

**Wissenschaftliche Berichte
FZKA-PTE Nr. 14**

Endlagerforschung und Nukleare Sicherheitsforschung

**10. Projektstatusgespräch zu BMWi- und BMBF-
geförderten FuE-Projekten der Endlagerforschung
und der Nuklearen Sicherheitsforschung**

13. und 14. November 2012 am KIT Campus Nord

**Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)**



Herausgeber:
Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1
76344 Eggenstein-Leopoldshafen
Internet: www.ptka.kit.edu

Juli 2013



PTKA
Projektträger Karlsruhe
Karlsruher Institut für Technologie

Vorwort

Das erste Projektstatusgespräch zur untertägigen Entsorgung fand bereits 1994 in Braunschweig statt. Das nunmehr Zehnte, veranstaltet im Karlsruher Institut für Technologie (Campus Nord), setzte die Reihe dieser Veranstaltungen fort, auf denen der aktuelle Stand der von PTKA betreuten BMWi- und BMBF-geförderten Forschungsprojekte Fachleuten aus Wissenschaft, Behörden und Industrie sowie weiteren interessierten Teilnehmern vorgestellt wird. Zum anderen sind sie aber auch ein Forum, auf dem Informationsaustausch zu vielen Themen der nuklearen Sicherheitsforschung und Entsorgung möglich ist, wodurch auch der wissenschaftliche und kollegiale Austausch gefördert wird.

Die Forschung und Entwicklung zur Endlagerung besitzt in Deutschland weiterhin eine hohe Bedeutung. Die Entscheidung der Bundesregierung im Jahr 2011 die Nutzung der Kernenergie zur Stromerzeugung zu beenden, rückte auch Fragen zur sicheren Endlagerung der radioaktiven Abfälle wieder in den Blickpunkt. Die durch BMWi und BMBF in den letzten Jahrzehnten geförderten FuE-Arbeiten haben wesentlich dazu beigetragen, die wissenschaftlichen und technischen Grundlagen für eine langzeitsichere Entsorgung und Endlagerung hoch radioaktiver Abfälle zu verbreitern und das nötige Know-how zu schaffen und weiterzuentwickeln.

BMWi fördert seit langem die anwendungsbezogene Grundlagenforschung des Bundes zur Endlagerung auf der Grundlage seiner Förderkonzepte „Schwerpunkte zukünftiger FuE-Arbeiten bei der Endlagerung radioaktiver Abfälle“, aktuell für den Zeitraum 2011 bis 2014. BMBF hat 2008 den Förderschwerpunkt Nukleare Sicherheitsforschung implementiert. Die Fördermaßnahmen zur Reaktorsicherheits-, Entsorgungs- und Strahlenforschung haben dabei die Förderung und Unterstützung des wissenschaftlichen Nachwuchses auf diesen Gebieten zum Ziel und tragen damit wesentlich zum Kompetenzerhalt in Deutschland bei. Die Förderaktivitäten beider Bundesministerien werden durch den Projektträger Karlsruhe fachlich und administrativ betreut. Bei diesem Projektstatusgespräch wurde daher erstmals der Versuch gemacht, ausgewählte FuE-Vorhaben aus den Förderschwerpunkten der beiden Bundesressorts BMWi und BMBF gemeinsam zu präsentieren, um die fachliche Verzahnung der Forschungsaktivitäten zu veranschaulichen.

Im vorliegenden Materialienband sind die Beiträge des 10. Projektstatusgesprächs zu BMWi- und BMBF-geförderten FuE-Projekten der Endlagerforschung und der Nuklearen Sicherheitsforschung zusammengefasst. Soweit die Autoren schriftliche Zusammenfassungen bereitgestellt haben, sind diese mit in die Sammlung aufgenommen worden.

Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

Dr. H. Bittdorf
Dipl.-Ing. M. Bühler
Dr. H. Pitterich
Dr. W. Steininger
Dr. S. Stumpf

Der vorliegende Materialienband dient der aktuellen Unterrichtung der auf dem Gebiet der Entsorgung radioaktiver Abfälle arbeitenden Institutionen und der zuständigen Behörden.

Verantwortlich für den Inhalt sind die Autoren. Das Karlsruher Institut für Technologie (KIT) übernimmt keine Gewähr insbesondere für die Richtigkeit, Genauigkeit und Vollständigkeit der Angaben sowie die Beachtung privater Rechte Dritter.

Eine auszugsweise oder vollständige Vervielfältigung ist erlaubt, wenn die Zustimmung der betroffenen Autoren vorliegt.

Inhaltsverzeichnis

Dr. G. Bracke.	1
<i>Die vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben (VSG) – Methodik und bisherige Ergebnisse</i>	
Dr. A. Lommerzheim.....	27
<i>Methodik zur Entwicklung eines Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein HAW- Endlager im Ton</i>	
Prof. Dr. W. Kudla.	54
<i>ELSA Teil 1: Randbedingungen und Anforderungen bei Schächten für Endlager für hochradioaktive Abfälle</i>	
Dipl.-Geophys. M. Jobmann.	93
<i>Monitoring eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle: Möglichkeiten und Grenzen</i>	
Prof. Dr. G. Wittum.	115
<i>Die detaillierte Berechnung thermohaliner Strömungen in heterogenen, geklüftet porösen Medien mit d^3f und r^3t</i>	
Dr. A. Hampel.....	164
<i>Verbundprojekt: Vergleich aktueller Stoffgesetze anhand von Modellberechnungen zum thermo-mechanischen Verhalten und zur Verheilung von Steinsalz</i>	
Dipl.-Ing. T. Rothfuchs.....	181
<i>Ziele und Status des Projekts VIRTUS – Virtuelles Untertagelabor im Salz</i>	
Dr. H. Moll	203
<i>Mikrobielle Diversität im Tongestein (Opalinus-Ton) und Wechselwirkung dominanter Mikroorganismen mit Actiniden</i>	
Prof. Dr. H. Geckeis.	256
<i>Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im Natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen</i>	
Dr. T. Stumpf.....	304
<i>ImmoRad – Langzeitsicherheit durch Immobilisierung langlebiger Radionuklide; Erste Ergebnisse</i>	
Dr. A. Junghans.....	365
<i>Status des Verbundprojekts 02NUK13: Transmutationsrelevante kernphysikalische Untersuchungen mit Einsatz moderner technologischer und numerischer Methoden</i>	
Veranstaltungsprogramm	411

Die vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben (VSG) – Methodik und bisherige Ergebnisse

Dr. G. Bracke, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS), Köln

Die Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben (VSG) ist im März 2013 abgeschlossen worden. Die Berichte werden sukzessive auf der Webseite der GRS veröffentlicht (www.grs.de/endlagersicherheit/gorleben/ergebnisse).

Die Ziele der VSG waren eine Aufbereitung und Zusammenfassung der bisherigen Forschungsergebnisse zur Endlagerung im Salz und in Gorleben. Die Endlagerkonzepte für Salzstandorte sollten weiterentwickelt, eine Langzeitsicherheitsanalyse erstellt und auf Basis der Sicherheitsanforderungen des BMU (2010) bewertet werden. Damit sollte der zukünftige Forschungsbedarf identifiziert werden. Auch wurde eine Beurteilung gewünscht, ob die angewendete Methodik in der VSG für einen Standortvergleich geeignet ist.

An der VSG beteiligten sich rd. 80 Wissenschaftler aus 9 Institutionen. Das Vorhaben gliederte sich in vier Ebenen. Zu den Grundlagen zählten die geowissenschaftliche Standortbeschreibung, die Ableitung des Abfallaufkommens und die Entwicklung eines Sicherheitskonzepts. Darauf basierend konnte die technischen Endlagerkonzepte für den Standort Gorleben entwickelt werden, die dann einer Systemanalyse unterzogen werden konnten. In der Synthese sind die Ergebnisse bewertet und der zukünftige Forschungsbedarf ausgewiesen.

Die Standortbeschreibung war im Wesentlichen bereits dokumentiert. Die Ergebnisse aus aktuellen Erkundungsarbeiten konnten nur teilweise im Vorhaben berücksichtigt werden. Im Verlauf des Vorhabens mussten die Endlagerkonzepte aktuellen Veränderungen im zu erwartenden Abfallaufkommen angepasst werden. Die Sicherheitsanforderungen des BMU (2010) wurden in ein Sicherheits- und Nachweiskonzept umgesetzt.

Es wurden Konzepte für eine Strecken- und Bohrlochlagerung von Behältern untersucht. Die zusätzliche Einlagerung von vernachlässigbar wärmeentwickelnden Abfällen wurde berücksichtigt. Die Forderung nach einer Rückholbarkeit von eingelagerten Abfällen führte insbesondere bei der Bohrlochlagerung zu einem erheblichen geänderten Konzept im Vergleich zu anfänglichen Überlegungen.

Für die Szenarienanalyse dieser Konzepte wurden 115 FEP und Prämissen abgeleitet, die zu einem wahrscheinlichen Referenzszenario und 17 Alternativszenarien führten. Die numerische Systemanalyse untersuchte für verschiedene Lastfälle, ob die Integrität der Salzbarriere erhalten bleibt, Lösungen zu den Abfällen zutreten können und welche radiologischen Konsequenzen aus der Freisetzung von Radionukliden erfolgen.

Die Ergebnisse zeigten für verschiedene Lastfälle, dass keine externen Lösungen zu den Abfällen zutreten und ein vereinfachter radiologischer Nachweis für den Lösungspfad geführt werden kann. Der vereinfachte radiologische Nachweis für den Gaspfad ist nur möglich, wenn eine Einlagerung von Behältern unterstellt werden kann, die 500 Jahr gasdicht sind oder die den Rechnungen zugrunde gelegten Überkonservativitäten durch zukünftige F&E abgebaut werden können.

Eine ausführliche Darstellung der Ergebnisse zum Einschlussvermögen, zur Robustheit, zu Ungewissheiten und Belastbarkeit sowie Vorschläge zur Optimierung und zum F&E-Bedarf findet sich im Synthesebericht. Die VSG Methodik kann grundsätzlich für Salzstandorte und mit bestimmten Modifikationen für andere Wirtsgesteine angewendet werden.

Vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben (VSG)

10. Projektstatusgespräch 2012

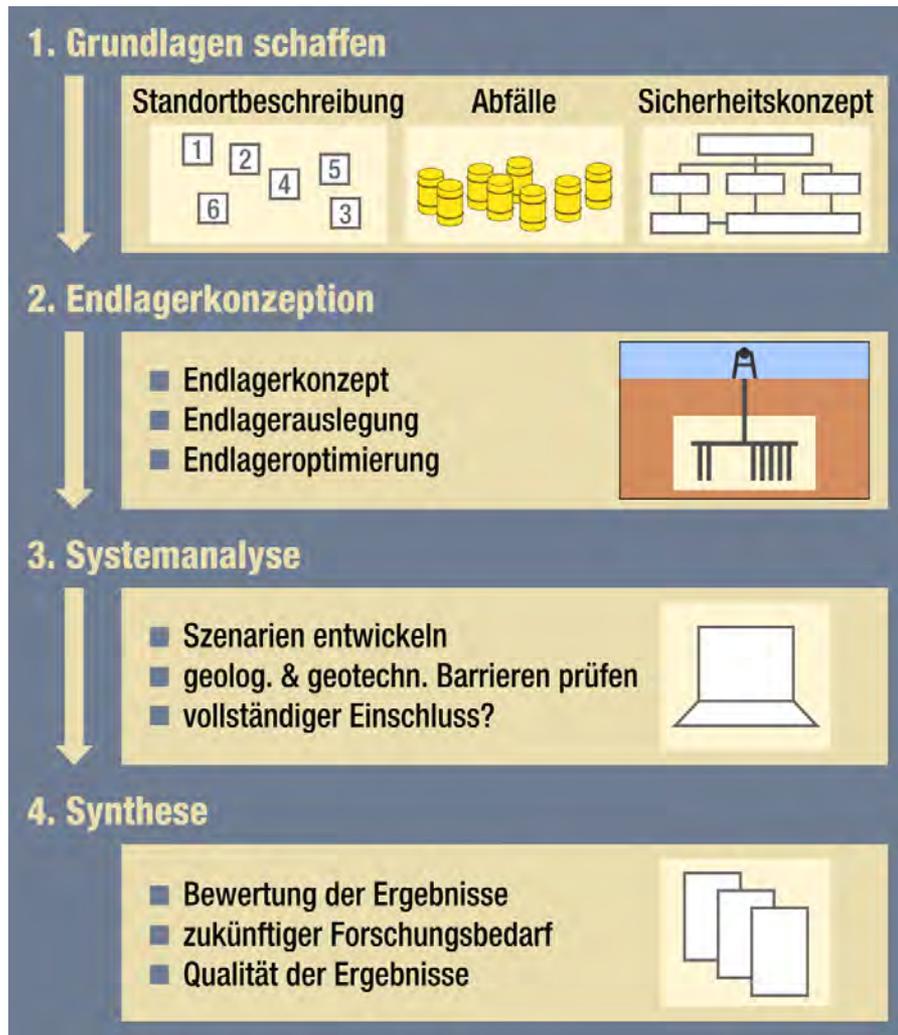
14.11.2012, Karlsruhe

Guido Bracke, GRS

- Zusammenfassung und Aufbereitung bisheriger Erkundungs- und Forschungsergebnisse zu Gorleben und zur Endlagerforschung im Salz
- Weiterentwicklung von Endlagerkonzepten für Salzstandorte
- Umfassende Sicherheitsanalyse mit dem Schwerpunkt Langzeitsicherheit
- Bewertung der Analyseergebnisse (BMU, 2010)
- Identifizierung zukünftigen Forschungsbedarfs zur Endlagerung in Salzstandorten
- Beurteilung der Eignung der VSG-Methodik für den Standortvergleich

