherheitsorientierten kammer-spezifischen CO<sub>2</sub>-Bildung, ISTec-A-947, Februar 2005.

Bundesamt-für-Strahlenschutz (2005). Konzeptionelle und sicherheitstechnische Fragen der Endlagerung radioaktiver Abfälle - Wirtsgesteine im Vergleich. Synthesebericht des Bundesamtes für Strahlenschutz, BfS, D-Salzgitter.

B. Förster, G. Marggraf (2004). Arbeitsunterlage für die geochemische Milieustudie in den Einlagerungskammern: Verfüllkonzeption für die Einlagerungskammern der 750-m und 725-m Sohle für den Fall der Beeinflussung des geochemischen Milieus durch Brucit. FB Asse, D-Remlingen, Stand Juli 2004.

B. Förster, G. Marggraf (2005). Arbeitsunterlage für die geochemische Milieustudie in den Einlagerungskammern: Verfüllkonzeption für die Einlagerungskammern der 750-m- und 725-m-Sohle für den Fall der Beeinflussung des geochemischen Milieus durch Brucit (Verfüllkonzept G). MS Excel Datei \Milieu\_Stand\_21.04.05\_G.xls\ FB Asse, D-Remlingen, Stand April 2005.

B. Kienzler, W. Schüßler, T. Fanghänel, A. Bauer, P. Vejmelka P. (2000a). Bewertung der Sorption und Desorption von Radionukliden an zusätzlich einzubringenden Versatzstoffen im Grubengebäude des Forschungsbergwerks Asse sowie die Beschreibung des geochemischen Milieus im Versatz: (A) Bewertung der Radionuklidrückhaltung in den Einlagerungskammern und verfüllten Zugangsstrecken anhand einer Literaturstudie., pp. 80. Forschungszentrum Karlsruhe. FZK-INE 04/99.

B. Kienzler, W. Schüßler, S. Wilhelm, A. Klink (2000b) Bewertung der Sorption und Desorption von Radionukliden an zusätzlich einzubringenden Versatzstoffen im Grubengebäude des Forschungsbergwerks Asse sowie die Beschreibung des geochemischen Milieus im Versatz: (B) Modellierung der Veränderung des geochemischen Milieus in den Einlagerungskammern und ihren Zugangsstrecken durch zusätzlich einzubringende Versatzstoffe., pp. 95. Forschungszentrum Karlsruhe. FZK-INE 10/99.

B. Kienzler, P. Vejmelka, H.-J. Herbert, H. Meyer, C. Altenhein-Hase (2000c). Long-term leaching experiments fo full-scale cemented waste forms: Experiments and modelling. Nuclear Technology, vol. 129, pp. 101-118, 2000.

B. Kienzler, M. Schlieker, W. Schüßler, V. Metz, D. Hentschel, C. Nies, N. Kerner, A. Seither, H. Meyer, G. Bracke (2002). Langzeit Auslaug- und Korrosionsexperimente an zementierten

1:1 Gebinden in der Schachanlage Asse: Probennahme und Auswertung 2001, Forschungszentrum Karlsruhe FZKA 6716, 2002.

B Kienzler, M. Schlieker, A. Bauer, V. Metz, H. Meyer (2004). Langzeit Auslaug- und Korrosionsexperimente an zementierten 1:1 Gebinden in der Schachanlage Asse. Probennahme und Auswertung 2003. Forschungszentrum Karlsruhe Wissenschaftliche Berichte; FZKA 7059, 38 (2004).

E. Korthaus, V. Metz, B. Kienzler (2004). Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachanlage Asse, Teil 10a: Geochemische Modellrechnungen zur Robustheit des geochemischen Milieus mit Mg-Depot, FZK-INE 004/04, Karlsruhe, 2004.

E. Korthaus, V. Metz, J. Lützenkirchen und B. Kienzler (2006a) Bestimmung des maximal zulässigen Lösungsaustauschs zwischen den Einlagerungskammern – Ergebnisse der Untersuchungen zum einmaligen Lösungsaustausch, INE-FZK 010/05, 2006

E. Korthaus, V. Metz, J. Lützenkirchen, B. Kienzler (2006b). Thermodynamische Rechnungen zum Einfluss eines Lösungsaustausches zwischen den Einlagerungskammern auf das kammer-spezifische geochemische Milieu, FZK-INE 003-06, Karlsruhe, 2006.

R. Köster, G. Rudolph (1991): The equilibrium concept – an extended approach to assess long-term radionuclide release from repositories, Nuclear Technology, 96(192-201), 1991.

J. Lützenkirchen, E. Korthaus, V. Metz (2005). Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für das FB Asse: Abschlussbericht Teil 11, Überprüfung des Gültigkeitsbereichs für den Modellansatz quasi-geschlossenes System. FZK-INE 004-05, Karlsruhe, 2005.

J. Lützenkirchen, V. Metz, B. Kienzler (2006). Abschätzung der kammer-spezifischen Pu- und Am-Konzentrationen für Verfüllkonzept G unter Berücksichtigung von Löslichkeits- und Sorptionsprozessen. FZK-INE 005/06. Forschungszentrum Karlsruhe, Entwurf August 2006

V. Metz, W. Schüßler, P. Vejmelka, H. Hofmann, A. Bauer, B. Kienzler (2003a). Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachanlage Asse, Teil 5: Wirksamkeit eines Mg-Depots zur Kontrolle des Karbonatgehaltes in Salzlösungen und resultierende Fällungsprozesse, FZK-INE 003/02, Karlsruhe, 2003.

V. Metz, W. Schüßler, B. Kienzler (2003b). Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachanlage Asse. Teil 7, Abschlussbericht, Geochemische Modellierungen zu Einlagerungskammern der Schachanlage Asse FZK-INE 011/03, Karlsruhe, 2003.

V. Metz, A. Bauer, P. Vejmelka, M. Schlieker, E. Soballa, S. Rabung, N. Kerner, T. Kisely, S. Hilpp, A. Seither, D. Hentschel, J. Lützenkirchen, B. Kienzler (2004a). Nachweis der

geochemischen Wirksamkeit von Versatzstoffen aus Mg-Hydroxid/Mg-Oxychlorid in Q-Lösung, FZK-INE 006/04, Karlsruhe, 2004.

V. Metz, B. Kienzler, M. Altmaier, J. Lützenkirchen, E. Korthaus (2004b). Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachanlage Asse, Geochemische Modellrechnungen für die Schachanlage Asse - Überprüfung der Methodik mittels experimenteller Ergebnisse, FZK-INE 001/04, Karlsruhe, 2004.

V. Metz, E. Korthaus, J. Lützenkirchen, B. Kienzler (2006). Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für die Schachanlage Asse: Berechnung des Radionuklidquellterms auf Grundlage der Verfüllkonzept G und MAW. FZK-INE 008/05. FZK-INE 008/05, Forschungszentrum Karlsruhe.

J. Poppei, G., Resele, G., Mayer, G., N. Hubschwerlen (2006). Lösungs- und Gasbewegung beim Einlagerungsbereich MAW in der Betriebs- und frühen Nachbetriebsphase, Modellrechnungen mit dem Programm TOUGH2, Bericht 3331/76, Revision 03, Colenco Power Engineering AG, CH-Baden.

W. Schüßler, B. Kienzler (2000). Bewertung der Sorption und Desorption von Radionukliden an zusätzlich einzubringenden Versatzstoffen im Grubengebäude des Forschungsbergwerks Asse sowie die Beschreibung des geochemischen Milieus im Versatz., pp. 36. Forschungszentrum Karlsruhe, D-Karlsruhe. FZK-INE 004/00.

W. Schüßler, B. Kienzler, S. Wilhelm (2000). Bewertung der Sorption und Desorption von Radionukliden an zusätzlich einzubringenden Versatzstoffen im Grubengebäude des Forschungsbergwerks Asse sowie die Beschreibung des geochemischen Milieus im Versatz: (C) Modellierung der Elementlöslichkeiten in den ausgewählten versetzten Einlagerungskammern bzw. Zugangsstrecken, pp. 132. Forschungszentrum Karlsruhe, D-Karlsruhe. FZK-INE 13/99.

W. Schüßler, P. Vejmelka, H. Hofmann, A. Bauer, D. Hentschel, S. Bäurer, T. Kisely, C. Nies, V. Metz, B. Kienzler (2002) Experimentelles Programm zur Bestätigung der Ergebnisse von standortspezifischen Modellrechnungen für das FB Asse: Abschlussbericht Teil 1, Geochemisches Milieu. FZK-INE 001/02, pp. 60. Forschungszentrum Karlsruhe.

W. Stumm, J.J. Morgan (1996). Aquatic Chemistry, Chemical Equilibria and Rates in Natural Waters, S.54, Wiley-Interscience, New York, 1996.

S. Wilhelm, J. Holocher, R. Schwarz, R. Namar, J. Poppei (2005). Schachanlage Asse – Langzeitsicherheitsnachweis, Lösungsaustausch in den Einlagerungskammern: Ergebnisse für Detailmodell LAW3, Colenco Memorandum 3509/15 Rev.03a, 7.9.2005, Colenco Power Engineering AG, Baden, Schweiz

S. Wilhelm, J. Holocher (2006a) Schachanlage Asse – Langzeitsicherheitsnachweis, Lösungsaustausch in den Einlagerungskammern: Ergebnisse für Detailmodell LAW2,

Colenco Memorandum 3165/126, 29.3.2006, Colenco Power Engineering AG, Baden, Schweiz

S. Wilhelm, J. Holocher (2006b) Schachtanlage Asse – Langzeitsicherheitsnachweis, Lösungsaustausch in den Einlagerungskammern: Ergebnisse für Detailmodell LAW4, Colenco Memorandum 3165/128 Rev.1, 5.4.2006, Colenco Power Engineering AG, Baden, Schweiz

S. Wilhelm, J. Holocher (2006c) Schachtanlage Asse – Langzeitsicherheitsnachweis, Lösungsaustausch in den ELB LAW1A und LAW1B: Ergebnisse aus dem Detailmodell LAW2, Colenco Memorandum 3165/126, 31.3.2006, Colenco Power Engineering AG, Baden, Schweiz

S. Wilhelm, G. Resele, J. Holocher & J. Poppei (2006) Projekt Langzeitsicherheit Asse: Detaillierte Modellrechnungen zum Lösungsaustausch in den Einlagerungskammern für den Referenzfall.- ALSA-C-8.2M-CO148, 28.11.2006, Colenco Power Engineering AG, Baden, Schweiz

T.J. Wolery (1992a). EQ3/6, a software package for geochemical modeling of aqueous systems: package overview and installation guide. UCRL-MA-110662 PT I.

T.J. Wolery (1992b) EQ3NR, a computer program for geochemical aqueous speciation-solubility calculations: theoretical manual,. UCRL-MA-110662 PT III.

T.J. Wolery und S. A. Daveler (1992) EQ6, a computer program for reaction path modeling of aqueous systems: theoretical manual, user's guide, und related documentation. UCRL-MA-110662 PT IV.

