



Geochemical benchmark tests to validate the conversion of thermodynamic data for TOUGHREACT

Torben Weyand¹, Holger Seher², and Guido Bracke¹

¹Federal Office for the Safety of Nuclear Waste Management (BASE),
Schwertnergasse 1, 50667 Cologne, Germany

²Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) gGmbH,
Schwertnergasse 1, 50667 Cologne, Germany

Correspondence: Torben Weyand (torben.weyand@bfe.bund.de)

Published: 10 November 2021

Abstract. According to the ongoing site selection process for a repository for high-level radioactive waste in Germany, rock salt, clay and crystalline rock are possible host rocks. The pore water of these rocks contains saline solutions with high ionic strengths. To model the speciation and/or migration of radionuclides in long-term safety analyses for nuclear waste disposal, a geochemical code that includes thermodynamic data suitable for saline solutions is needed. Thermodynamic equilibrium in saline solutions with high ionic strengths is usually modelled using the Pitzer approach (Pitzer, 1991).

Within the context of nuclear waste disposal, the THEREDA project (Moog et al., 2015) provides thermodynamic data for some widely used geochemical codes (PHREEQC, Geochemist's Workbench, ChemApp, and EQ 3/6) using the Pitzer approach; however, for modelling in long-term safety analyses for nuclear waste disposal, another geochemical code, TOUGHREACT, is used. Therefore, scripts were developed to convert thermodynamic data of the THEREDA project to be applicable in TOUGHREACT.

The scripts were validated by benchmark tests and by comparing calculations using PHREEQC and TOUGHREACT (Weyand et al., 2021). In total, 50 different benchmark tests were performed considering 3 specific geochemical systems, which are relevant to long-term safety analyses: (1) oceanic salt system, polythermal: K, Mg, Ca, Cl, SO₄, H₂O(l), (2) actinide system, isothermal: Am(III), Cm(III), Nd(III), Na, Mg, Ca, Cl, OH, H₂O(l) and (3) carbonate system, isothermal: Na, K, Mg, Ca, Cl, SO₄, HCO₃/CO₂(g), H₂O(l). Each benchmark test considered specific ion concentrations in solution and in gaseous phases in the presence of specific minerals. The benchmark tests derived the geochemical equilibria and the results of both codes were compared to each other and to experimental data. The results of the calculations using both codes showed a good correlation. Remaining deviations can be explained by technical differences of the codes.

Kurzfassung. Gemäß dem laufenden Standortauswahlverfahren für ein Endlager für hoch radioaktive Abfälle in Deutschland sind Steinsalz, Ton- und Kristallingestein mögliche Wirtsgesteine, die häufig Porenwässer mit hohen Ionenstärken besitzen. Zur Modellierung der Speziation und/oder Migration von Radionukliden in Langzeitsicherheitsanalysen für die Entsorgung von radioaktiven Abfällen werden auch geochemische Codes eingesetzt, für deren Einsatz geeignete thermodynamische Daten benötigt werden. Für solche Berechnungen mit wässrigen Lösungen mit hohen Ionenstärken werden gewöhnlich thermodynamische Daten nach dem Pitzer-Ansatz eingesetzt (Pitzer, 1991).

Im Kontext der Entsorgung von radioaktiven Abfällen liefert das THEREDA-Projekt (Moog et al., 2015) thermodynamische Daten nach dem Pitzer-Ansatz für einige weitverbreitete geochemische Codes (wie z. B. PHREEQC, Geochemist's Workbench, ChemApp und EQ 3/6). Zur Modellierung in Langzeitsicherheitsanalysen für die Entsorgung von radioaktiven Abfällen wird zusätzlich der geochemische Code TOUGHREACT verwendet. Daher wurden Skripte entwickelt, um thermodynamische Daten aus dem THEREDA-Projekt zu konvertieren, sodass diese mit TOUGHREACT anwendbar sind.

Die Skripte wurden durch sog. Benchmark-Tests unter Verwendung von PHREEQC und TOUGHREACT validiert (Weyand et al., 2021). Insgesamt wurden 50 verschiedene Benchmark-Tests durchgeführt, mit denen drei spezifische geochemische Systeme betrachtet wurden, die für Langzeitsicherheitsanalysen relevant sind: (1) das System der ozeanischen Salze, polythermal: K, Mg, Ca, Cl, SO₄, H₂O(l), (2) ein System mit Aktiniden, isothermal: Am(III), Cm(III), Nd(III), Na, Mg, Ca, Cl, OH, H₂O(l) und (3) das Karbonatsystem, isothermal: Na, K, Mg, Ca, Cl, SO₄, HCO₃-CO₂(g), H₂O(l). In jedem Benchmark-Test wurden spezifische Ionenkonzentrationen in Lösung und in gasförmigen Phasen bei Anwesenheit charakteristischer Minerale betrachtet.

In den Benchmark-Tests wurde jeweils das thermodynamische Gleichgewicht berechnet und die Ergebnisse beider Codes wurden untereinander und mit experimentellen Daten verglichen. Die Ergebnisse der Berechnungen unter Verwendung beider Codes wiesen eine gute Korrelation auf. Verbleibende Abweichungen lassen sich durch technische Unterschiede der Codes erklären.

Financial support. This research has been supported by the Bundesministerium für Umwelt, Naturschutz und nukleare Sicherheit (grant no. 4718E03260).

References

- Moog, H. C., Bok, F., Marquardt, C. M., and Brendler, V.: Disposal of nuclear waste in host rock formations featuring high-saline solutions – Implementation of a thermodynamic reference database (THEREDA), *Appl. Geochem.*, 55, 72–84, <https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2014.12.016>, 2015.
- Pitzer, K. S.: *Activity Coefficients in Electrolyte Solutions*, 2nd Edn., CRC Press, Boca Raton, ISBN 0-8493-5415-3, 1991.
- Weyand, T., Seher, H., and Bracke, G.: Verwendung von temperaturabhängigen thermodynamischen Daten in TOUGHREACT, in: (GRS 622) Weiterentwicklung und Qualitätssicherung von Modellierungswerkzeugen zur Durchführung und Bewertung von Sicherheitsanalysen im Standortauswahlverfahren, edited by: Navarro, M., Beuth, T., Bracke, G., Eckel, J., Frieling, G., Hotzel, S., Kock, I., Seher, H., and Weyand, T., GRS-622, 111–148, available at: <https://www.grs.de/publikationen/grs-622>, last access: 19 October 2021.