Dauer: Juli 2010 – März 2013

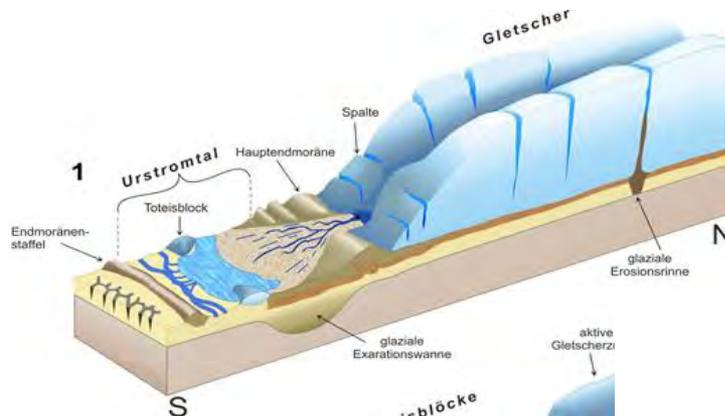
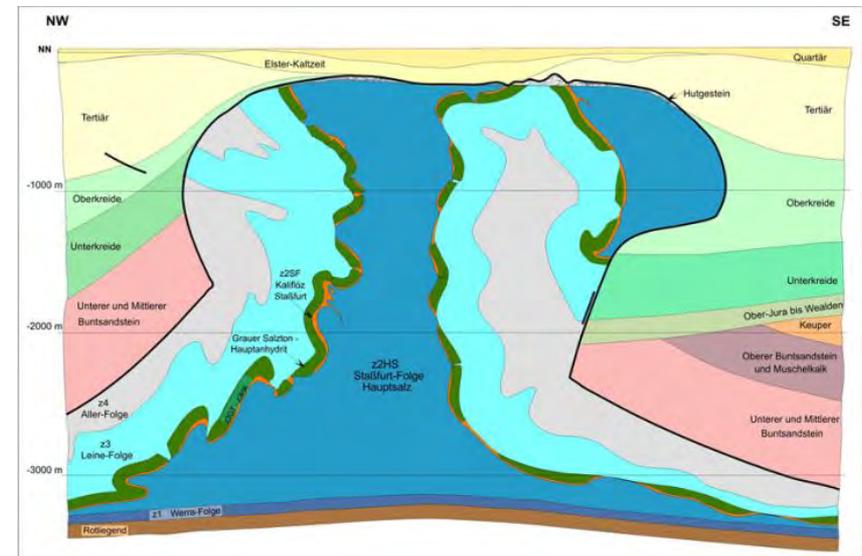
80 Wissenschaftler / 9 Institutionen:



Zusammenstellung der geowissenschaftlichen Informationen zum Standort

- Hydrogeologie
- Deckgebirge
- Salzstruktur
- Geotechnische Untersuchungen
- Sicherheitsrelevante Einzelfragen

Fachliches Review der Datenqualität durch RWTH Aachen (nse)



Prognose der zukünftigen Standortentwicklungen:

- Tektonik
- Vulkanismus
- Salzaufstieg
- Ablaugung
- Klimatische Ereignisse
- etc.

Mengen und Eigenschaften der wärmeentwickelnden radioaktiven Abfälle:

1. **Bestrahlte Brennelemente**
2. **Abfälle aus der früheren Wiederaufarbeitung**
3. **Abfälle aus Forschungs- und Prototypreaktoren**

Grundlage für die Entwicklung des Endlagerkonzeptes

Abfallmengen auf Basis des Ausstiegsbeschlusses Juni 2011



Optional: Nicht-wärmeentwickelnde Abfälle

Sicherheitstechnische Machbarkeit der gemeinsamen Endlagerung von schwach und hoch radioaktiven Abfällen

Abfallmengen: hypothetische Annahme

→ Umsetzung der Sicherheitsanforderungen des BMU (2010)

Sicherheitskonzept:

Darstellung der Maßnahmen zum Erreichen eines vollständigen bzw. sicheren Einschusses der Abfälle

Nachweiskonzept:

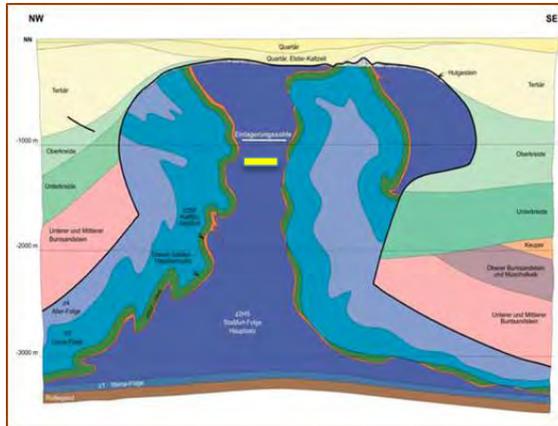
Konkretisierung der Nachweise, die gemäß den Sicherheitsanforderungen des BMU für Salzstandorte zu führen sind

Ungewissheiten:

Konzepte zum Umgang mit Ungewissheiten und Kenntnislücken innerhalb der VSG



Bericht verfügbar unter:
www.grs.de/endlagersicherheit/gorleben/ergebnisse
(in Überarbeitung)



1. Geologie

- + 30 m Hauptsalz der Staßfurt-Serie (z2)
das Endlagerbergwerk umgebend
(= Mindestausdehnung des einschlusswirksamen
Gebirgsbereiches, ewG)
- + 20 m Sicherheitszuschlag
(Auflockerungszone, Detektionsungenauigkeit)
- = 50 m Sicherheitsabstand zu Gesteinen außerhalb des
Hauptsalzes (z2)

2. Geotechnik: „Langzeitabdichtung“

- Salzgrusversatz
- Verminderung der Porosität und Permeabilität durch Kompaktion → zeitabhängig

3. Geotechnik: „Schnellwirkende“ Abdichtungen

- Schachtverschlüsse: Multi-Layer-System (Dichtungen, Widerlager, Speicher, Filter)
- Streckenverschlüsse: Sorelbeton
- Infrastrukturbereiche: Speichervolumina (Schotter)

Sicherheitsanforderungen des BMU, Sept. 2010

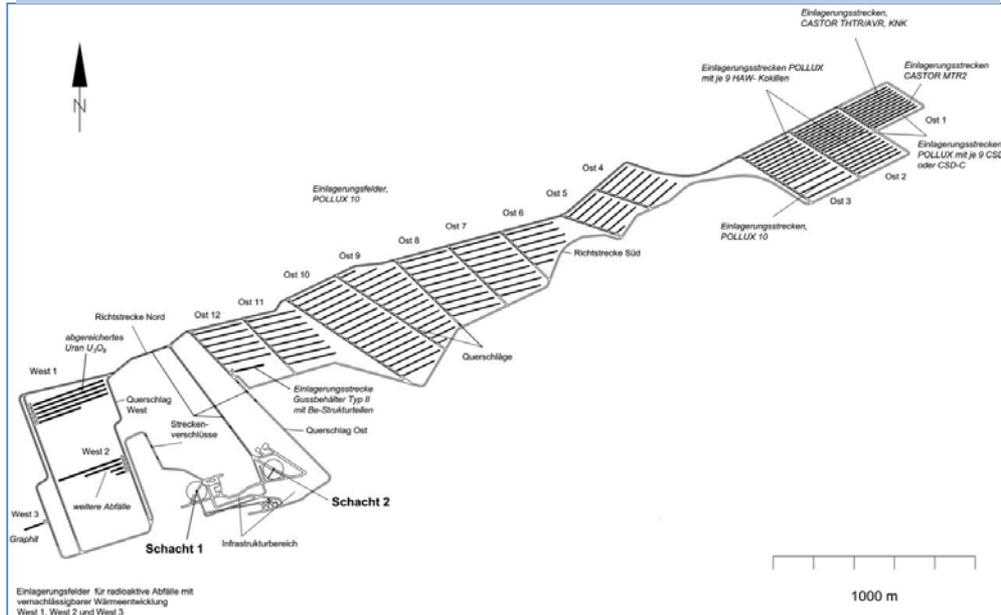
Nichteignung, wenn:

- kein ausreichend großer einschlusswirksamer Gebirgsbereich (ewG) ermittelt werden kann, dessen Integrität (Erhalt der sicherheitsrelevanten Eigenschaften) über einen Zeitraum von 1 Million Jahre nachgewiesen werden kann (Kap. 7.2)

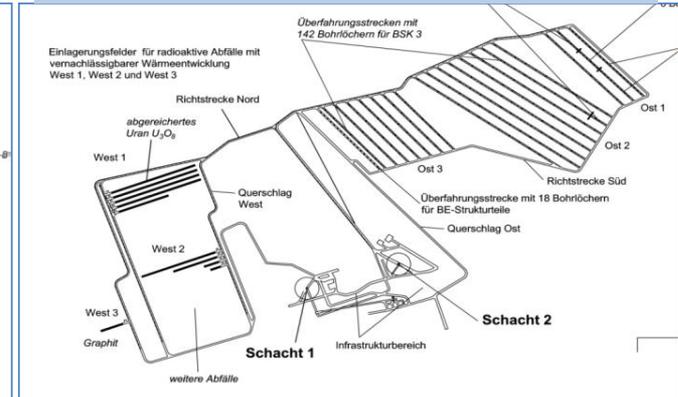
oder

- kein robustes und wartungsfreies, gestaffeltes Barriersystem aus technischen Komponenten (Abdichtungen + Versatz) entwickelt werden kann, das im Verbund mit der geologischen Barriere sicherstellt, dass es nicht zu unzulässigen Freisetzungen von Radionukliden kommt.
Dies gilt selbst für den Fall, dass einzelne Barrieren ihre volle Wirkung nicht entfalten. (Kap. 8.7 und 8.8).

Streckenlagerung



Bohrlochlagerung



Planung und Optimierung :

- Endlagergeometrie
- Techn. Anlagen und Behälter
- Einlagerungsbetrieb
- Betriebssicherheit
- Rückholbarkeit
- Verschlusskonzept

- Uran-Tails (ca. 35.000 m³)
 - Graphitabfälle (ca. 1.000 m³)
 - Mischabfälle (ca. 15.000 m³)
- (Mengenangaben beruhen auf Abschätzungen /Annahmen)