Exemplar für BMBF und BMUB

## ANHANG A

### Mittlere Aufenthaltszeiten in den Einlagerungskammern für die untersuchten Zeiten

In den folgenden Tabellen sind mittlere Aufenthaltsdauern für die einzelnen Einlagerungskammern aufgeführt, wie sie sich aus den Detailmodellen ergeben (Wilhelm et al., 2006). Aus den Berechnungen im Rahmen der Detailmodelle folgt, dass die niedrigste mittlere Aufenthaltszeit mehr als 500 Jahre beträgt.

Tabelle A-1-1: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 1/750 (Wilhelm et al., 2006).

#### Einlagerungskammer 1/750

Zeit [a]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]	kumulierte Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	mittlerer Abfluss [m <sup>3</sup> /a]	mittlere Aufenthaltsdauer [a]
0	1'285	0	0	-
977	995	1'157	1.2E+00	962
2'951	592	1'998	4.3E-01	1'863
9'772	346	3'141	1.7E-01	2'800
29'512	266	4'472	6.7E-02	4'543
100'000	221	6'756	3.2E-02	7'510

Tabelle A-1-2: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 2/750 (Wilhelm et al., 2006).

#### Einlagerungskammer 2/750

Zeit [a]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]	kumulierte Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	mittlerer Abfluss [m <sup>3</sup> /a]	mittlere Aufenthaltsdauer [a]
0	1'022	0	0	-
977	470	783	8.0E-01	931
2'951	327	1'167	1.9E-01	2'050
9'772	207	1'871	1.0E-01	2'588
29'512	162	2'685	4.1E-02	4'471
100'000	127	3'881	1.7E-02	8'530

Tabelle A-1-3: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 4/750 (Wilhelm et al., 2006).

**Einlagerungskammer 4/750**

Zeit [a]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]	kumulierte Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	mittlerer Abfluss [m <sup>3</sup> /a]	mittlere Aufenthaltsdauer [a]
0	1'754	0	0	-
977	848	1'243	1.3E+00	1'023
2'951	526	1'759	2.6E-01	2'626
9'772	310	3'016	1.8E-01	2'270
29'512	236	6'269	1.6E-01	1'657
100'000	195	8'491	3.2E-02	6'840

Tabelle A-1-4: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 5/750 (Wilhelm et al., 2006).

**Einlagerungskammer 5/750**

Zeit [a]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]	kumulierte Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	mittlerer Abfluss [m <sup>3</sup> /a]	mittlere Aufenthaltsdauer [a]
0	4'766	0	0	-
977	1'538	3'586	3.7E+00	859
2'951	889	4'757	5.9E-01	2'046
9'772	503	5'714	1.4E-01	4'963
29'512	380	6'260	2.8E-02	15'984
100'000	314	8'166	2.7E-02	12'836

Tabelle A-1-5: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 6/750 (Wilhelm et al., 2006).

**Einlagerungskammer 6/750**

Zeit [a]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]	kumulierte Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	mittlerer Abfluss [m <sup>3</sup> /a]	mittlere Aufenthaltsdauer [a]
0	4'305	0	0	-
977	2'005	3'684	3.8E+00	837
2'951	1'229	4'862	6.0E-01	2'710
9'772	719	5'780	1.3E-01	7'239
29'512	546	6'352	2.9E-02	21'830
100'000	451	7'182	1.2E-02	42'327

Tabelle A-1-6: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 7/750 (Wilhelm et al., 2006).

**Einlagerungskammer 7/750**

<b>Zeit</b> [a]	<b>Lösungsvolumen</b> [m <sup>3</sup> ]	<b>kumulierte Abflüsse</b> [m <sup>3</sup> ]	<b>mittlerer Abfluss</b> [m <sup>3</sup> /a]	<b>mittlere Aufenthaltsdauer</b> [a]
0	5'303	0	0	-
977	1'595	4'511	4.6E+00	747
2'951	916	5'229	3.6E-01	3'452
9'772	517	6'016	1.2E-01	6'211
29'512	390	6'797	4.0E-02	11'456
100'000	322	7'817	1.4E-02	24'605

Tabelle A-1-7: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 8/750 (Wilhelm et al., 2006).

**Einlagerungskammer 8/750**

<b>Zeit</b> [a]	<b>Lösungsvolumen</b> [m <sup>3</sup> ]	<b>kumulierte Abflüsse</b> [m <sup>3</sup> ]	<b>mittlerer Abfluss</b> [m <sup>3</sup> /a]	<b>mittlere Aufenthaltsdauer</b> [a]
0	3'205	0	0	-
977	1'106	4'050	4.1E+00	520
2'951	647	6'007	9.9E-01	884
9'772	369	8'311	3.4E-01	1'503
29'512	279	11'717	1.7E-01	1'877
100'000	231	16'996	7.5E-02	3'404

Tabelle A-1-8: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 10/750 (Wilhelm et al., 2006).

**Einlagerungskammer 10/750**

<b>Zeit</b> [a]	<b>Lösungsvolumen</b> [m <sup>3</sup> ]	<b>kumulierte Abflüsse</b> [m <sup>3</sup> ]	<b>mittlerer Abfluss</b> [m <sup>3</sup> /a]	<b>mittlere Aufenthaltsdauer</b> [a]
0	3'671	0	0	-
977	1'137	3'462	3.5E+00	679
2'951	647	4'693	6.2E-01	1'432
9'772	364	6'122	2.1E-01	2'413
29'512	275	7'857	8.8E-02	3'634
100'000	227	10'117	3.2E-02	7'830

Tabelle A-1-9: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 10/750 (Wilhelm et al., 2006).

**Einlagerungskammer 11/750**

<b>Zeit</b> <b>[a]</b>	<b>Lösungsvolumen</b> <b>[m<sup>3</sup>]</b>	<b>kumulierte</b> <b>Abflüsse</b> <b>[m<sup>3</sup>]</b>	<b>mittlerer</b> <b>Abfluss</b> <b>[m<sup>3</sup>/a]</b>	<b>mittlere</b> <b>Aufenthaltsdauer</b> <b>[a]</b>
0	2'932	0	0	-
977	1'544	3'277	3.4E+00	668
2'951	972	4'513	6.3E-01	2'009
9'772	578	5'681	1.7E-01	4'525
29'512	440	6'396	3.6E-02	14'045
100'000	364	14'662	1.2E-01	3'428

Tabelle A-1-10: Daten zu Lösungsvolumina und Abflüssen sowie mittlere Aufenthaltsdauern in der Einlagerungskammer 12/750 (Wilhelm et al., 2006).

**Einlagerungskammer 12/750**

<b>Zeit</b> <b>[a]</b>	<b>Lösungsvolumen</b> <b>[m<sup>3</sup>]</b>	<b>kumulierte</b> <b>Abflüsse</b> <b>[m<sup>3</sup>]</b>	<b>mittlerer</b> <b>Abfluss</b> <b>[m<sup>3</sup>/a]</b>	<b>mittlere</b> <b>Aufenthaltsdauer</b> <b>[a]</b>
0	1'856	0	0	-
977	1'097	917	9.4E-01	1'574
2'951	709	1'762	4.3E-01	2'109
9'772	431	2'891	1.7E-01	3'444
29'512	329	3'813	4.7E-02	8'148
100'000	273	5'350	2.2E-02	13'815



## ANHANG B

### Eckdaten für die Berechnungen zum Einfluss der Austauschvorgänge und Darstellung der Ergebnisse in graphischer Form

In diesem Anhang sind die Eckdaten für die Austauschvorgänge kammer-spezifisch dokumentiert, die aus den Detailmodellen resultieren (Wilhelm et al. 2005, Wilhelm und Holocher, 2006a-c). Es sind auch die kammer-spezifischen Entwicklungen für das Hohlraumvolumen und das Lösungsvolumen angegeben. Es zeigt sich hier insbesondere, dass die Porenvolumina in den Kammern durch die Konvergenz stark abnehmen und Lösungsvolumen zusätzlich durch Gasbildung bzw. Gasspeicherung verdrängt wird. Des Weiteren sind in Abbildungen die zeitlichen Entwicklungen der gelösten Makrokomponenten-Konzentrationen kammer-spezifisch im Detail für die Optionen Flüsse und Beiträge aufgetragen, die die Grundlage der im Hauptteil (Abschnitt 4.5.3) diskutierten Ergebnisse darstellen. Die Dokumentation erfolgt einlagerungsbereichs- und kammer-spezifisch.

#### Einlagerungsbereich LAW2

##### Einlagerungskammer 4/750:

Tabelle A-2-1a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 4/750

Zeit [a]	Porenvolumen [m <sup>3</sup> ]	Sättigung [-]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]
0	1925	0.911	1754
977	1148	0.739	848
2951	711	0.739	526
9772	420	0.739	310
29512	319	0.740	236
100000	264	0.740	195

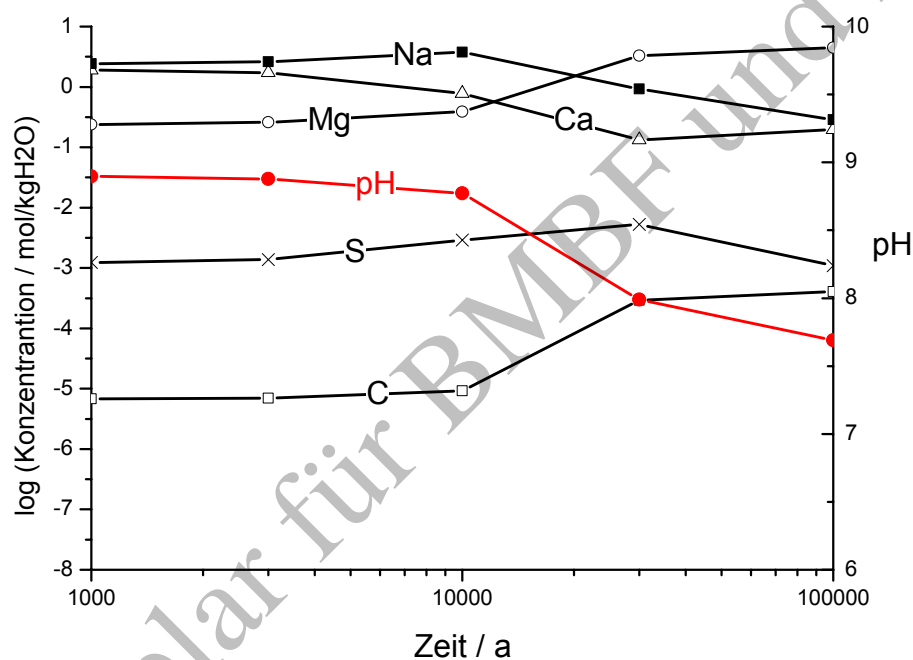
Tabelle A-2-1b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 4/750

Zeitintervall [a]	Abflüsse [m <sup>3</sup> ] Gesamt	Zuflüsse [m <sup>3</sup> ]		
		von 3/750	725-m-Sohle	von 8/750
0 - 977	1243	32	66	132
977 - 2951	517	111	0	67
2951 - 9772	1256	463	0	477
9772 - 29512	3253	1398	0	1551
29512 - 100000	2223	969	569	475

