

**Die Verteilung löslicher Radionuklid-relevanter
Spurenelemente zwischen Salzmineralen und salinaren
Lösungen**

Dissertation

Zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften

vorgelegt von

Ina Voß M. Sc.

aus Emden

genehmigt von der Fakultät für Energie- und Wirtschaftswissenschaften
der Technischen Universität Clausthal

Tag der mündlichen Prüfung

16. Juli 2015

Inhaltsverzeichnis

	Seite
Zusammenfassung	7
1 Einleitung und Fragestellung	9
1.1 Einbindung in die Forschungsplattform ENTRIA	9
1.2 Verbindung zur VSG	10
1.3 Fragestellungen	11
2 Grundlagen und Voraussetzungen	15
2.1 Referenzmodell	15
2.2 Geometrie eines generischen Endlagers in einer Salz-Formation	17
2.3 Quinäres-System	18
2.4 Elementverteilung bei der Kristallisation	19
3 Experimenteller Ansatz	22
3.1 Lösungszusammensetzungen und erwartete Festkörper	22
3.2 Versuchsansätze und Durchführung	24
3.3 Probengewinnung und Aufbereitung	26
3.3.1 Kristalle	26
3.3.2 Lösungen	27
4 Analytik	28
4.1 Röntgendiffraktometrie (RDA)	28
4.2 Chemische Analyse der Hauptkomponenten	28
4.3 Analyse der Spurenelemente	29
4.4 Auswertung und Normierung von Hauptkomponenten und Spurenelementen	30
4.4.1 Lösungsgehalte der Festkörperanalysen	30
4.4.2 Hauptkomponenten und Mineralphasen	31
4.4.3 Spurenelemente	33
5 Ergebnisse der Kristallisationsexperimente	35
5.1 Sylvin-Experimente	35
5.2 Carnallit-Experimente	35
5.3 Kainit-Experimente	37
5.4 $MgSO_4$ -Experimente	38
6 Verteilungskoeffizienten	42
6.1 Halit	42
6.2 Sylvin	42

6.3	Carnallit	46
6.4	Kainit	49
6.5	MgSO ₄ ·nH ₂ O-Phasen	51
7	Rückhaltung von Schadstoffen: Diskussion der Ergebnisse anhand der Rayleigh-Gleichung	54
7.1	Lösungsentwicklung, Festkörper und Spurenelement-Fraktionierung	54
7.1.1	Berechnung der kristallisierenden Evaporitminerale	55
7.1.1.1	Berechnung des Fraktionierungsgrads (F) der einzelnen Abkühlungsschritte	58
7.1.2	Spurenelementverhalten bei Gleichgewichtsfraktionierung und fraktionierter Kristallisation	58
7.1.2.1	Gleichgewichtskristallisation	59
7.1.2.2	Fraktionierte Kristallisation	61
8	Erkenntnisse, nichtgelöste Probleme und weitere Arbeiten	66
	Literaturverzeichnis	68
	Anhang	73
	Dank und Anerkennung	132