WA-Abfälle
HAW: 3.735 Kokillen
je 9/Pollux-Behälter

**BE Forschungs- und
 Prototypreaktoren**
511 Castor-Behälter
(AVR/THTR/KNK/MTR)

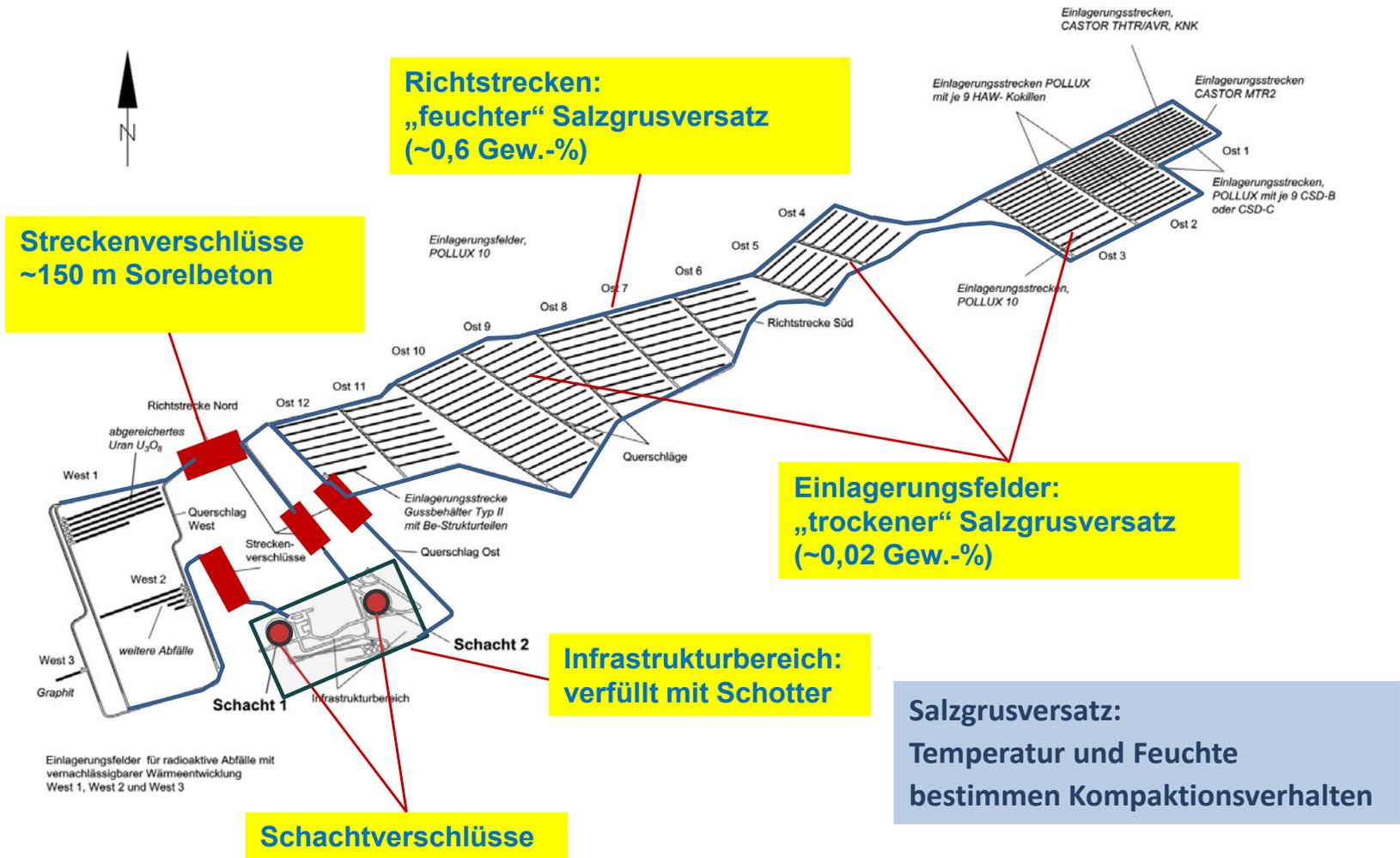


DWR, SWR, WWER-Brennelemente
34.630 BE in 2120 Pollux-10-Behältern

WA-Abfälle
CSD-C: 4.104 Kokillen
CSD-B: 308 Kokillen
je 9/Pollux-Behälter

Ostfeld: wärmeentwickelnde Abfälle

**Westfeld: vernachlässigbar
 wärmeentw. Abfälle**



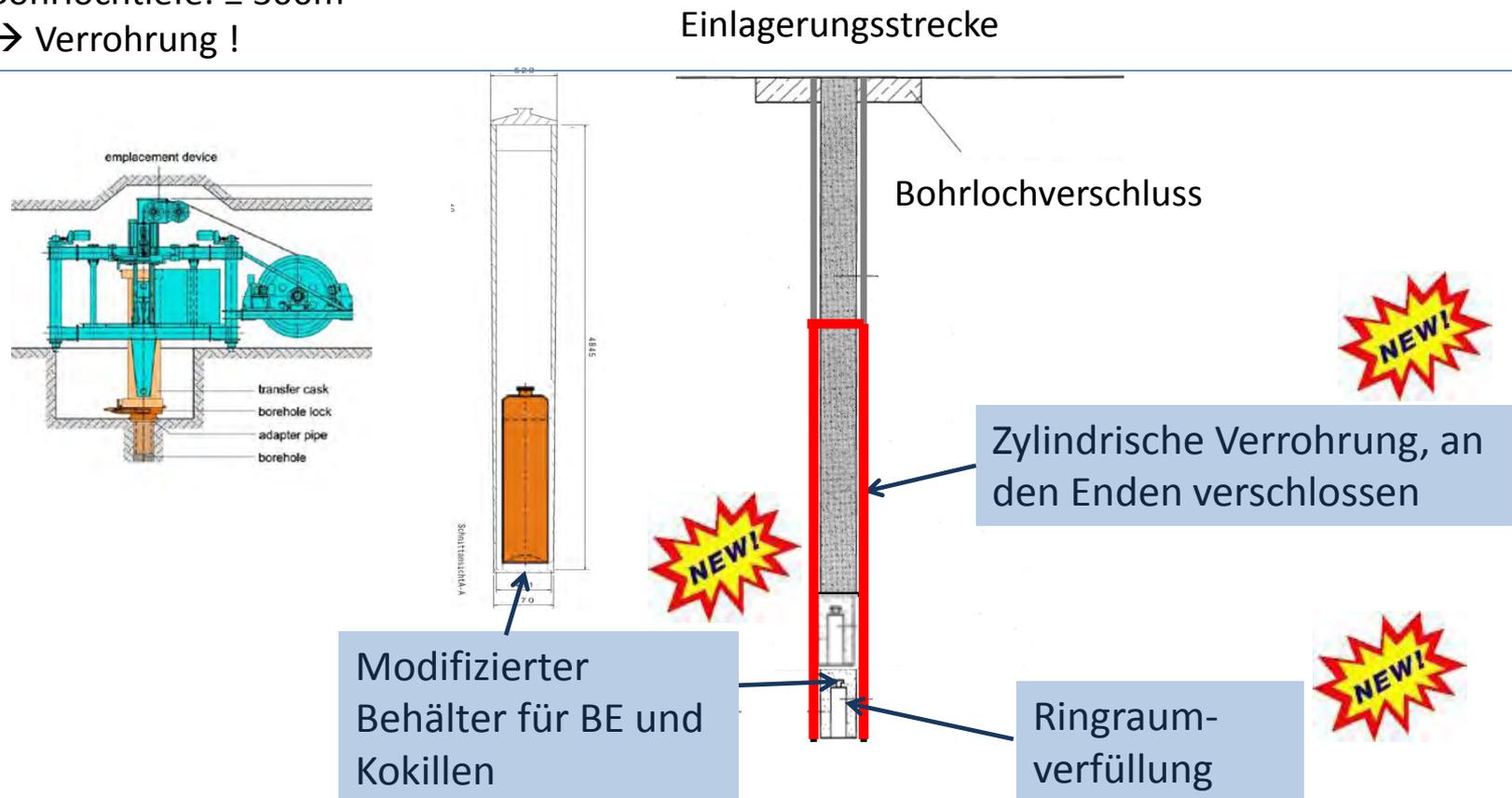
Anforderung (BMU 2010):

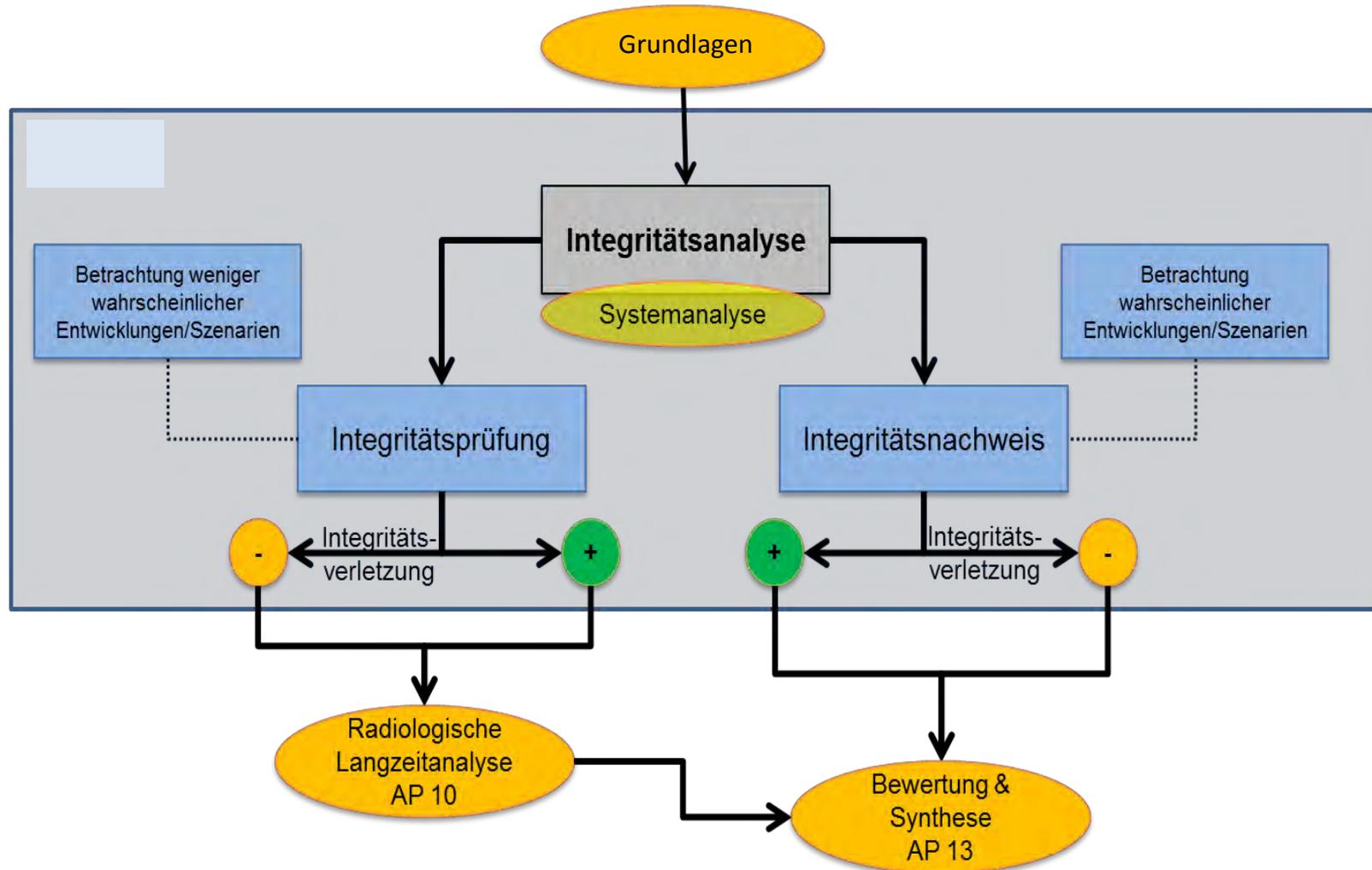
Rückholbarkeit für 500 Jahre ohne Freisetzung von radioaktiven Aerosolen.

Bohrlöcher zeigen schnelle Konvergenz (Einschluss)

Bohrlochtiefe: $\leq 300\text{m}$

→ Verrohrung !





FEP = Features, Events, Processes

- Bausteine für Szenarientwicklung (Standort und Endlagerkonzept)
- 115 FEP (Geologie, Klima, Betrieb, Abfall, Endlager)
 - Eintrittswahrscheinlichkeit (inkl. Ausprägung)
 - Abhängigkeiten: auslösende / beeinflussende / resultierende / beeinflusste FEP
 - Einwirkung auf einschlusswirksame Barrieren (Initial-FEP)
- FEP-Katalog und erläuternder Bericht

Ein Referenzszenarium (wahrscheinlich)

- wahrscheinliche FEP
- Annahmen:
 - Wechsel Kalt-/Warmzeiten ca. 10^5 a
 - Auslegungskonforme Errichtung der Schacht-/Streckenverschlüsse
 - Einhaltung des Sicherheitsabstandes
 - Trennung Erkundungsohle / Einlagerungsohle

17 Alternativszenarien (wahrscheinlich, weniger wahrscheinlich)

- Abweichung von Prämissen (z.B. erhöhte Durchlässigkeiten)
- weniger wahrscheinliche FEP
- wahrscheinliche Initial-FEP mit weniger wahrscheinlichen Ausprägungen

- Entwicklungen werden systematisch in der Szenarientwicklung mittels FEP identifiziert und beschrieben.
- Untersuchung für alle **wahrscheinlichen und weniger wahrscheinlichen** Entwicklungen des Systems.

Prüfung durch numerische Systemanalyse:

- Bleibt die **Integrität** der Salzbarriere bei den zu erwartenden Belastungen erhalten (Abfallwärme, Eisüberfahung etc.)?
- Besteht eine **Möglichkeit des Zutritts von Lösungen** zu den Abfällen?
- Welche **Freisetzung von Radionukliden** erfolgt ggfs. aus dem einschlusswirksamen Gebirgsbereich?
- Welche **radiologischen Konsequenzen** sind zu erwarten?

Thermomechanische Berechnungen:

Lastfälle

- Wärmeentwicklung
- klimatische Einwirkungen (Kaltzeiten)

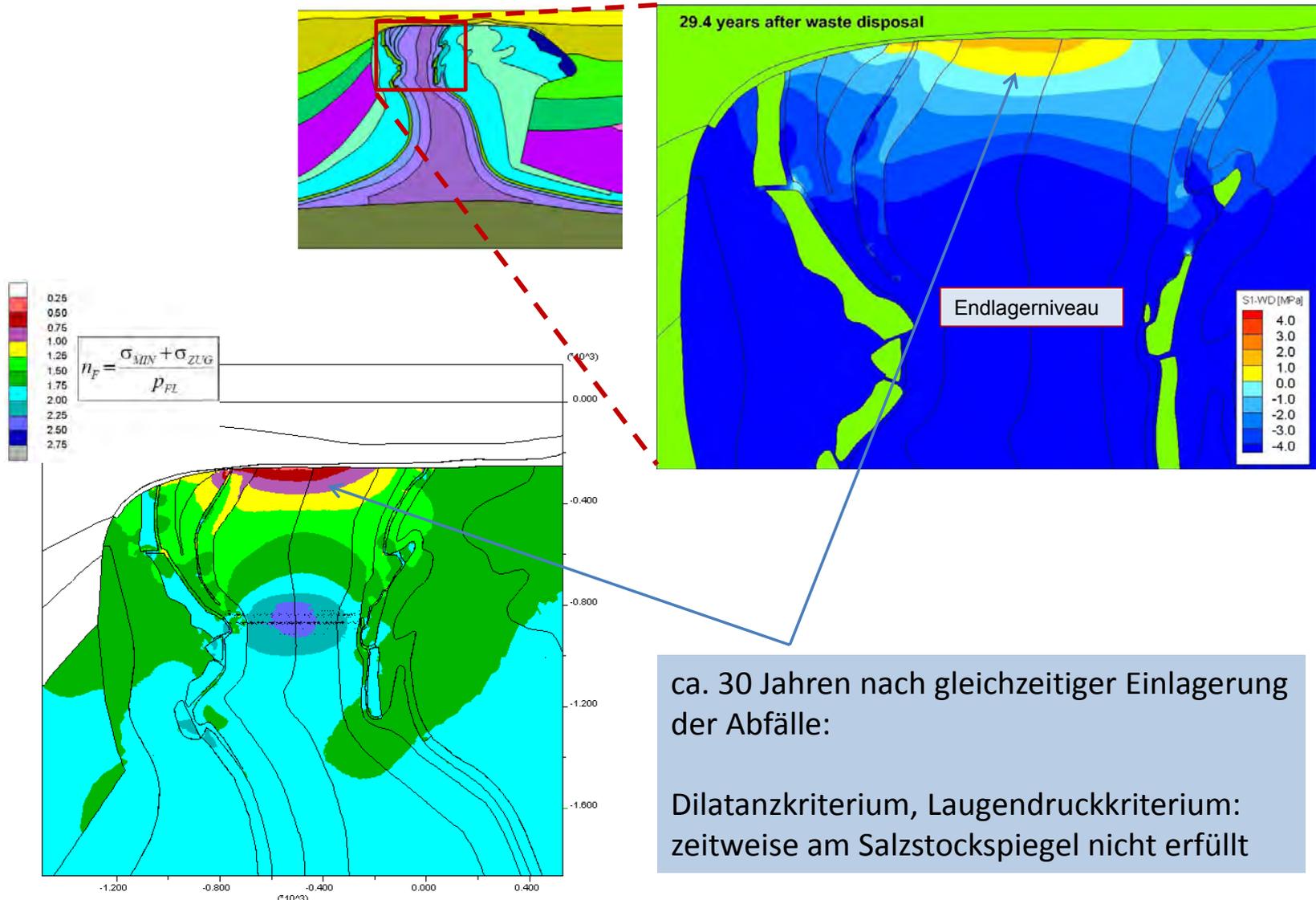
Integritätskriterien (BMU 2010):

- **Dilatanzkriterium:** Thermospannungen $<$ gesteinspezifische Dilatanzgrenze
→ Vermeidung von Mikrorissen
- **Laugendruckkriterium** (auch „Minimalspannungskriterium“):
Minimalspannungen $>$ hydrostatischer Druck in dieser Teufe
→ Ausschluss von Wegsamkeiten für Fluide (Flüssigkeit und/oder Gas)

Hydraulische Berechnungen (Grubengebäude) :

Lastfall:

- Gasentwicklung der Abfälle



Thermomechanische Berechnungen:

- Dilatanz- und Laugendruckkriterium werden im Bereich des Salzspiegels infolge der Thermospannungen zeitweise verletzt.
- Ein mehrere 100 m mächtiger Bereich ohne Integritätsverletzung verbleibt.
- Auflockerungszonen um Hohlräume: Lokale Verletzung des Dilatanzkriteriums (einige dm – ca. 3 m).
- Die Temperaturkriterien für Carnallit und Steinsalz werden eingehalten.