## ANHANG B

Tabelle A-2-1c: Lösungs(volumen)beiträge zur Einlagerungskammer 4/750 anfangs und nach den Zeitintervallen

Zeit [a]	Lösungsbeiträge [m <sup>3</sup> ]							
	LAW1A	LAW1B	4/750	8/750	10/750	LAW3	9/750+LAW4	andere (SF)
0	0	0	1754	0	0	0	0	0
977	0	0	728	50	1	0	2	68
2951	1	0	356	31	4	6	3	134
9772	13	1	28	14	14	47	8	199
29512	18	2	6	6	8	36	6	157
100000	23	4	4	5	7	18	5	131

Abbildung A-2-1a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 4/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

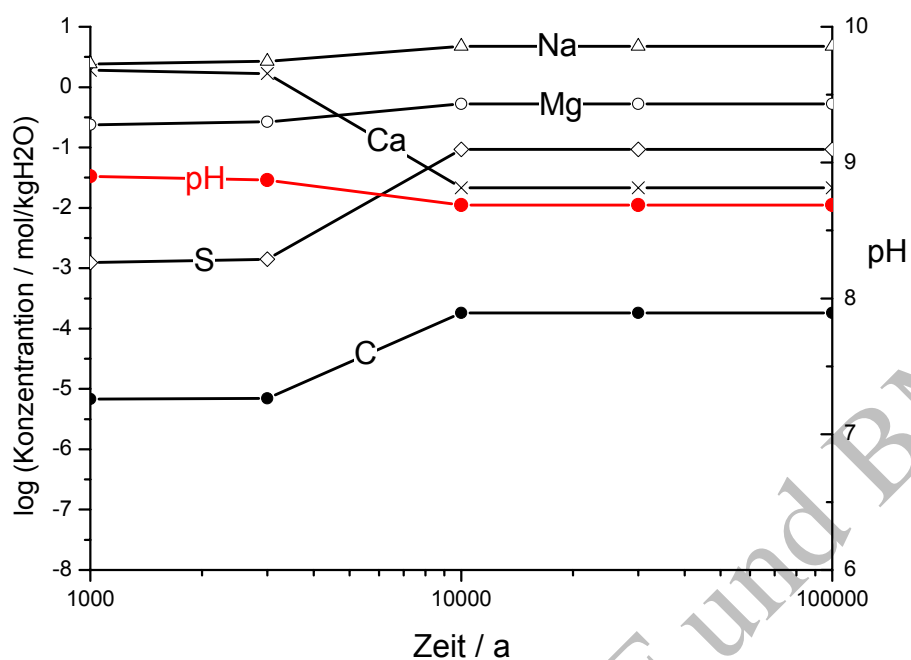


Abbildung A-2-1b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 4/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

Einlagerungskammer 8/750:

Tabelle A-2-2a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 8/750

Zeit [a]	Porenvolumen [m <sup>3</sup> ]	Sättigung [-]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]
0	3431	0.934	3205
977	1372	0.806	1106
2951	801	0.807	647
9772	457	0.807	369
29512	346	0.807	279
100000	286	0.807	231

Tabelle A-2-2b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 8/750

Zeitintervall [a]	Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	Zuflüsse [m <sup>3</sup> ]			
	Gesamt	von AS2	725-m-Sohle	von 4/750	von 9/750
0 - 977	4049	66	863	612	289
977 - 2951	1957	103	1282	41	0
2951 - 9772	2305	266	1654	0	0
9772 - 29512	3406	310	2884	0	0
29512 - 100000	5278	428	3922	555	189

Tabelle A-2-2c: Lösungs(volumen)beiträge für die Einlagerungskammer 8/750 anfangs und nach den Zeitintervallen

Zeit [a]	Lösungsbeiträge [m <sup>3</sup> ]							
	LAW1A	LAW1B	4/750	8/750	9/750	10/750	LAW3	andere (SF)
0	0	0	0	3205	0	0	0	0
977	5	0	209	447	67	37	6	335
2951	26	1	52	108	43	68	43	305
9772	42	4	26	27	13	34	36	187
29512	32	5	11	12	7	15	27	170
100000	30	5	5	6	4	8	17	155

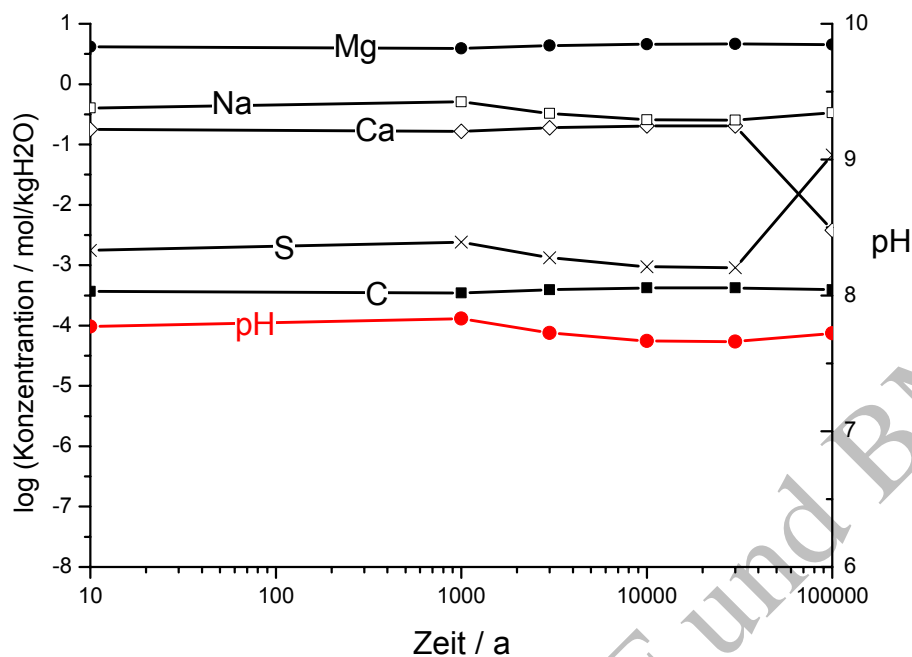


Abbildung A-2-2a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 8/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

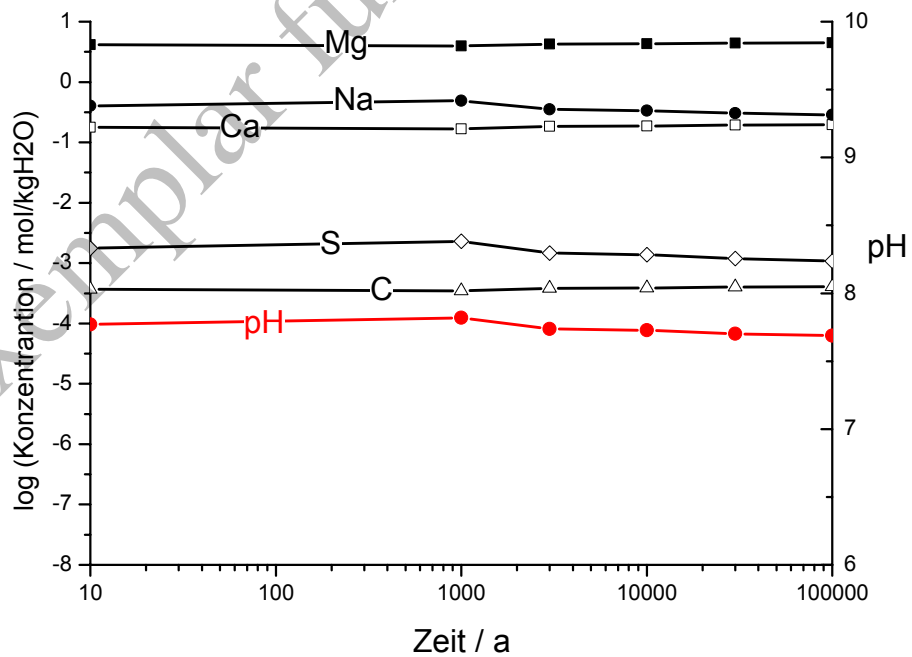


Abbildung A-2-2b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 8/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

Einlagerungskammer 10/750:

Tabelle A-2-3a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 10/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Porenvolumen [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Sättigung [-]</b>	<b>Lösungsvolumen [m<sup>3</sup>]</b>
0	3918	0.937	3671
977	1396	0.815	1137
2951	794	0.815	647
9772	447	0.815	364
29512	337	0.815	275
100000	279	0.815	227

Tabelle A-2-3b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 10/750

<b>Zeitintervall [a]</b>	<b>Abflüsse [m<sup>3</sup>]</b>		<b>Zuflüsse [m<sup>3</sup>]</b>	
	<b>Gesamt</b>	<b>von AS2</b>	<b>725-m-Sohle</b>	<b>von 9/750</b>
0 - 977	3462	68	377	417
977 - 2951	1230	107	591	0
2951 - 9772	1429	279	796	0
9772 - 29512	1735	308	1286	0
29512 - 100000	2261	289	1822	65

Tabelle A-2-3c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 10/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Lösungsbeiträge [m<sup>3</sup>]</b>							
	<b>LAW1A</b>	<b>LAW1B</b>	<b>4/750</b>	<b>8/750</b>	<b>9/750</b>	<b>10/750</b>	<b>LAW3</b>	<b>andere (SF)</b>
0	0	0	0	0	0	3671	0	0
977	6	0	3	36	58	814	3	216
2951	35	1	16	47	38	238	28	243
9772	56	5	20	23	12	39	28	181
29512	35	5	10	11	6	15	24	166
100000	36	5	4	5	3	6	12	155

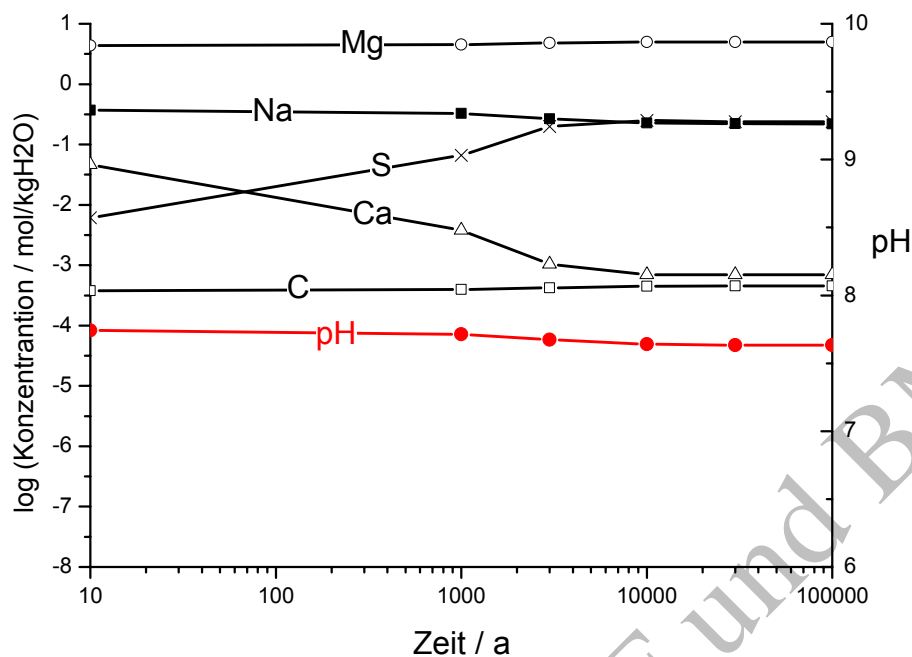


Abbildung A-2-3a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 10/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