Hydraulische Berechnungen (Grubengebäude) :

- Fluiddruck (Gas) < Minimalspannung, Ausnahme: Auflockerungszonen um Hohlräume.

➔ Integrität im Bereich des Sicherheitsabstandes (50 m) gegeben.

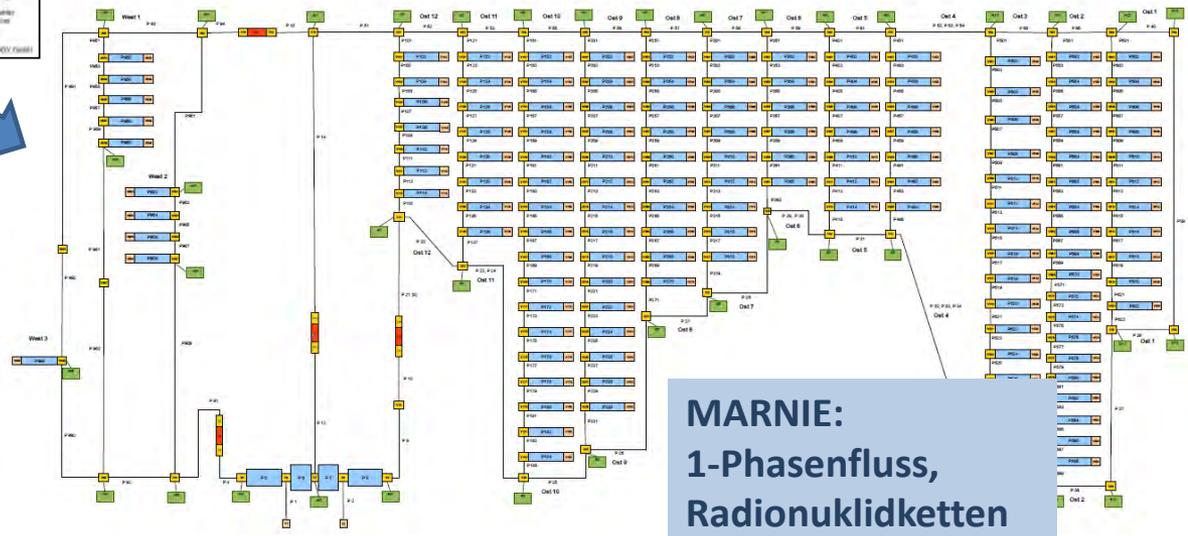
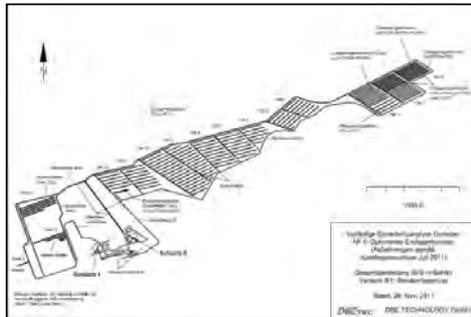
➔ Keine Integritätsverletzung innerhalb des ewG (min. 30 m).

Fluidtransport

- Wärmeentwicklung
- Versatzkompaktion
- Gasbildung
- Ausfall der techn. Barrieren



TOUGH 2:
2-Phasenfluss (Gas/Lösung)



MARNIE:
1-Phasenfluss,
Radionuklidketten

Referenzszenarium:

Auch bei langsamer Kompaktion kein Zutritt *externer* Lösungen zu den Abfällen

→ ausreichender hydraulischer Widerstand der intakten Schachtverschlüsse

Ostfeld (WE-Abfälle): Sehr geringe *interne* Lösungsmengen in den Einlagerungsbereichen (Versatzfeuchte 0,02 Gew.-% + Wassergehalt in den Behältern)

→ Weder vollständige Korrosion der Behälter noch signifikante Gasbildung

Westfeld (NWE-Abfälle): Relativ hoher *interner* Wassergehalt in den Abfällen

→ Gasbildung signifikant

→ Beeinflussung des Kompaktionsverhaltens des Salzgrusversatzes ?
(Analyse in Bearbeitung).

Vorläufige Ergebnisse, da noch nicht alle Rechenfälle analysiert wurden.

Derzeit: Analyse des Transportes gasförmiger Radionuklide

Alternativszenarium “Schachtverschlussversagen“:

Tendenz:

- Auffüllen des mit Schotter gefüllten Infrastrukturbereichs (ca. 100.000 m³ Porenraum)
 - Kein Druckanstieg an den Streckenverschlüssen auf hydrostatischen Druck über ca. 1.000 Jahre.
- ➔ Salzgrusversatz hat (aus heutiger Sicht → F&E-Bedarf) ausreichend Zeit, um durch Kompaktion die Barrierewirkung zu entfalten

**Vorläufige Ergebnisse, da noch nicht alle Rechenfälle analysiert wurden.
Derzeit: Analyse des Transportes gasförmiger Radionuklide**

Situation:

- Detaillierter Kenntnisstand zu einigen Daten und sicherheitsrelevanten Prozessen in einem Endlager im Salz.
- Kenntnisstand ist dennoch weiter zu vertiefen (z.B. Kohlenwasserstoffe, Permeabilität-Porositätsverhalten von kompaktiertem Steinsalz).
- Bisherige Erkundungsergebnisse umfassen nur einen Teil des erforderlichen Einlagerungsbereiches.

Folge:

- nachvollziehbare und wissenschaftlich begründete **Annahmen** sind erforderlich.
- Ergebnisvorbehalt der VSG, dass solche **Annahmen** bestätigt bzw. akzeptiert werden.
- Deshalb **vorläufige** Sicherheitsanalyse.

- Bewertung des **Einschlussvermögens** der konzipierten Endlagersysteme (Sicherheitsanforderungen des BMU, Sicherheit- und Nachweiskonzept der VSG)
- Bewertung der **Robustheit** der Endlagersysteme (z. B. what-if-Betrachtungen)
- Systematische **Erfassung** der Ungewissheiten
- Analyse und Bewertung der **Belastbarkeit** der Sicherheitsaussagen
- Vorschläge zur **Optimierung** (sicherheitstechnisch bzw. methodisch)
- Systematische Zusammenstellung des identifizierten **F&E-Bedarfs**
- Bewertung der eingesetzten Methodik im Hinblick auf ihre Eignung für Sicherheitsanalysen für ein Standortauswahlverfahren



- Entwurf des Artikelgesetzes zur Standortauswahl:
vorläufige Sicherheitsuntersuchungen für jeden Standort.
- **Entscheidungsgrundlage** für:
 - übertägige bzw. untertägige Erkundung
 - abschließender Standortvergleich
- Prüfung:
 - Verwendbarkeit bzw. Modifizierbarkeit der **Methodik** der VSG bei (vorläufigen) Sicherheitsuntersuchungen für Salinar- und ggf. auch Tonsteinstandorte,
 - **Übertragbarkeit** der technisch-konzeptionellen VSG-Entwicklungen auf Endlagerkonzepte in anderen geologischen Gesamtsituationen,
 - Ableitung von **Anforderungen und Kriterien** für die Standortauswahl,
 - **F&E-Bedarf** für die Durchführung der standortbezogenen Sicherheitsuntersuchungen.



Herzlichen Dank für Ihre Aufmerksamkeit!



Methodik und Anwendungsbezug eines
Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein
HAW-Endlager im Tonstein
AnSichT

Die Arbeiten werden im Auftrag des Bundesministeriums für Wirtschaft und
Technologie (BMWi) unter dem Förderkennzeichen 02E11061B
durchgeführt.

Ziel des Vorhabens:

Überprüfung und Bewertung des erreichten Standes von Wissenschaft und Technik im Hinblick auf die Qualität und Vollständigkeit des Instrumentariums für eine sicherheitliche Bewertung von HAW-Endlagern in Tonsteinformationen in Deutschland

Grundlagen:

ISIBEL: Überprüfung und Bewertung des Instrumentariums für eine sicherheitliche Bewertung von Endlager für HAW in Salzformationen

GEIST: Gegenüberstellung von Endlagerkonzepten in Salz und Tonstein (2005)

GENESIS: Untersuchungen zur sicherheitstechnischen Auslegung eines generischen Endlagers im Tonstein in Deutschland (2007)

ERATO: Referenzkonzept für ein Endlager für radioaktive Abfälle in Tongestein (2010)

ÜBERSICHT: Übertragung des Sicherheitsnachweiskonzeptes für Endlager im Salz auf andere Wirtgesteine (2009)

TemTon: Untersuchungen zur Auswirkung einer Temperaturerhöhung in Tonformationen in Deutschland im Hinblick auf die bautechnische Machbarkeit eines Endlagers und irreversible Veränderungen der potenziellen Wirtformation

Laufzeit: 2011 - 2014

ANSICHT Arbeitsprogramm

AP 1: Geologie der relevanten
Tonsteininformationen und zugehöriges
Endlagerkonzept

- *Geologie der Modellstandorte*
- *Endlagerkonzept unter Berücksichtigung von Rückholung / Bergbarkeit*

AP 2: Methodik des
Sicherheitsnachweises für ein HAW-
Endlager im Tonstein

- *Integritätsnachweis für die technischen und geotechnischen Barrieren*
- *Integritätsnachweis für die geologische Barriere*

AP 3: FEP-Selektion und
Szenarienentwicklung

- *Geowissenschaftliche Langzeitprognose*
- *Erstellung des FEP-Katalogs*
- *Szenarienentwicklung*

AP 4: Möglichkeit des Nachweises
der Sicherheit in der Betriebs- und
kontrollierten Nachbetriebsphase

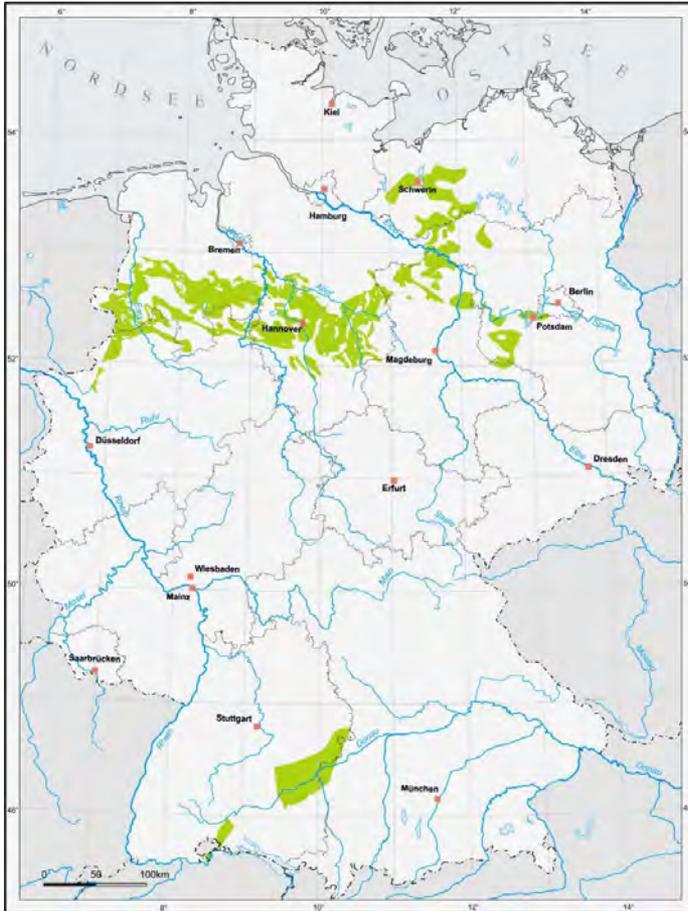
- *Sicherheitsnachweis für die Betriebs- und kontrollierte Nachbetriebsphase*
- *Schutz der Tagesoberfläche*

AP 5: Nachweiskonzept und
Konsequenzenanalyse für die
Langzeitsicherheit von Standorten im
Tonstein

- *Erstellung eines Nachweiskonzeptes*
- *Bewertung der Datenlage und des Instrumentariums*

AP 6: Berichtswesen

Regionale Tonstudie der BGR (2007)



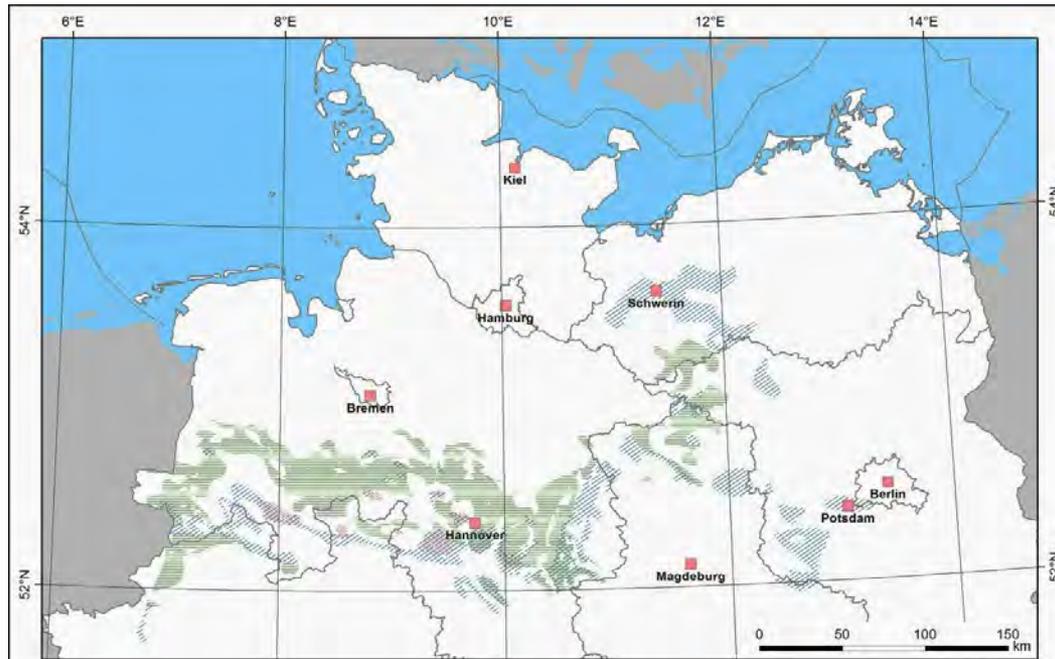
■ untersuchungswürdige Tongesteinsformationen in Deutschland

- Gebirgsdurchlässigkeit: kleiner 10^{-10} m/s
- Tiefenlage: 300 bis 1000 m
- Ausdehnung: größer 10 km^2
- Mächtigkeit: größer 100 m
- Weitere Kriterien: Untergrundnutzung, Störungshäufigkeit, Neigung
- Ausschlusskriterien: Vulkanismus, Erdbeben, aktive Störungszonen

Modifizierte Anforderungen im Projekt ANSICHT:

- Potenzielles Einlagerungsniveau in einer Teufenlage zwischen 600 m und 800 m
- Standort in einer regional gut charakterisierbaren tonigen Schichtenfolge

Referenzregion NORD



Erläuterung

Tongesteinsformation		zutreffende Mindestanforderung	
Unterkreide	Mächtigkeit	> 100m	
Dogger (Mitteljura)	Teufe	> 300m und < 1000m (unter Geländeoberkante)	
Lias (Unterjura)	Flächengröße	> 10km ² (mit ausreichender räumlicher Charakterisierbarkeit)	

Region:
*östliches
Niedersächsisches
Becken*

Wirtsgestein:
***Barrême &
Hauterive***

- **Modellgebiet zeigt keine standortbezogenen Daten,**
- **nutzt aber vorhandene Daten, um ein realistisches Modell für die Projektarbeit zu erzeugen**
- **fehlende Daten werden aus anderen Regionen übernommen und entsprechend angepasst**

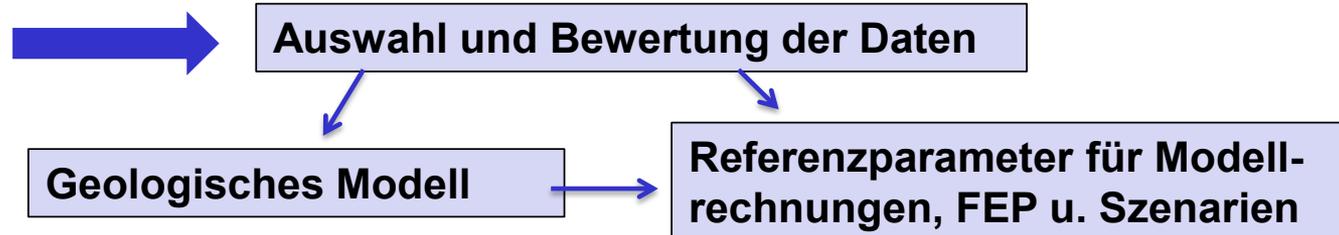
Datengrundlage zur Beschreibung der Endlagermodellregion Nord

georeferenziert: regionale Daten:

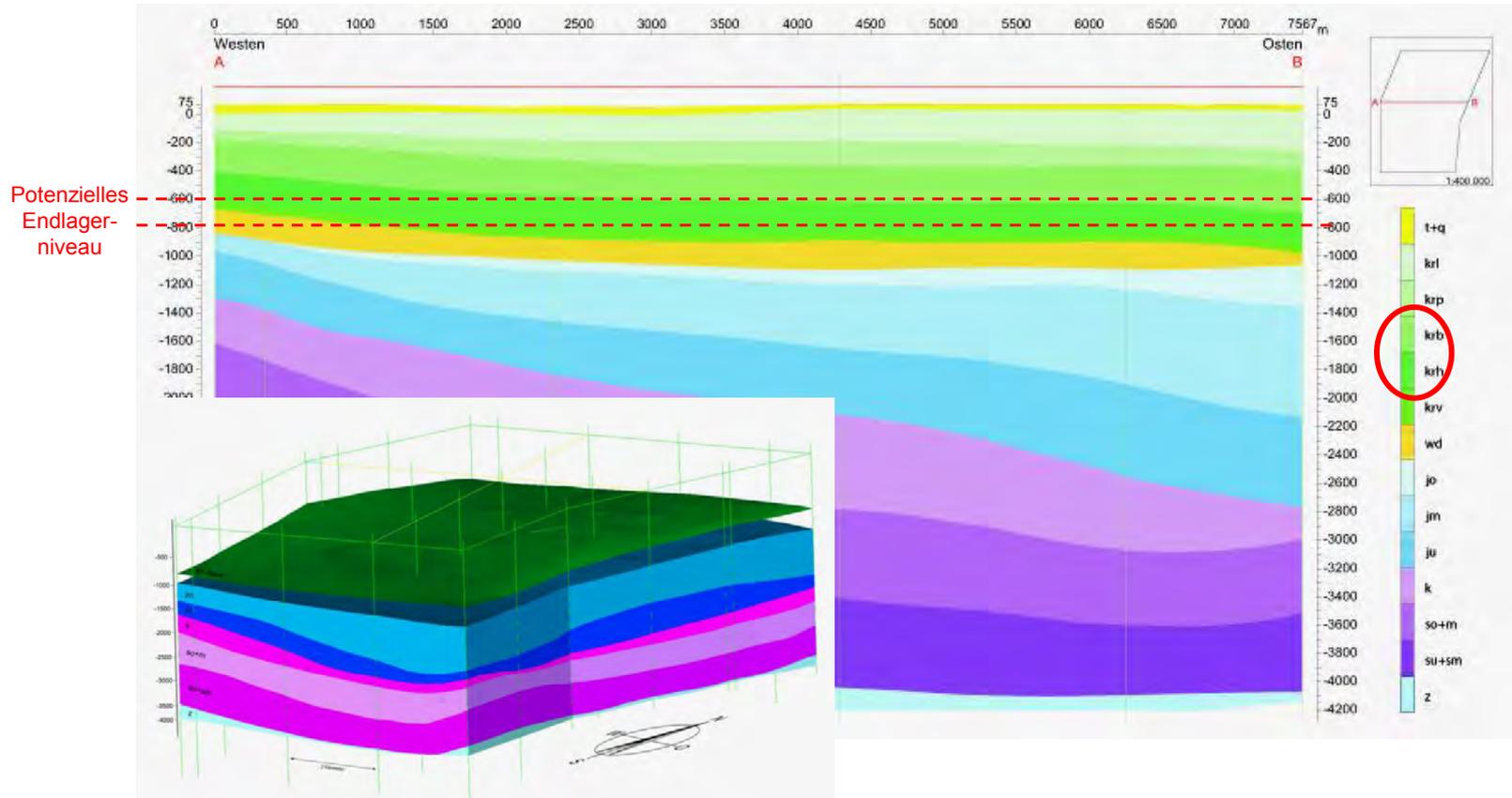
- Bohrungen
- Bohrungs-
messungen
- Seismik
- Endlager Konrad
- Deponien
- Wissenschaftl. Arbeiten
- Geotektonischer Atlas
- Unterkreideatlas
(Mächtigkeitskarten)

Endlagerprojekte im Tonstein:

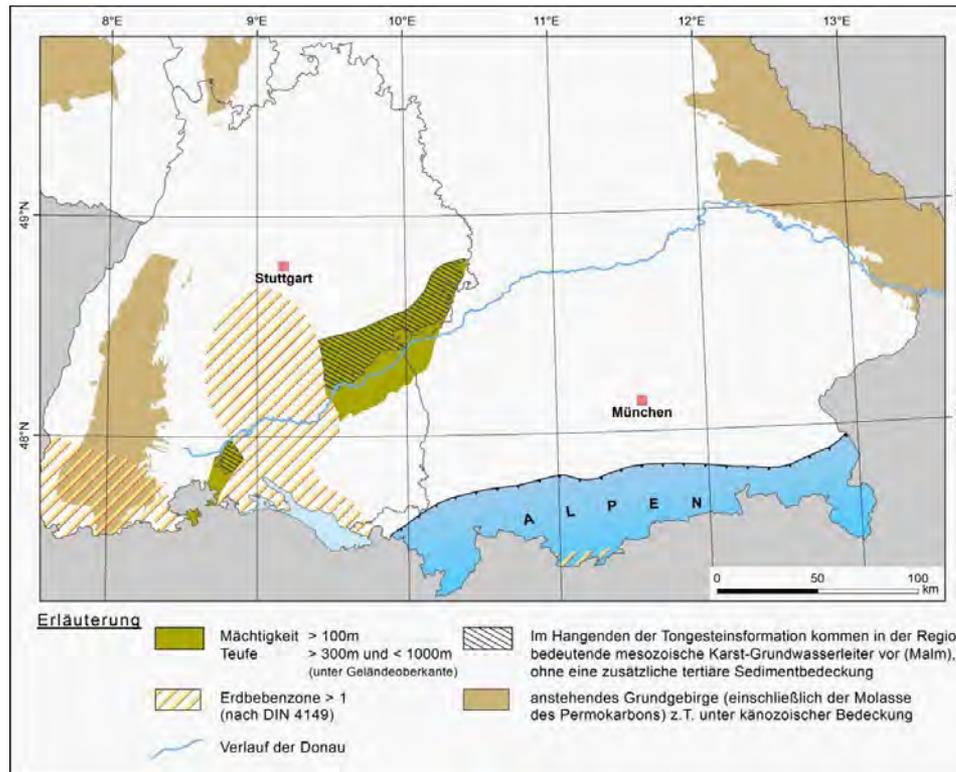
- Tournemire
- Opalinuston
- Tiefbohrungen,
- URL Mont Terri
- URL Bure
(Callov-Oxfordian)



Geologisches Profil durch die Endlagermodellregion Nord



Referenzregion SÜD

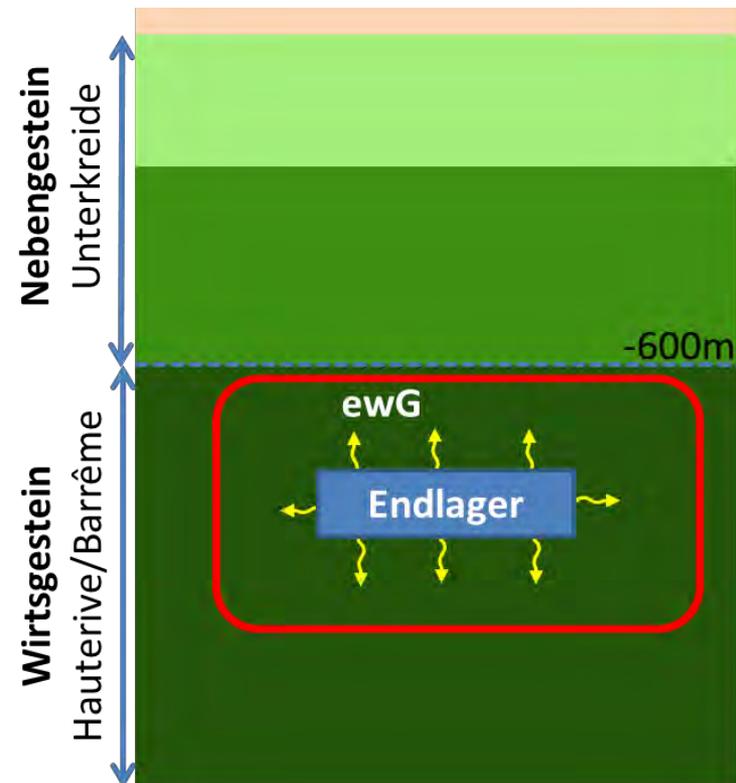


Tongesteinsformationen:
Jura (Lias, Dogger)

Wirtsgestein:
Opalinus-Ton (Aalenium,
unt. Dogger)

Entwurf des Sicherheitskonzeptes

- Sicherheitskonzept reflektiert die Sicherheitsanforderungen des BMU
 - Nachsorgefreier Einschluss im ewG
 - Allenfalls geringfügige Freisetzung am Rand des ewG
- Einschluss wird gewährleistet durch
 - Eigenschaften des Tonsteins
 - Geringe Permeabilität
 - Geochemische Rückhaltung
 - Selbstheilungskapazität
 - Geotechnische Barrierensysteme



Zielsetzungen

- ewG bleibt im Nachweiszeitraum erhalten

- Rückholbarkeit der Abfallgebinde in der Betriebsphase
- Bergbarkeit der Abfallgebinde für 500 a
- Vermeidung der Freisetzung radioaktiver Aerosole (500 a)

- Rasche Wiederherstellung des ursprünglichen Spannungszustandes im Gebirge
- Begrenzung der Gasdruckaufbaurrate und des Gasdrucks
- Beschränkung der mikrobiellen Aktivität