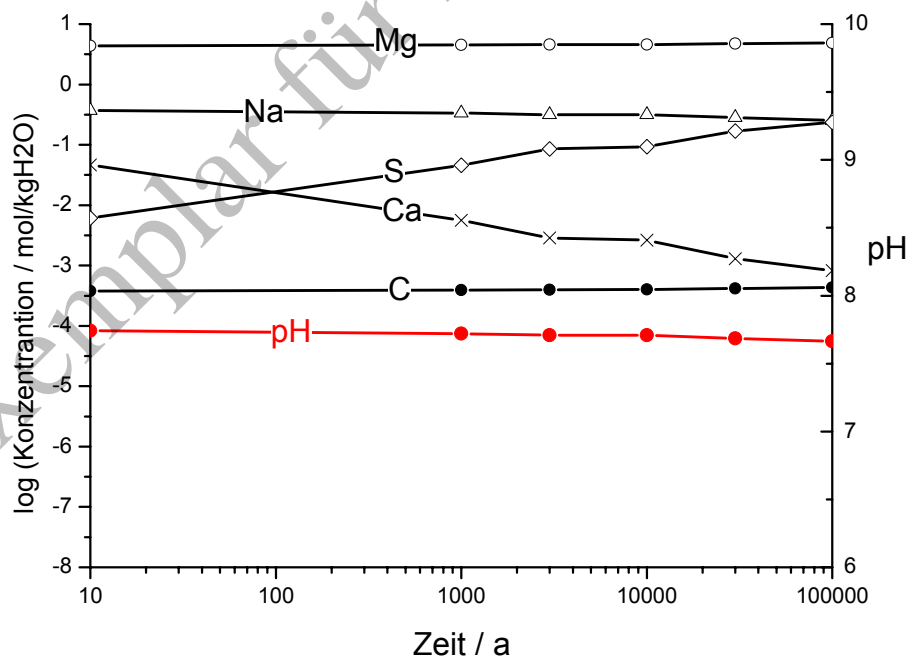


Abbildung A-2-3b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 10/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

### Einlagerungsbereich LAW3

Einlagerungskammer 5/750:

Tabelle A-2-4a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 5/750

Zeit [a]	Porenvolumen [m <sup>3</sup> ]	Sättigung [-]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]
0	5142	0.927	4766
977	1958	0.785	1538
2951	1132	0.785	889
9772	641	0.786	503
29512	484	0.786	380
100000	400	0.786	314

Tabelle A-2-4b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 5/750

Zeitintervall [a]	Abflüsse [m <sup>3</sup> ] Gesamt	Zuflüsse [m <sup>3</sup> ]		
		von 3/750	von-725m-Sohle	von 6/750
0 - 977	3587	2	124	276
977 - 2951	1171	0	0	500
2951 - 9772	956	0	3	546
9772 - 29512	546	12	21	373
29512 - 100000	1906	1239	75	470

Tabelle A-2-4c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 5/750

Zeit [a]	Lösungsbeiträge [m <sup>3</sup> ]							
	LAW1A	LAW2	5/750	6/750	7/750	11/750	LAW4	andere (SF)
0	0	0	4766	0	0	0	0	0
977	0	0	1458	63	4	0	0	12
2951	0	0	601	218	49	0	0	20
9772	1	0	189	184	98	1	0	31
29512	7	3	65	94	80	5	5	121
100000	20	19	11	14	20	4	7	218



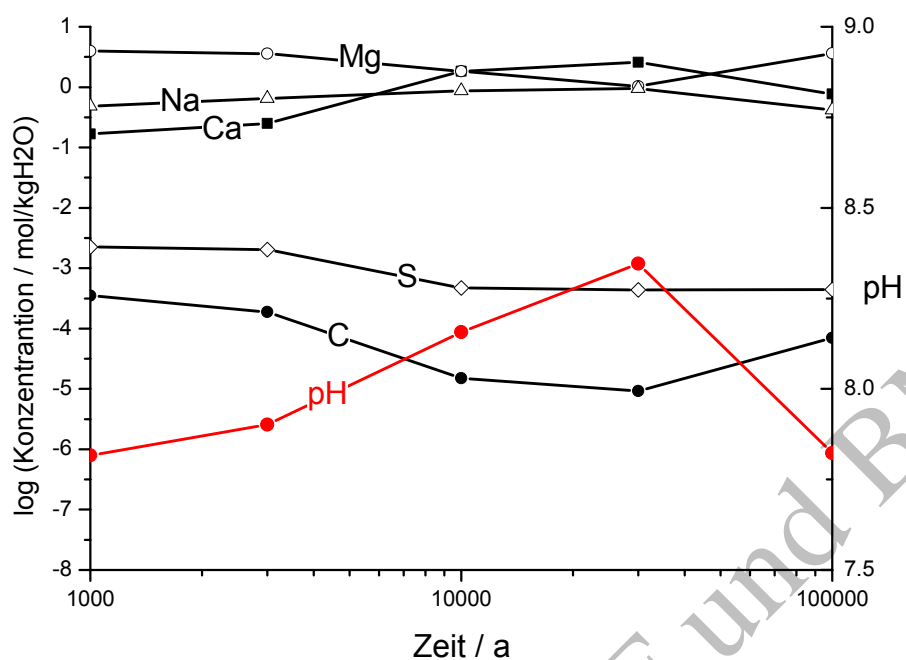


Abbildung A-2-4a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 5/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

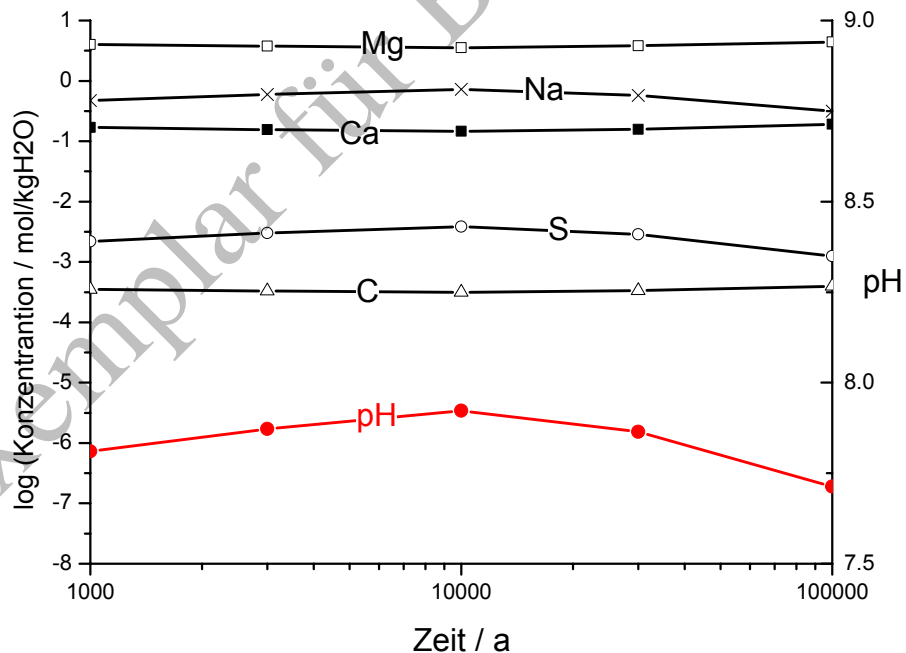


Abbildung A-2-4b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 5/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

Einlagerungskammer 6/750:

Tabelle A-2-5a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 6/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Porenvolumen [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Sättigung [-]</b>	<b>Lösungsvolumen [m<sup>3</sup>]</b>
0	4599	0.936	4305
977	2469	0.812	2005
2951	1513	0.812	1229
9772	885	0.812	719
29512	671	0.813	546
100000	555	0.813	451

Tabelle A-2-5b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 6/750

<b>Zeitintervall [a]</b>	<b>Abflüsse [m<sup>3</sup>] Gesamt</b>	<b>Zuflüsse [m<sup>3</sup>]</b>		
		<b>von 725-m-Sohle</b>	<b>von 5/750</b>	<b>von 7/750</b>
0 - 977	3684	160	761	406
977 - 2951	1178	0	0	390
2951 - 9772	917	2	0	396
9772 - 29512	572	54	0	336
29512 - 100000	831	237	0	485

Tabelle A-2-5c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 6/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Lösungsbeiträge [m<sup>3</sup>]</b>							
	<b>LAW1A</b>	<b>LAW2</b>	<b>5/750</b>	<b>6/750</b>	<b>7/750</b>	<b>11/750</b>	<b>LAW4</b>	<b>andere (SF)</b>
0	0	0	0	4305	0	0	0	0
977	0	0	315	1433	177	0	0	80
2951	0	0	153	714	301	0	0	60
9772	2	0	64	293	280	3	1	76
29512	14	5	36	108	145	9	8	220
100000	27	25	16	22	32	6	10	309

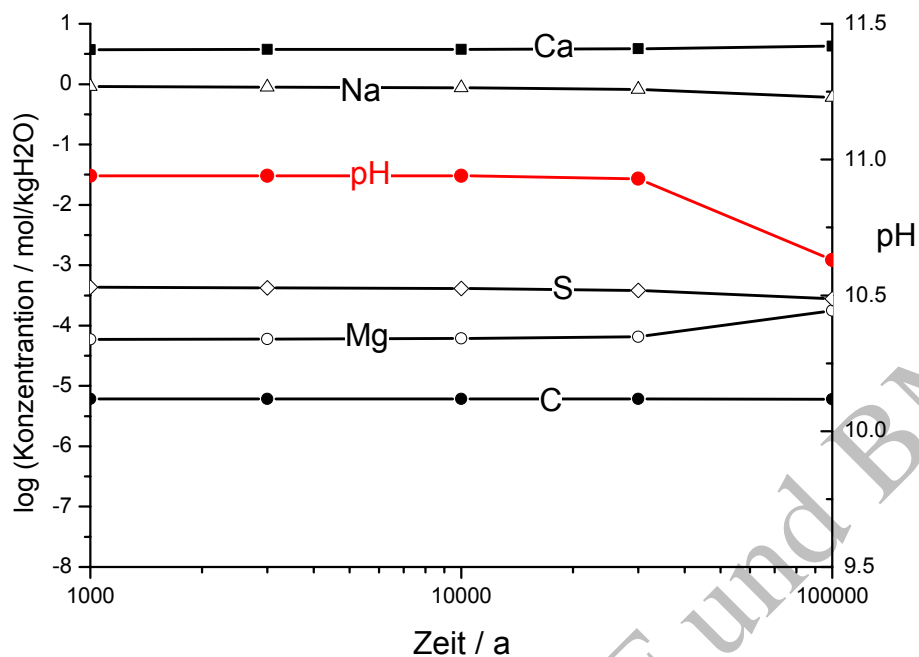


Abbildung A-2-5a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 6/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

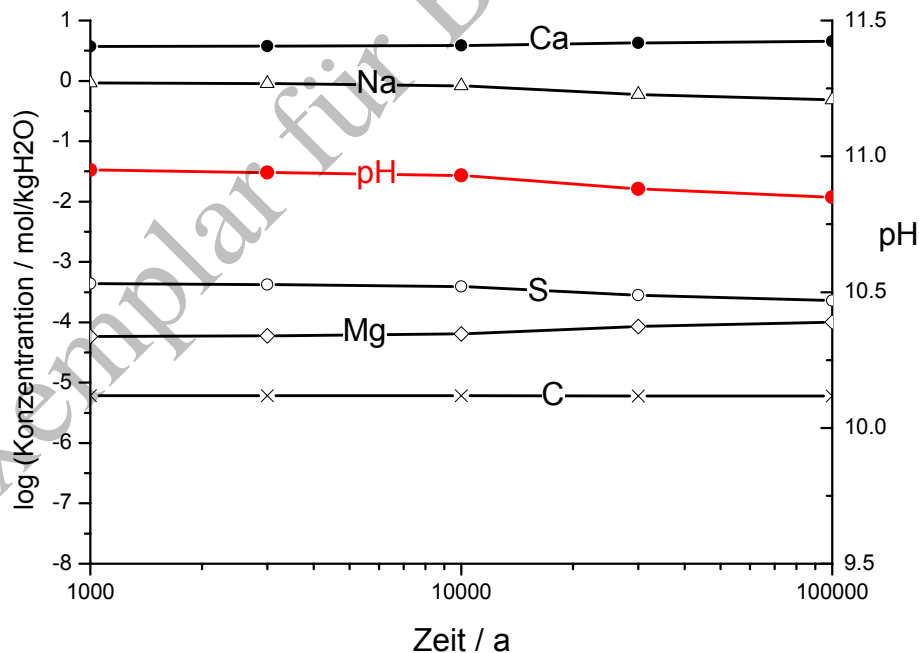


Abbildung A-2-5b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 6/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

Einlagerungskammer 7/750:

Tabelle A-2-6a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 7/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Porenvolumen [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Sättigung [-]</b>	<b>Lösungsvolumen [m<sup>3</sup>]</b>
0	5816	0.912	5303
977	2152	0.741	1595
2951	1235	0.741	916
9772	697	0.741	517
29512	526	0.741	390
100000	434	0.742	322

Tabelle A-2-6b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 7/750

<b>Zeitintervall [a]</b>	<b>Abflüsse [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Zuflüsse [m<sup>3</sup>]</b>			
	<b>Gesamt</b>	<b>von AS2</b>	<b>725-m-Sohle</b>	<b>von 6/750</b>	<b>von 11/750</b>
0 - 977	4511	31	178	532	62
977 - 2951	718	33	2	0	0
2951 - 9772	787	30	351	0	0
9772 - 29512	781	19	628	0	0
29512 - 100000	1019	104	839	0	0

Tabelle A-2-6c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 7/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Lösungsbeiträge [m<sup>3</sup>]</b>							
	<b>LAW1A</b>	<b>LAW2</b>	<b>5/750</b>	<b>6/750</b>	<b>7/750</b>	<b>11/750</b>	<b>LAW4</b>	<b>andere (SF)</b>
0	0	0	0	0	5303	0	0	0
977	0	0	3	123	1405	2	0	63
2951	1	0	2	68	781	1	0	63
9772	9	1	15	35	288	8	3	157
29512	18	6	18	22	72	9	9	235
100000	22	18	10	12	18	4	6	230

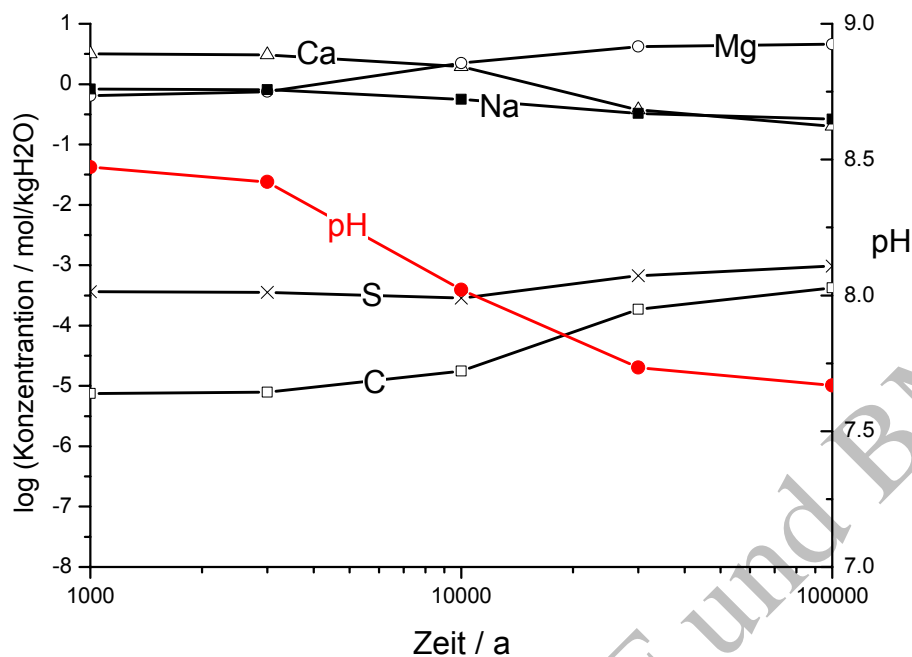


Abbildung A-2-6a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 7/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

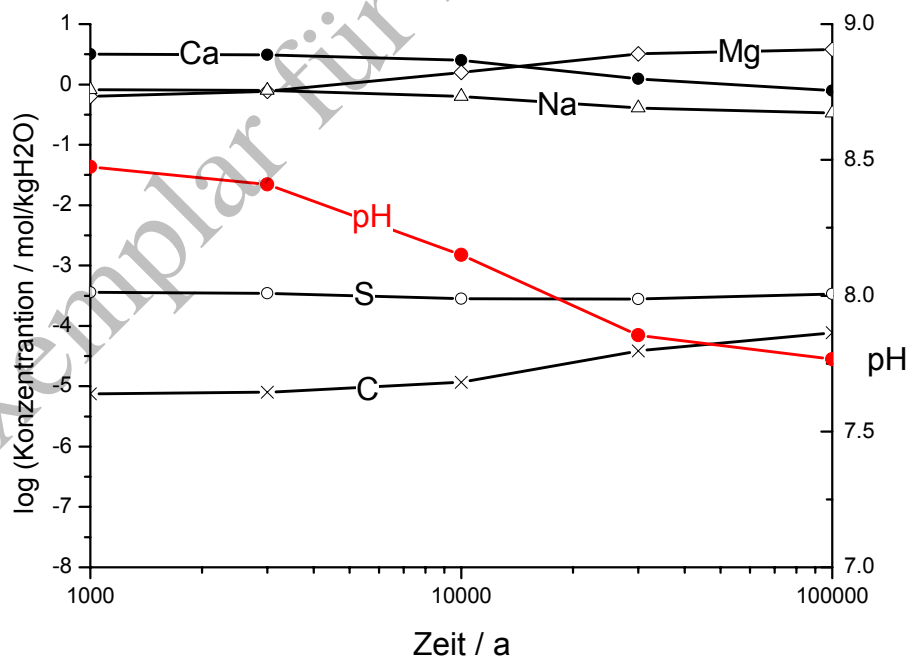


Abbildung A-2-6b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 7/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

Einlagerungskammer 11/750:

Tabelle A-2-7a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 11/750

Zeit [a]	Porenvolumen [m <sup>3</sup> ]	Sättigung [-]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]
0	3,203	0.915	2,932
977	2,053	0.752	1,544
2,951	1,292	0.752	972
9,772	769	0.752	578
29,512	585	0.752	440
100,000	484	0.752	364

Tabelle A-2-7b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 11/750

Zeitintervall [a]	Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	Zuflüsse [m <sup>3</sup> ]			
	Gesamt	von LAW4	von AS2	725-m-Sohle	von 7/750
0 - 977	3275	94	8	164	1650
977 - 2951	1236	429	9	0	185
2951 - 9772	1168	302	13	0	423
9772 - 29512	716	3	32	78	451
29512 - 100000	8266	0	113	7384	531

Tabelle A-2-7c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 11/750

Zeit [a]	Lösungsbeiträge [m <sup>3</sup> ]							
	LAW1A	LAW2	5/750	6/750	7/750	11/750	LAW4	andere (SF)
0	0	0	0	0	0	2932	0	0
977	0	0	1	45	621	726	37	114
2951	0	0	1	25	327	276	276	68
9772	3	0	3	20	222	67	180	82
29512	15	5	14	21	103	21	53	207
100000	25	24	11	13	19	5	7	258

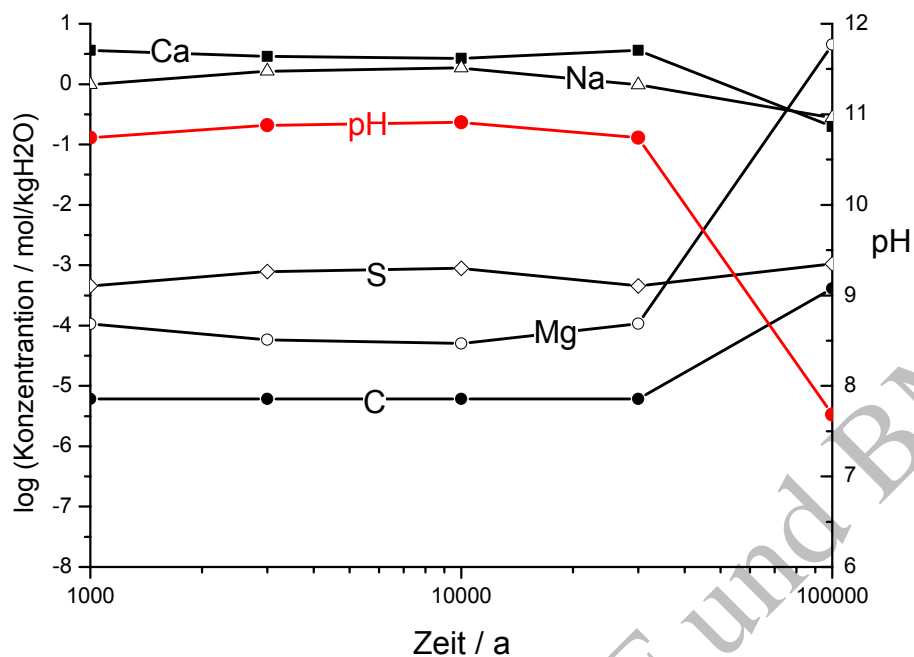


Abbildung A-2-7a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 11/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