- Verhinderung von advektivem Transport (Verschließen von Wegsamkeiten)
- Verzögerung und Begrenzung der Mobilisierung, des Transportes und der Freisetzung der Schadstoffe

- Verhinderung der Kritikalität
- Begrenzung des Risikos bzw. der Konsequenzen eines menschlichen Eindringens

Planerische Festlegungen

Auffahrung und Errichtung des Bergwerkes

- Geologisch stabile Standortregion
- Wirtsgestein mit geringer hydraulischer Durchlässigkeit
- Wirtsgestein gut charakterisierbar
- Einlagerungssohle zwischen 600 und 800 m Teufenlage
- Endlagerkonzept kompatibel mit der Mächtigkeit, den Eigenschaften und der Ausdehnung des Wirtsgesteins
- Endlagerungssohle allseitig von Wirtsgestein umschlossen
- Minimierung der aufgefahrenen Grubenräume
- Einlagerung im Rückbau

Wiederherstellung / Erhaltung der Integrität der geologischen Barriere

- Verschließen von Strecken und Schächten
- Verfüllung der offenen Hohlräume mit quellfähigem Versatz
- Begrenzung der Temperaturen im Wirtsgestein

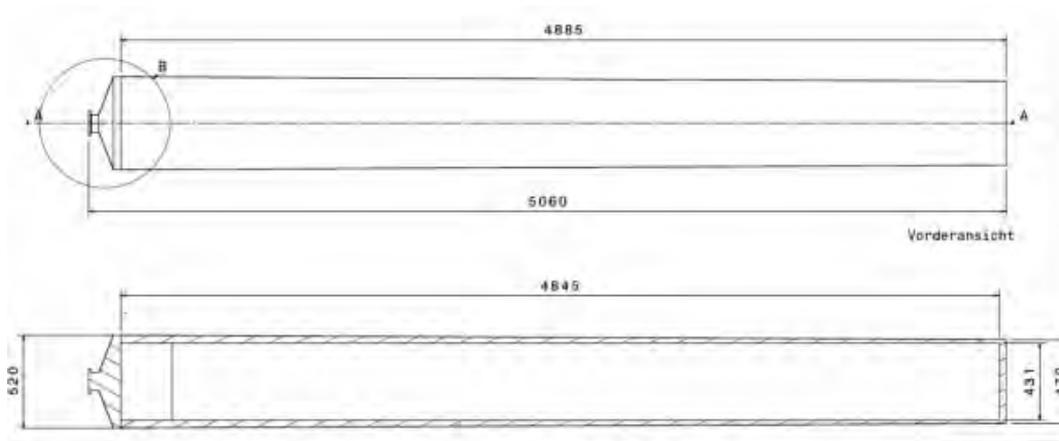
ANSICHT Endlagerkonzept

Grundlagen:

Abfallstrom				Abfallgebinde
Brennelemente aus Leistungsreaktoren	DWR	UO ₂	12.450 BE	6.990 RK-BE
		MOX	1.530 BE	
	SWR	UO ₂	14.350 BE	2.600 RK-BE
		MOX	1.250 BE	
	WWER-DWR	UO ₂	5.050 BE	1.010 RK-BE
Strukturteile aus BE-Kondition.				874 RK-ST
Wiederaufarbeitung	CSD-V		3.729 Kokillen	1.245 RK-HA
	CSD-B		308 Kokillen	103 RK-WA
	CSD-C		4.104 Kokillen	1.368 RK-WA

Abfallmengen der Brennelemente aus Leistungsreaktoren und aus der Wiederaufarbeitung unter Berücksichtigung des Ausstiegsbeschlusses der Bundesregierung (nach VSG)

Rückholbare Kokille



Inventar (alternativ):

- 2 DWR-Brennelementen,
- 6 SWR-Brennelementen,
- 5 WWER-DWR-Brennelementen
- 3 CSD-V, CSD-B oder CSD-C
- kompaktierte Brennelement-Strukturteile aus der BE-Konditionierung

Grubengebäudeplanung

Randbedingungen:

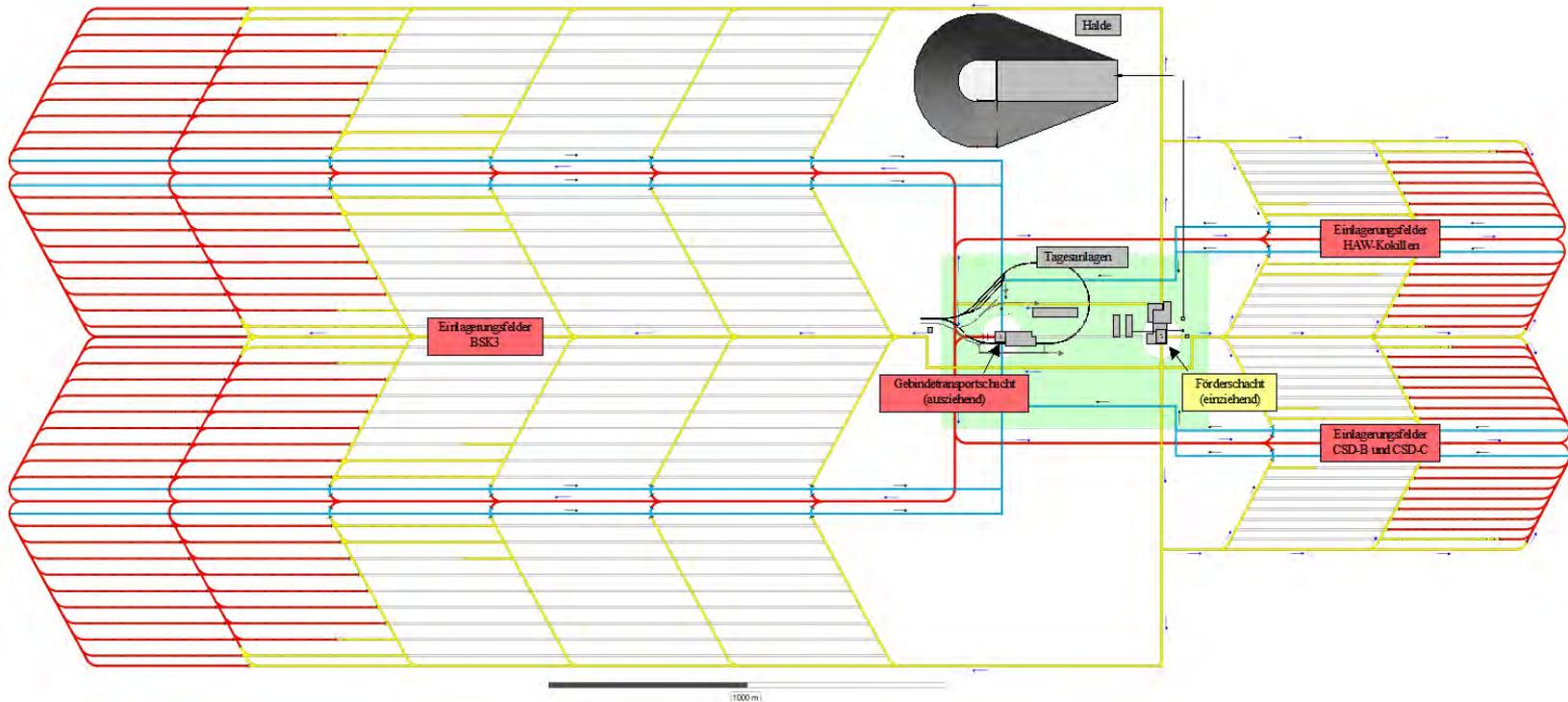
- Tiefenlage: > 600 m
- Grenztemperatur im Wirtsgestein: 100°C
- Rückholbarkeit der Endlagergebinde (EG) in der Betriebsphase,
- Bergbarkeit der EG während der ersten 500 a der Nachverschlussphase

Grundkonzept:

- Einsöhliges Grubengebäude
- 2 Schächte
 - Frischwetterschacht (ÜB): Haufwerk, Personal- und Materialtransport
 - Abwetterschacht (KB): Gebindettransport, Personal- und Materialtransport
- Gebindettransport- und Abwetterstrecken (KB), Bergbaustrecken (ÜB)
- Anordnung der Einlagerungsfelder zwischen Richtstrecken (Erkundung)
- Einlagerung in 27 bzw. 31 m tiefen Vertikalbohrlöchern
- Einlagerung im Rückbau

ANSICHT Endlagerkonzept

Grubengebäude Bohrlochlagerung: (Iks Felder für BE und re Felder für WA)



Flächenbedarf BE-Felder: ca. 3,8 km² incl. Infrastruktur und WA-Feldern: ca. 7,6 km²

Rückholbarkeit und Bergbarkeit

Sicherheitsanforderungen nach BMU 2010:

Rückholbarkeit während der Betriebsphase und Bergbarkeit während der ersten 500 a der Nachverschlussphase

ERATO:

Vergleich von

6 Streckenlagerungskonzepten

4 Bohrlochlagerungskonzepten

Analyse auf Einhaltung sicherheitlicher und betrieblicher Anforderungen (Rückholung nicht berücksichtigt) > **je eine Vorzugsvariante identifiziert**

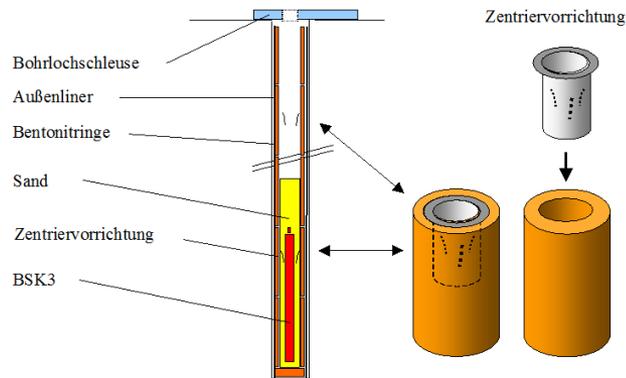
ANSICHT:
Identifikation eines
Referenzkonzeptes unter
Berücksichtigung von
Rückholung / Bergung

Kriterien

- Anforderungen an die Größe der Grubenräume
- Tech. Aufwand (Rückholungstechnik vorhanden ?)
- Arbeits- bzw. Zeitaufwand für die Rückholung
- erforderliche Offenstandszeiten der Grubenräume
- Betriebssicherheit / Störanfälligkeit während der Rückholung
- Strahlenexposition des Personals während der Rückholung

Referenzkonzept Bohrlochlagerung (Adaption der Vorzugsvariante ERATO)

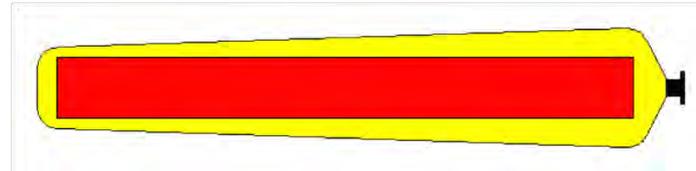
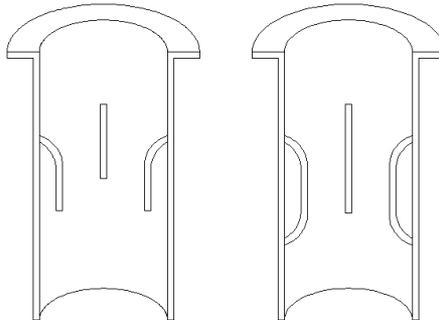
Merkmal der Bohrlochbarrieren: Einzelkomponenten (*BSK2, Innenliner und Sandverfüllung, Bentonitummantelung*) werden nacheinander eingebracht



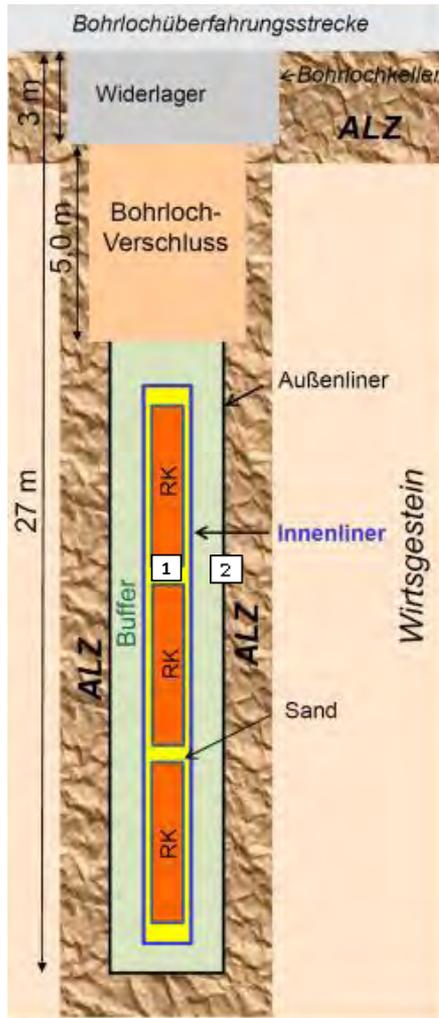
Vorzüge des Konzeptes

geringe Streckenquerschnitte, kurze Offenstandszeiten, geringe Masse, geringe Spurweite und Gleisradien