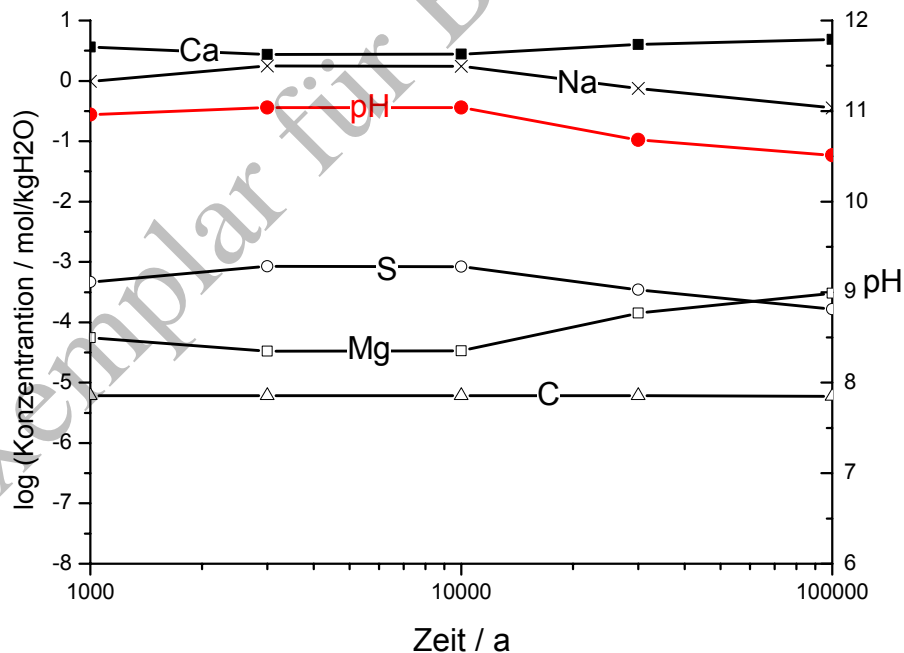


Abbildung A-2-7b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 11/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

## Einlagerungsbereich LAW4

Einlagerungskammer 1/750:

Tabelle A-2-8a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 1/750

Zeit [a]	Porenvolumen [m <sup>3</sup> ]	Sättigung [-]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]
0	1414	0.909	1285
977	1075	0.925	995
2951	747	0.792	592
9772	473	0.733	346
29512	363	0.733	266
100000	301	0.733	221

Tabelle A-2-8b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 1/750

Zeitintervall [a]	Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	Zuflüsse [m <sup>3</sup> ]	
	Gesamt	von Carn. Baufeld	von 2/750
0 - 977	1158	89	679
977 - 2951	841	32	350
2951 - 9772	1143	128	628
9772 - 29512	1331	402	714
29512 - 100000	2284	978	1101

Tabelle A-2-8c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 1/750

Zeit [a]	Lösungsbeiträge [m <sup>3</sup> ]					
	LAW1A	LAW3	1/750	2/750	12/750	andere (SF)
0	0	0	1285	0	0	0
977	0	0	518	363	10	104
2951	0	0	181	265	54	89
9772	0	0	27	72	83	136
29512	0	3	9	20	27	182
100000	1	5	4	9	9	173



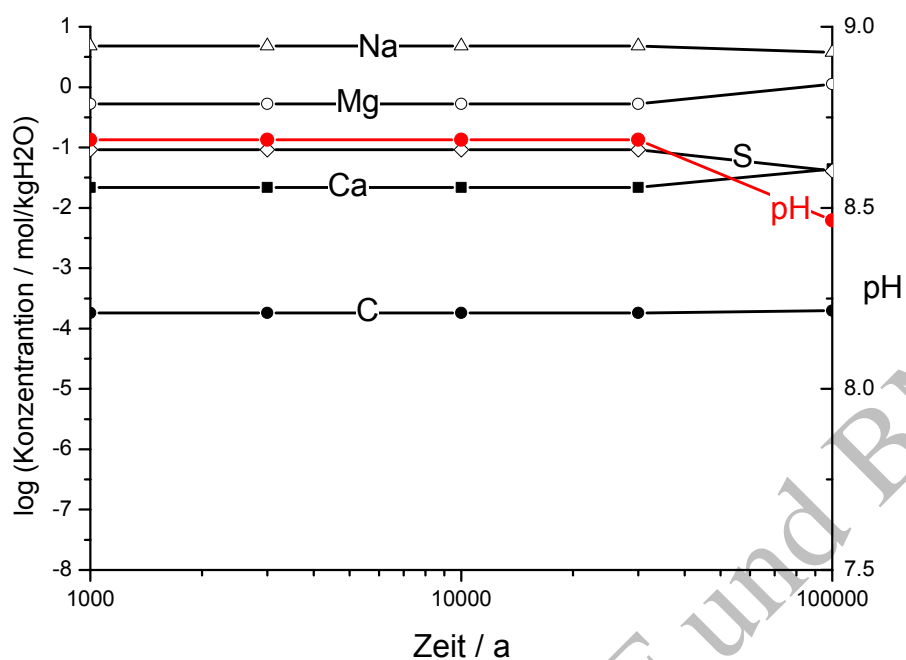


Abbildung A-2-8a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 1/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

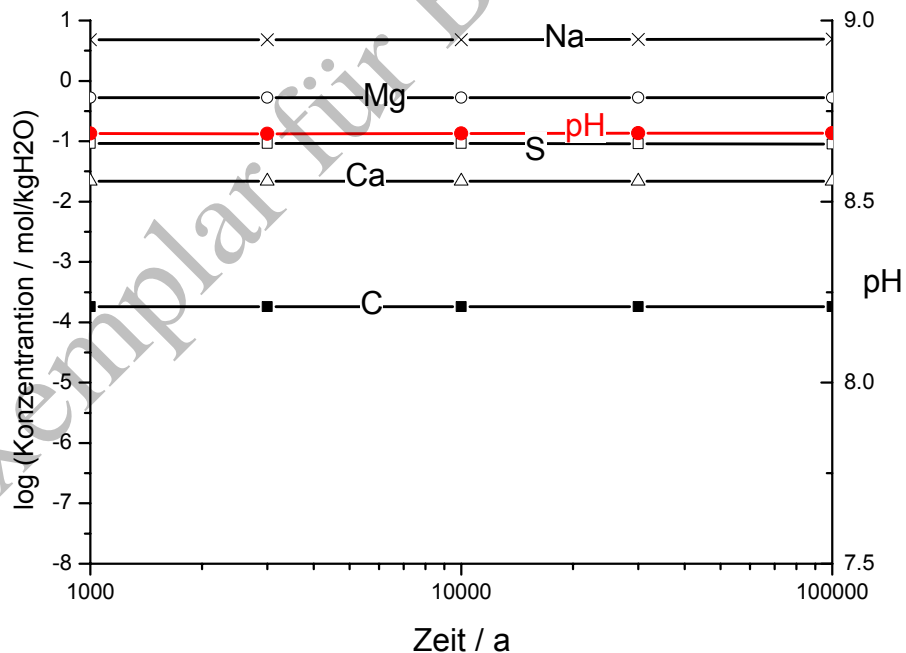


Abbildung A-2-8b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 1/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

Einlagerungskammer 2/750:

Tabelle A-2-9a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 2/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Porenvolumen [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Sättigung [-]</b>	<b>Lösungsvolumen [m<sup>3</sup>]</b>
0	1096	0.933	1022
977	846	0.556	470
2951	596	0.549	327
9772	381	0.542	207
29512	293	0.553	162
100000	243	0.524	127

Tabelle A-2-9b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 2/750

<b>Zeitintervall [a]</b>	<b>Abflüsse [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Zuflüsse [m<sup>3</sup>]</b>		
		<b>Gesamt</b>	<b>v. Carn. Baufeld</b>	<b>von 1/750</b>
0 - 977	783	5	47	156
977 - 2951	384	15	11	184
2951 - 9772	704	54	0	457
9772 - 29512	814	174	0	505
29512 - 100000	1196	425	0	675

Tabelle A-2-9c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 2/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Lösungsbeiträge [m<sup>3</sup>]</b>					
	<b>LAW1A</b>	<b>LAW3</b>	<b>1/750</b>	<b>2/750</b>	<b>12/750</b>	<b>andere (SF)</b>
0	0	0	0	1022	0	0
977	0	0	1	359	51	57
2951	0	0	4	140	113	67
9772	0	0	8	22	50	109
29512	0	4	5	11	15	110
100000	1	4	3	5	5	98

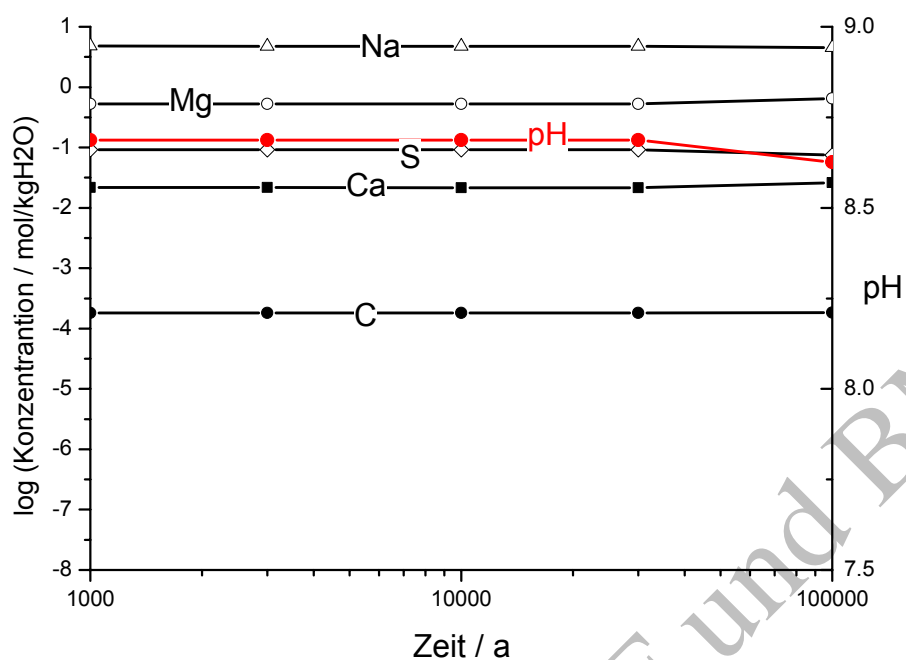


Abbildung A-2-9a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 2/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

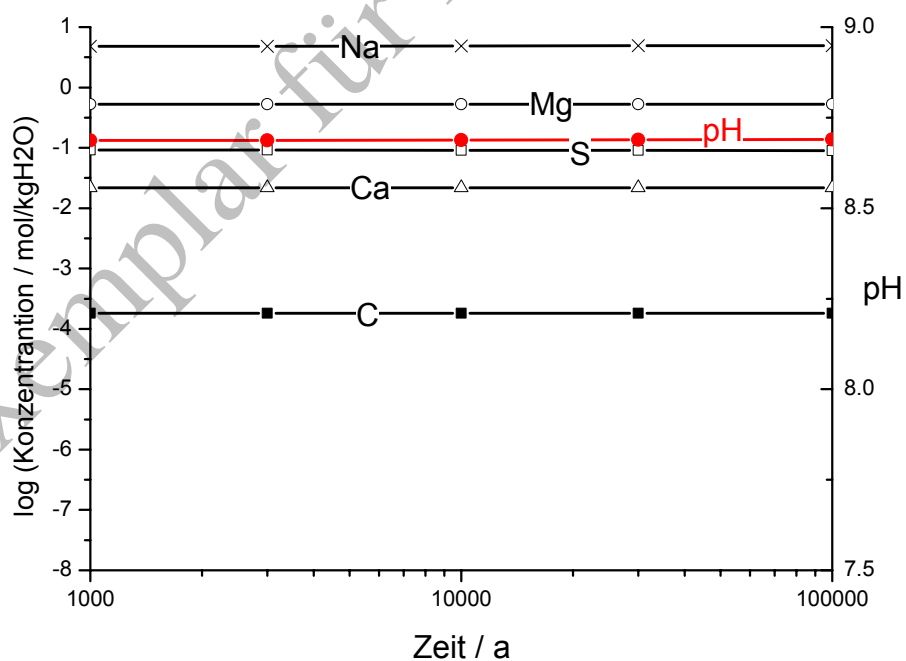


Abbildung A-2-9b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 2/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

Einlagerungskammer 12/750:

Tabelle A-2-10a: Poren- und Lösungsvolumina für die Einlagerungskammer 12/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Porenvolumen [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Sättigung [-]</b>	<b>Lösungsvolumen [m<sup>3</sup>]</b>
0	1987	0.934	1856
977	1367	0.802	1097
2951	891	0.796	709
9772	537	0.803	431
29512	409	0.805	329
100000	339	0.807	273

Tabelle A-2-10b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für die Einlagerungskammer 12/750

<b>Zeitintervall [a]</b>	<b>Abflüsse [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Zuflüsse [m<sup>3</sup>]</b>		
	<b>Gesamt</b>	<b>von 2/750</b>	<b>von LAW3</b>	<b>von Carn. Baufeld</b>
0 - 977	916	44	7 (16)	91
977 - 2951	846	5	0	419
2951 - 9772	1129	0	0	794
9772 - 29512	921	0	0 (321)	765
29512 - 100000	1538	0	0 (2259)	1444

Tabelle A-2-10c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für die Einlagerungskammer 12/750

<b>Zeit [a]</b>	<b>Lösungsbeiträge [m<sup>3</sup>]</b>					
	<b>LAW1A</b>	<b>LAW3</b>	<b>1/750</b>	<b>2/750</b>	<b>12/750</b>	<b>andere (SF)</b>
0	0	0	0	0	1856	0
977	0	0	0	4	1019	73
2951	0	0	12	14	388	274
9772	0	1	19	33	71	284
29512	1	15	10	21	28	169
100000	2	9	5	9	9	208

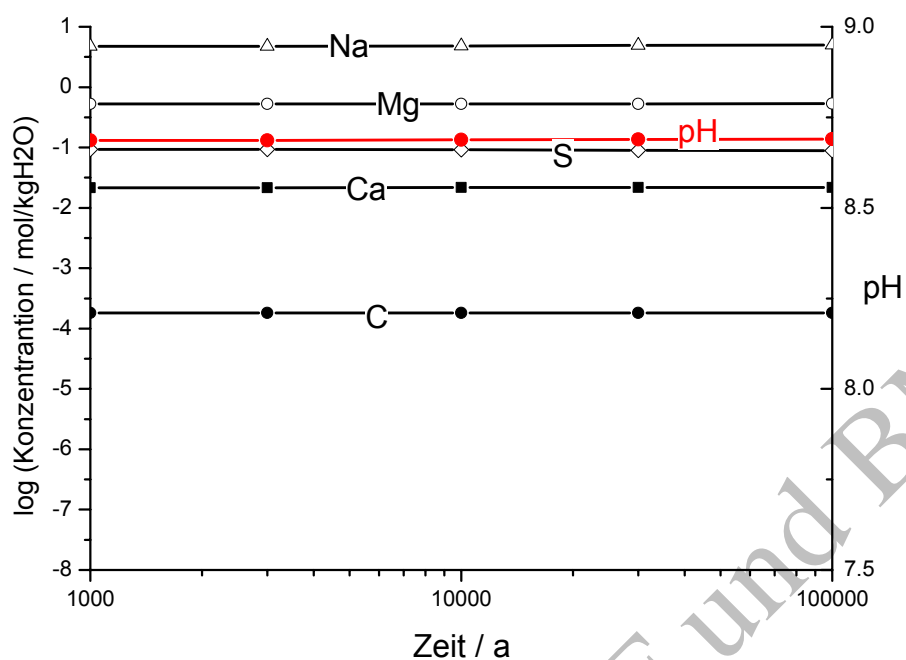


Abbildung A-2-10a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 12/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

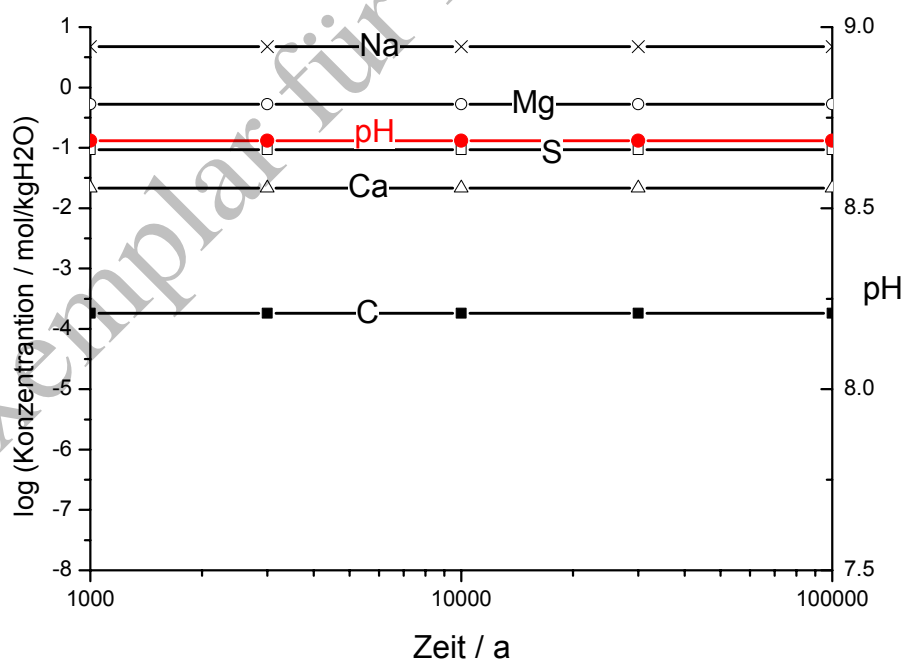


Abbildung A-2-10b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 12/750 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)

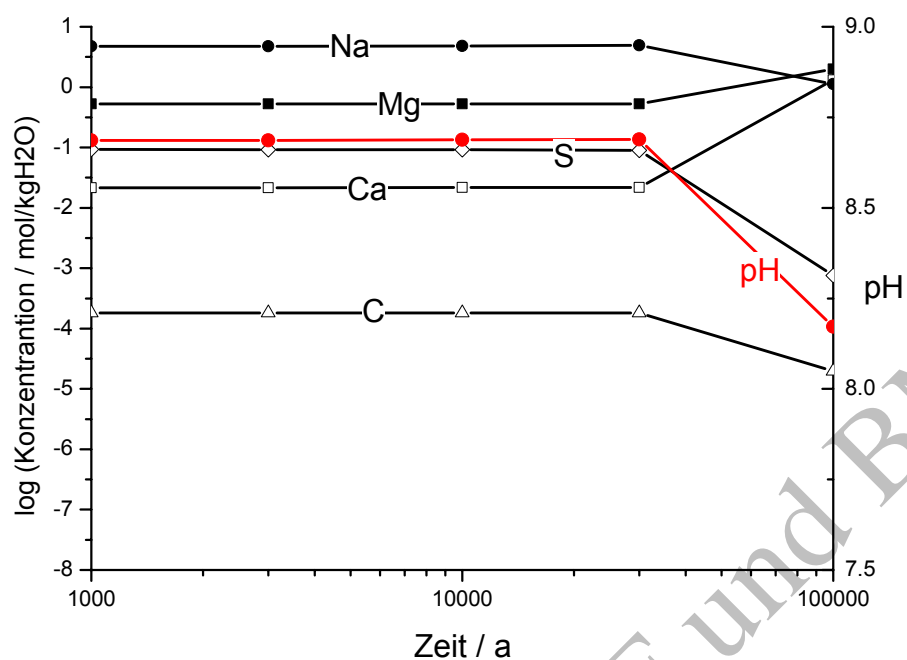


Abbildung A-2-10c: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 12/750 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung und ergänztem Zufluss aus LAW3/Einlagerungskammer 11/750 (Option **Flüsse**)

Exemplar für BMBF und BMU

## Einlagerungsbereich LAW1

Einlagerungskammer 2/750Na2:

Tabelle A-2-11a: Poren- und Lösungsvolumina für den ELB LAW1A

Zeit [a]	Porenvolumen [m <sup>3</sup> ]	Sättigung [-]	Lösungsvolumen [m <sup>3</sup> ]
0	21480	0.942	20228
1.4	21316	0.930	19820
977	15845	0.882	13969
2951	10716	0.882	9448
9772	7595	0.882	6697
29512	6491	0.882	5724
100000	5818	0.882	5130

Tabelle A-2-11b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für den ELB LAW1A

Zeitintervall [a]	Abflüsse [m <sup>3</sup> ]	Zuflüsse [m <sup>3</sup> ]			
	Gesamt	Carn. Baufeld	von AS2	LAW1B	775-m-Sohle
1.4 - 977	16128	0	1,477	5535	3249
977 - 2951	7131	0	0	2419	149
2951 - 9772	5663	0	0	848	2034
9772 - 29512	6259	10	12	3898	1325
29512 - 100000	3605	53	969	608	1358

Tabelle A-2-11c Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für ELB LAW1A

Zeit [a]	Lösungsbeiträge [m <sup>3</sup> ]		
	LAW1A	LAW1B	Schutzfluid
1.4	19820	0	0
977	9189	2525	2255
2951	5316	2744	1388
9772	2713	1975	2008
29512	1568	1943	2213
100000	1008	1182	2940