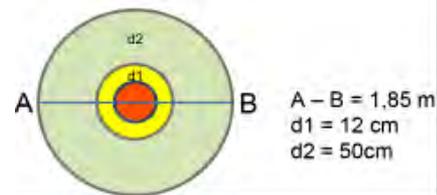
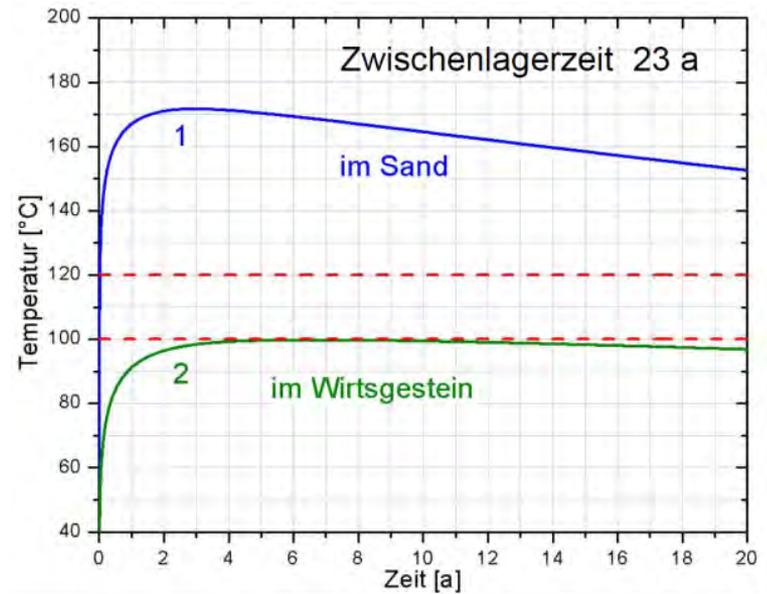
Rückholungsbedingte Anpassungen der Komponenten des Bohrlochkonzeptes