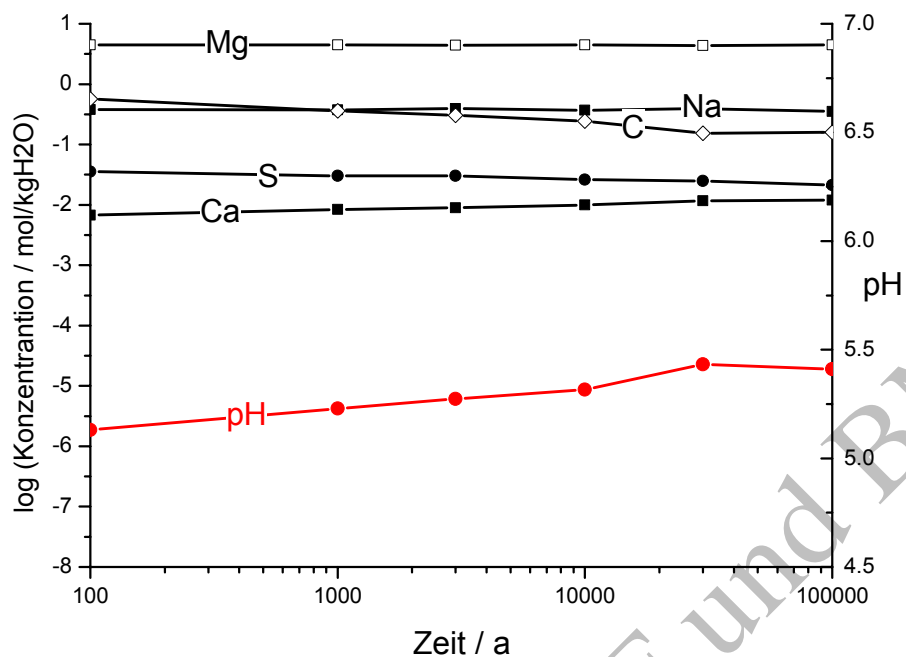


Abbildung A-2-11a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 2/750Na2 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

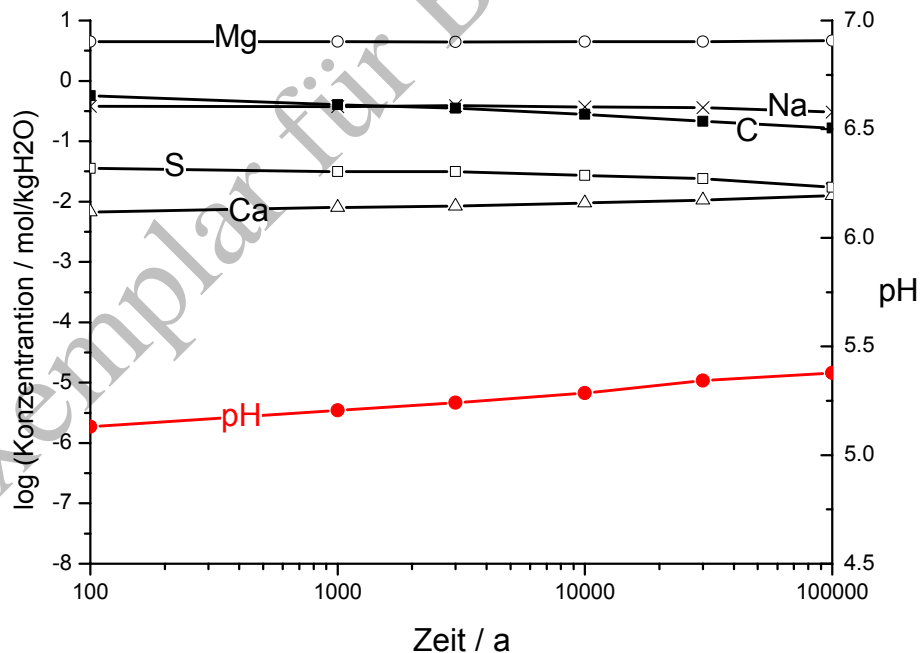


Abbildung A-2-11b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 2/750Na2 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)



Einlagerungskammer 7/725Na2:

Tabelle A-2-12a: Poren- und Lösungsvolumina für den ELB LAW1B

<b>Zeit [a]</b>	<b>Porenvolumen [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Sättigung [-]</b>	<b>Lösungsvolumen [m<sup>3</sup>]</b>
0	14878	0.100	1488
1.4	14757	0.760	11209
977	10838	0.836	9057
2951	7262	0.837	6079
9772	5098	0.839	4275
29512	4351	0.839	3652
100000	3898	0.840	3272

Tabelle A-2-12b: Zu- und Abflüsse während der Zeitintervalle für den ELB LAW1B

<b>Zeitintervall [a]</b>	<b>Abflüsse [m<sup>3</sup>]</b>	<b>Zuflüsse [m<sup>3</sup>]</b>		
	<b>Gesamt</b>	<b>700-m-Sohle</b>	<b>von AS2</b>	<b>LAW1A</b>
1.4 - 977	6020	38	0	3881
977 - 2951	2992	0	0	0
2951 - 9772	1819	0	0	6
9772 - 29512	4645	0	0	3978
29512 - 100000	1608	0	9	1207

Tabelle A-2-12c: Lösungs(volumen)beiträge anfangs und nach den Zeitintervallen für ELB LAW1B

<b>Zeit [a]</b>	<b>Lösungsbeiträge [m<sup>3</sup>]</b>		
	<b>LAW1A</b>	<b>LAW1B</b>	<b>Schutzfluid</b>
1.4	0	11209	0
977	1719	7138	199
2951	1155	4778	146
9772	912	3142	221
29512	997	1646	1009
100000	663	838	1771

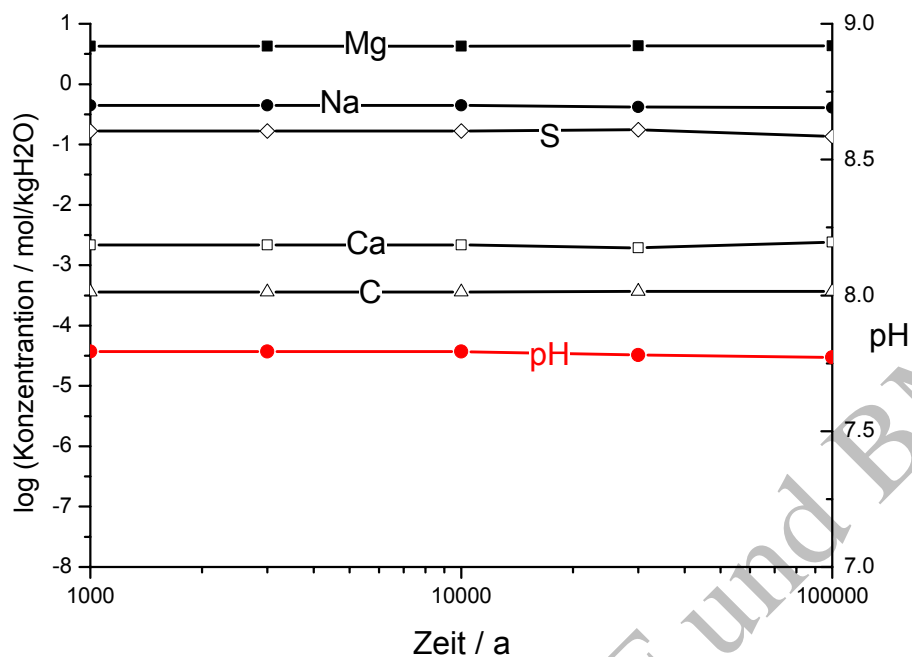


Abbildung A-2-12a: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 7/725Na2 aufgrund ausgetauschter Lösungsmengen mit Durchmischung (Option **Flüsse**)

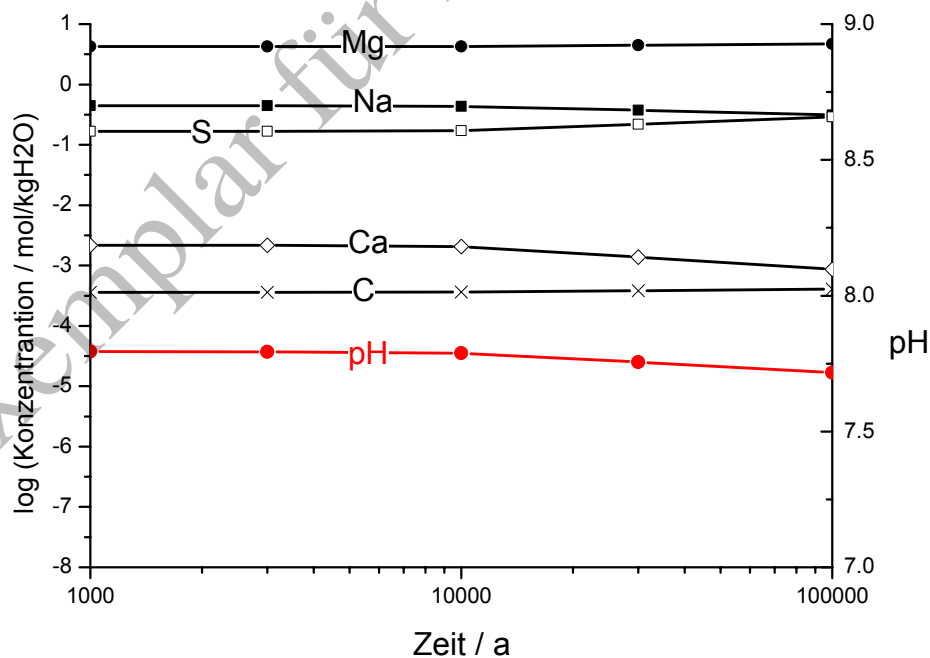


Abbildung A-2-12b: Entwicklung des geochemischen Milieus in der Kammer 7/725Na2 berechnet aus den (Tracer-) Beiträgen aus den beteiligten Kammern (Option **Beiträge**)



Tabelle A-3-3: Einfluss der Bandbreiten-Variation auf das geochemische Milieu der Kammer 2/750Na2.

		Ref	Mgs	CH1	CH2	CL1	CL2
pH		5.2	3.6	5	5.1	5.8	5.8
Ca	mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.0063	0.85	0.0041	0.005	0.029	0.15
Cl	mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	9.4	9.3	9.5	9.4	9.3	9.3
K	mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.4	0.43	0.36	0.4	0.42	0.5
Mg	mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	4.4	3.4	4.7	4.5	4.2	4
Na	mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	0.38	0.47	0.31	0.36	0.44	0.48
pCO <sub>2</sub>	bar	3.E+01	3.E+01	1.E+02	6.E+01	6.E-01	1.E-01
CO <sub>3</sub> <sup>2-</sup>	mol (kg H <sub>2</sub> O) <sup>-1</sup>	3.E-04	1.E-07	3.E-04	3.E-04	7.E-05	1.E-05

Exemplar für BMBF und BMU