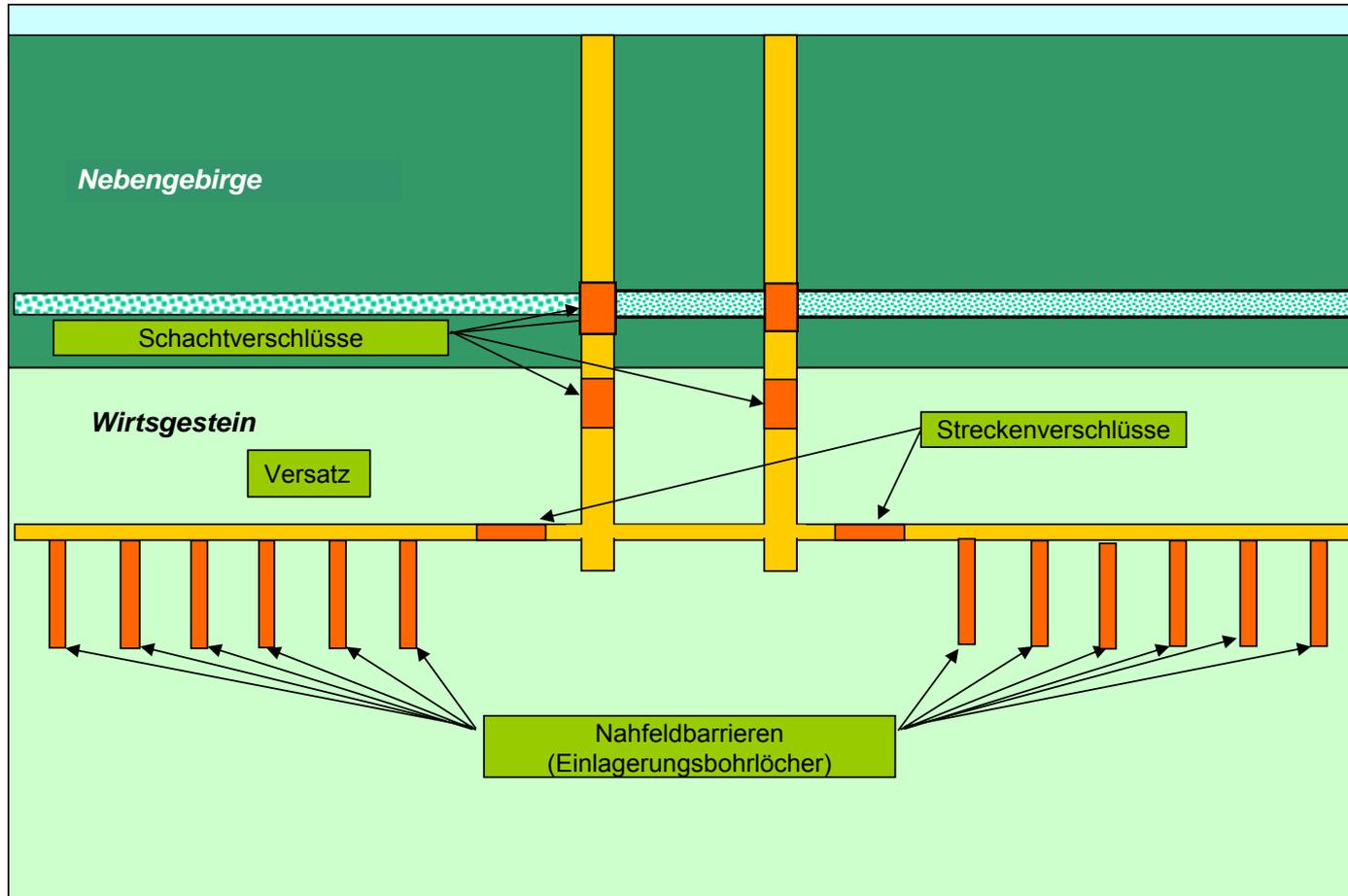
ANSICHT Endlagerkonzept



Bohrlochlagerungskonzept

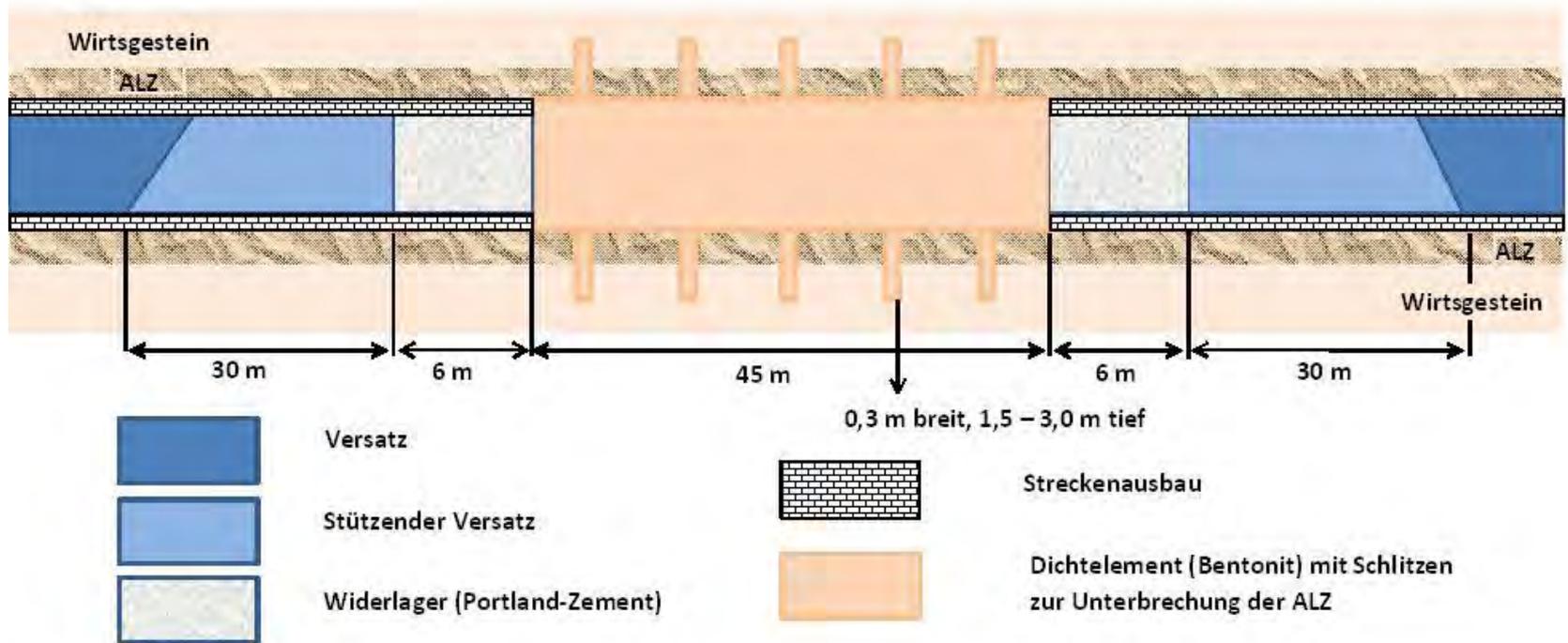


ANSICHT Verfüll- und Verschlusskonzept

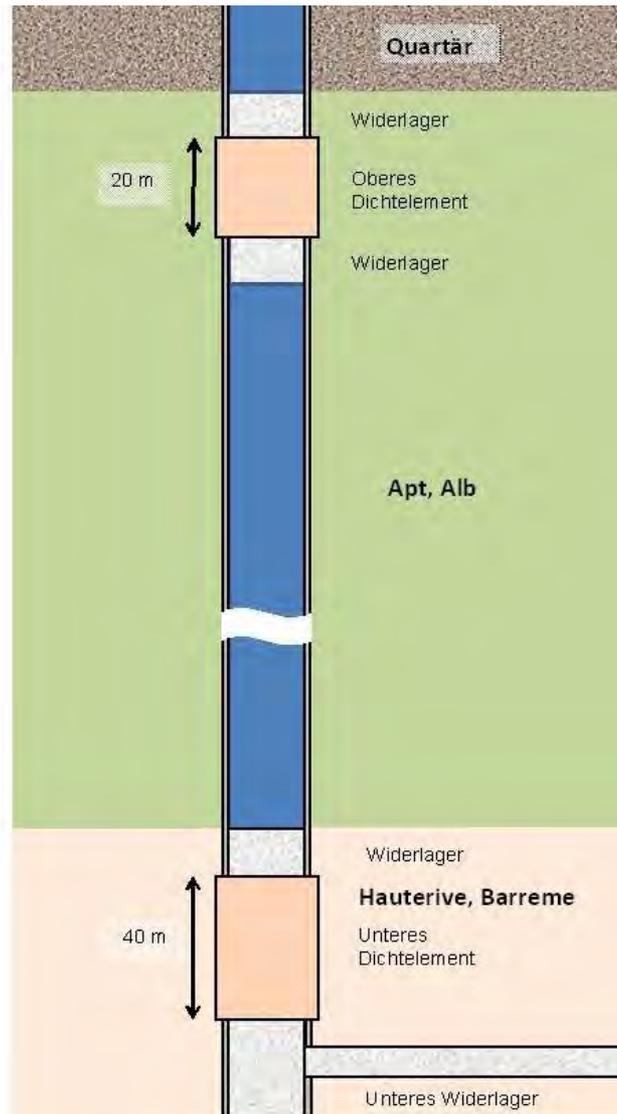


ANSICHT Verfüll- und Verschlusskonzept

Streckenverschluss



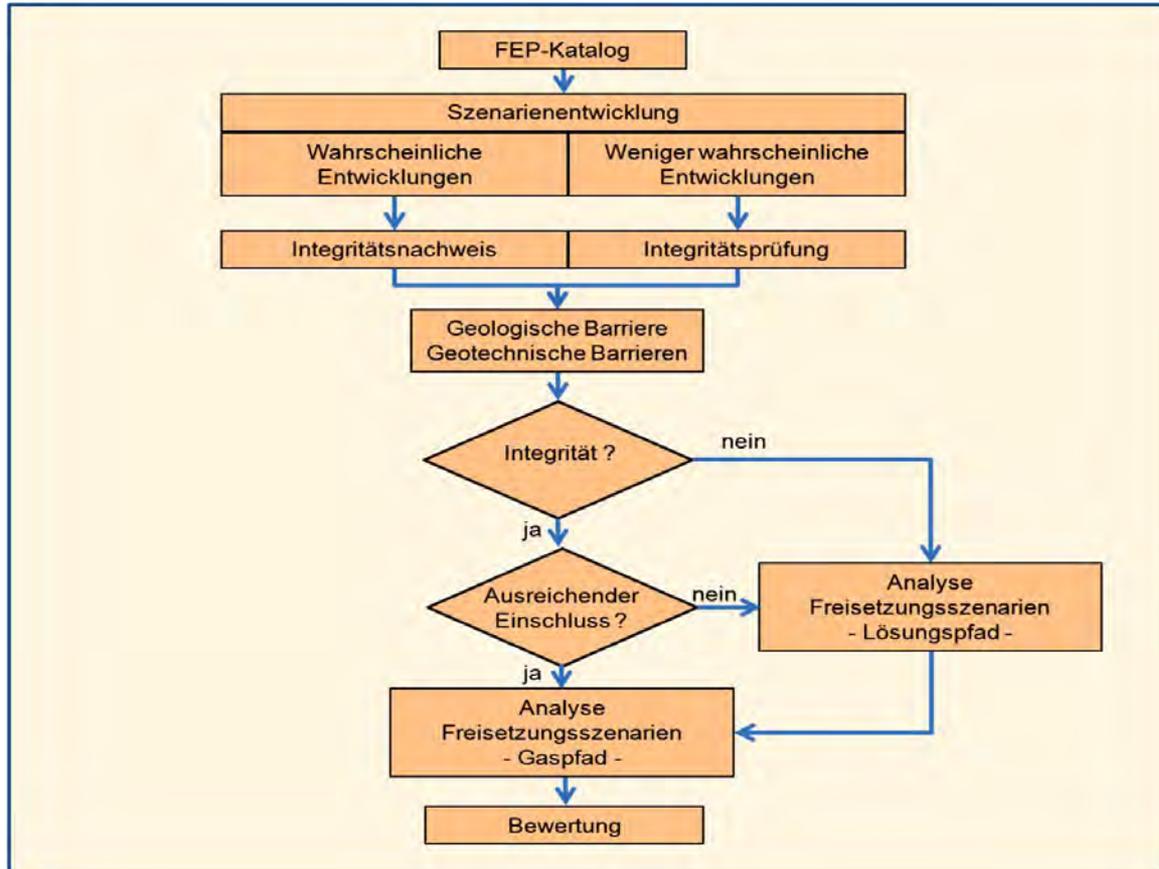
ANSICHT Verfüll- und Verschlusskonzept



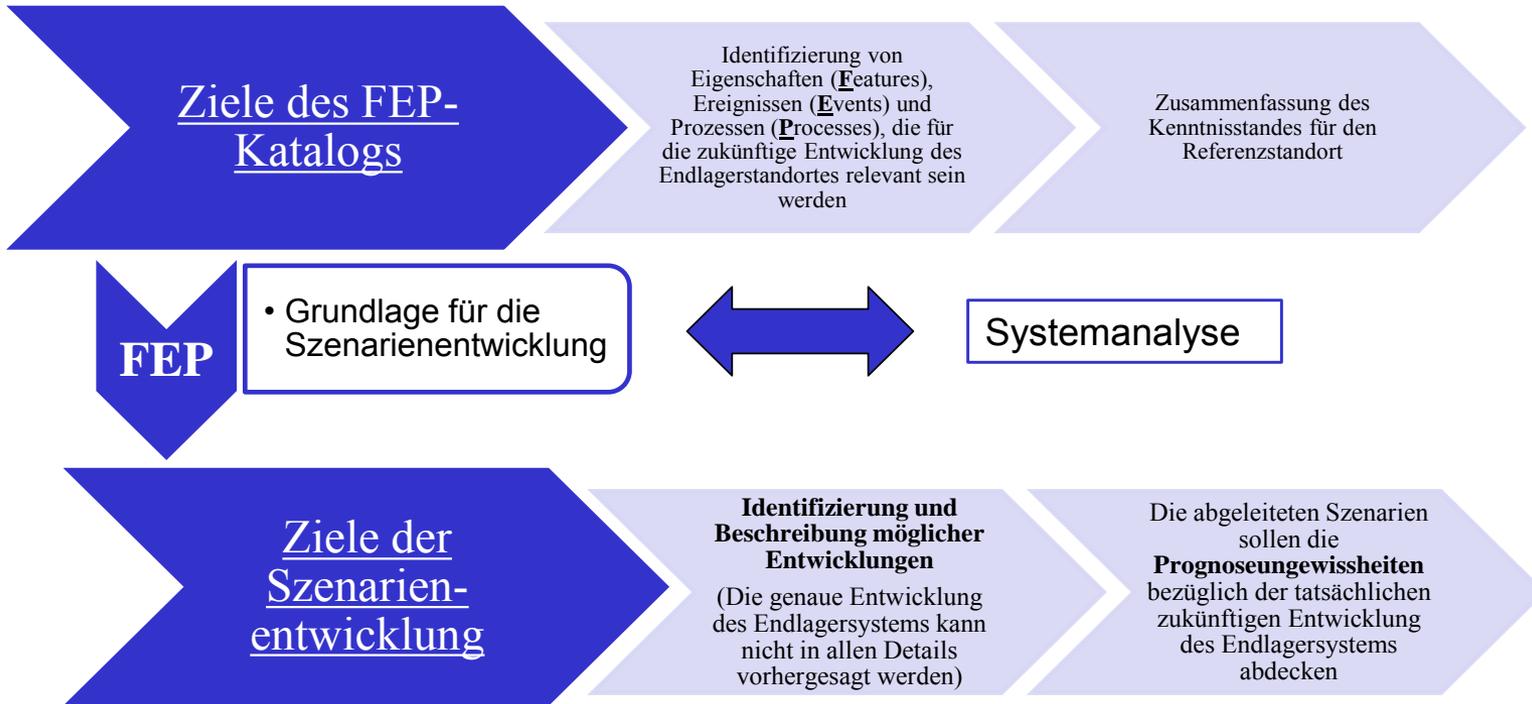
Schachtverschluss

ANSICHT Sicherheitsnachweiskonzept

Vorgehen bei der Sicherheitsbewertung eines Tonstandortes



ANSICHT FEP-Katalog und Szenarientwicklung



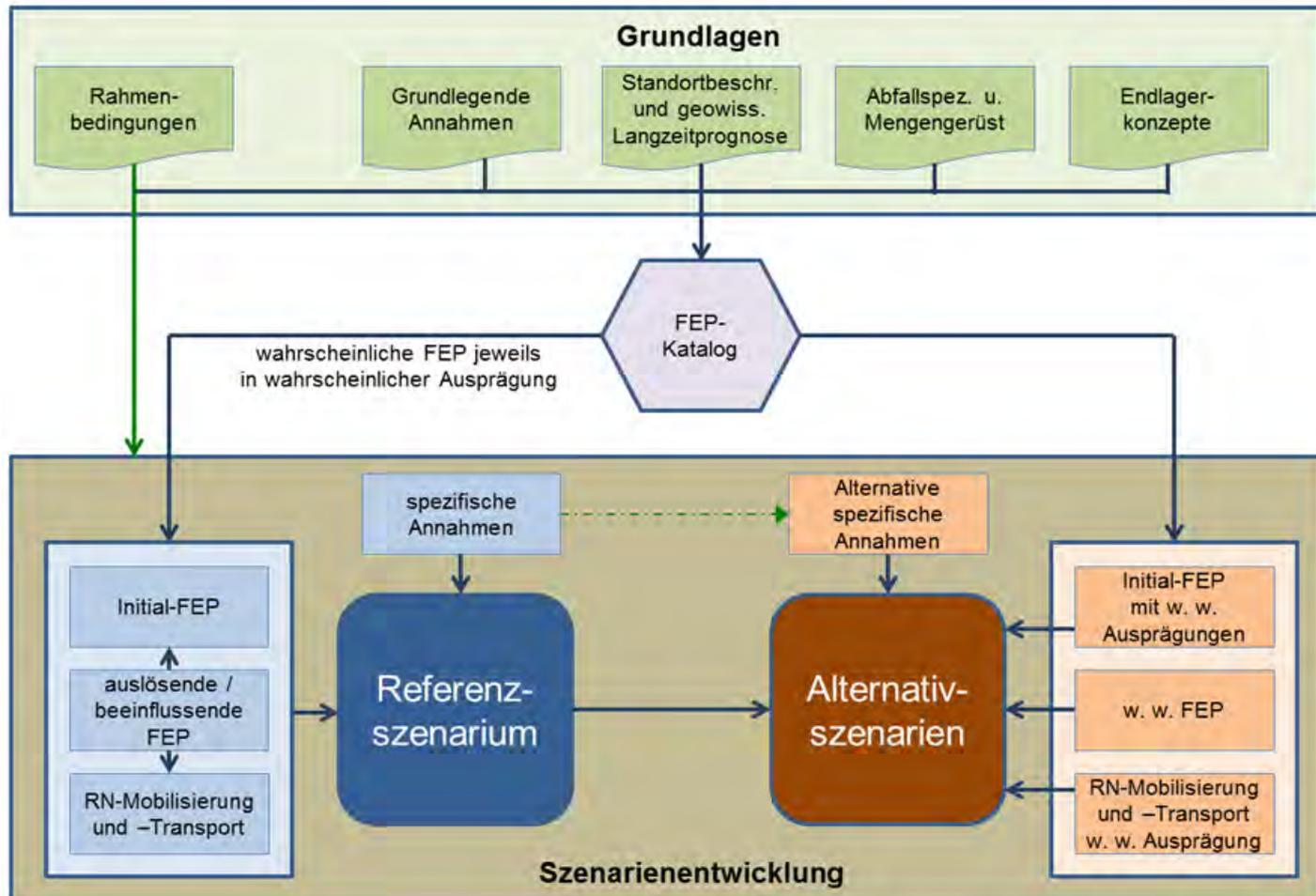
Aufgrund der Methodik der Szenarientwicklung



Anforderungen an Struktur und Inhalt der FEP-Datenbank

ANSICHT FEP-Katalog und Szenarientwicklung

Methodik der Szenarientwicklung (VSG-Konzept)



FEP-Datenbank

FEP-Nr.: G 1.2.03.01 NEA-Nr.: 1.2.03 Titel: Erdbeben Datum: 09.10.2012 Rev-Nr.: 1.018

Kurzbeschreibung:
Erdbeben sind die plötzliche Freisetzung von Deformationsenergie, die sich in begrenzten Bereichen der Lithosphäre angestaut hat. Dieser Vorgang erzeugt kurzzeitige Erschütterungen, die sich als seismische Impulse oder Wellen vom Erdbebenherd ausbreiten.

Belegte Eintrittswahrscheinlichkeit:
 wahrscheinlich nicht zu betrachten
 wenig wahrscheinlich

Beinträchtigung der Funktion einschlusswirksamer Barrieren:
Schachverschlüsse, Streckenverschlüsse, Wirtsgestein

Begründungen:
Eintrittswahrscheinlichkeit: Erdbeben sind für den langen Betrachtungszeitraum von einer Million Jahre auch am geplanten Endlagerstandort oder in seiner Umgebung wahrscheinlich.
Handhabung in den Teilsystemen: Aus der geologischen Gesamtsituation ergeben sich keine Hinweise auf ein zu erwartendes verstärktes Erdbebenaufkommen, das Auswirkungen auf ein verschlossenes und verfülltes Endlager haben könnte. Auswirkungen starker Erdbeben auf Salzstöcke sind unbekannt bzw. wurden anhand von geologischen Merkmalen bisher nicht nachgewiesen. Auswirkungen auf bestimmte Komponenten der Schachverschlüsse oder die Schichten des Deck- und Nebengebirge sind möglich, so dass die Teilsysteme Strecken und Schächte sowie Deck- und Nebengebirge zu berücksichtigen sind. Auswirkungen von Erdbeben auf das Wirtsgestein werden i. S. einer konservativen Vorgehensweise durch Modellrechnungen untersucht.

Allgemeine Informationen Sachlage Auswirkungen Direkte Abhängigkeiten Wirkung im Teilsystem Literatur / Fragen Revision

Allgemeine Informationen und Beispiele:
Die meisten Erdbeben (etwa 95 %) treten an den Rändern von tektonischen Platten auf. Neben tektonisch verursachten Erdbeben gibt es vulkanische und vom Menschen hervorgerufene Erdbeben (induzierte Seismizität). Letztere können durch Be- und Entlastungen an der Erdoberfläche und unter Tage im Bergbau, durch Einpressen von Flüssigkeiten in tiefe Bohrlöcher und durch unterirdische Explosionen induziert werden. In Bergbaugeländen können sich Scherbrüche, ausgelöst infolge von Spannungsumlagerungen in der Nähe von Hohlräumen, als Erdbeben bemerkbar machen. Der Zusammenbruch von nicht versetzten Hohlräumen unter Tage hat in den Kalibergbaugeländen von Mitteldeutschland zu weithin spürbaren Einsturzbeben geführt, u. a. bei Sunna am 23.6.1975, bei Völkershäusen am 13.3.1989 und bei Halle am 11.9.1996. Auf Erdbeben zurückzuführende Schäden werden auch aus Kohlebergwerken beschrieben. Die im Vergleich zu Schäden an übermächtigen Anlagen vernachlässigbar geringen untermächtigen Auswirkungen werden damit begründet, dass die Abstrahlämpfung für vollständig eingebettete Bauwerke wesentlich größer ist als für Hochbauten an der Erdoberfläche (vgl. ALHEID & HINZEN 1988). Im Rahmen dieses FEP's werden nur natürliche Erdbeben detailliert betrachtet. Durch menschliche Tätigkeiten induzierte Erdbeben werden im FEP „Zukünftige menschliche Aktivitäten“ behandelt.
MINKLEY et al. (2010) untersuchten die Auswirkungen dynamischer Ereignisse, wie sie durch Erdbeben induziert werden, am „Naturalanalog“ Gebirgsschläge im Kalibergbau. Über geomechanische Modellrechnungen mit einer Demonstration der daraus resultierenden Barrierenbelastungen sowie direkte Messungen in der durch den Gebirgsschlag beanspruchten hängenden Steinsalzbarriere in der Grube Teutschenthal wurde nachgewiesen, dass durch das Gebirgsschlagereignis die Barrierenintegrität nicht verletzt wurde. Als Konsequenz folgern MINKLEY et al. (2010), dass „... die stärksten bergbauduzierten dynamischen Beanspruchungen, welche die aus natürlicher Seismizität in Deutschland möglichen Belastungen um ein Vielfaches übertreffen und im Vergleich mit statischen Beanspruchungen weitaus kritischere Belastungsfälle für die geologischen Barrieren darstellen, ab einer bestimmten Mächtigkeit der Salinarbarrieren nicht mehr im Stande sind, deren Integrität und Dichtigkeit zu verletzen.“
Die Verminderung der Scherfestigkeit durch erhöhten Porenwasserdruck ist auch bei der durch künstlich oder natürlich (Abtauen von Gletschern am Ende von Kaltzeiten) entstandene Stauseen induzierten Seismizität von großer Bedeutung, obwohl die zusätzlich aufgetragenen Porenwasserdrücke von etwa 1 MPa erheblich niedriger als die Drücke sind, die beim Abpressen von Flüssigkeiten in Bohrlöchern wirken. Dafür kann dieser Effekt einen wesentlich größeren Bereich erfassen, was zu größeren Erdbeben führen kann. Beobachtungen von stauseeinduzierten Erdbeben gibt es u. a. von folgenden Orten: Lake Mead (USA), Koyna (Indien), Nurek (Kirgistan), Hsinfengkiang (China) und Kremasta (Griechenland). Der Erdbebertyp kann im Zusammenhang mit Eisstauseen während einer Kaltzeit Bedeutung erlangen, wenn sich große Eisstauseen über Gebieten mit hohen angestauten Deformationsenergien bilden.
Eine weitere Ursache für Erdbeben sind isostatische Ausgleichsbewegungen der Erdkruste, die infolge von abtauenden, mächtigen Inlandeis Massen insbesondere im Bereich aktiver Störungszonen zur plötzlichen Freisetzung von Deformationsenergie beitragen.
Aus Gebieten mit starken Erdbeben und wassergesättigten sandigen Schichten sind Änderungen des Grundwasserspiegels oder die plötzliche Ausschüttung von Grundwasser aus den Sedimenten zur Oberfläche bekannt. Beide Phänomene haben eine kurze zeitliche Dauer und werden nicht betrachtet.

Normal count 114 skill: 3 1221

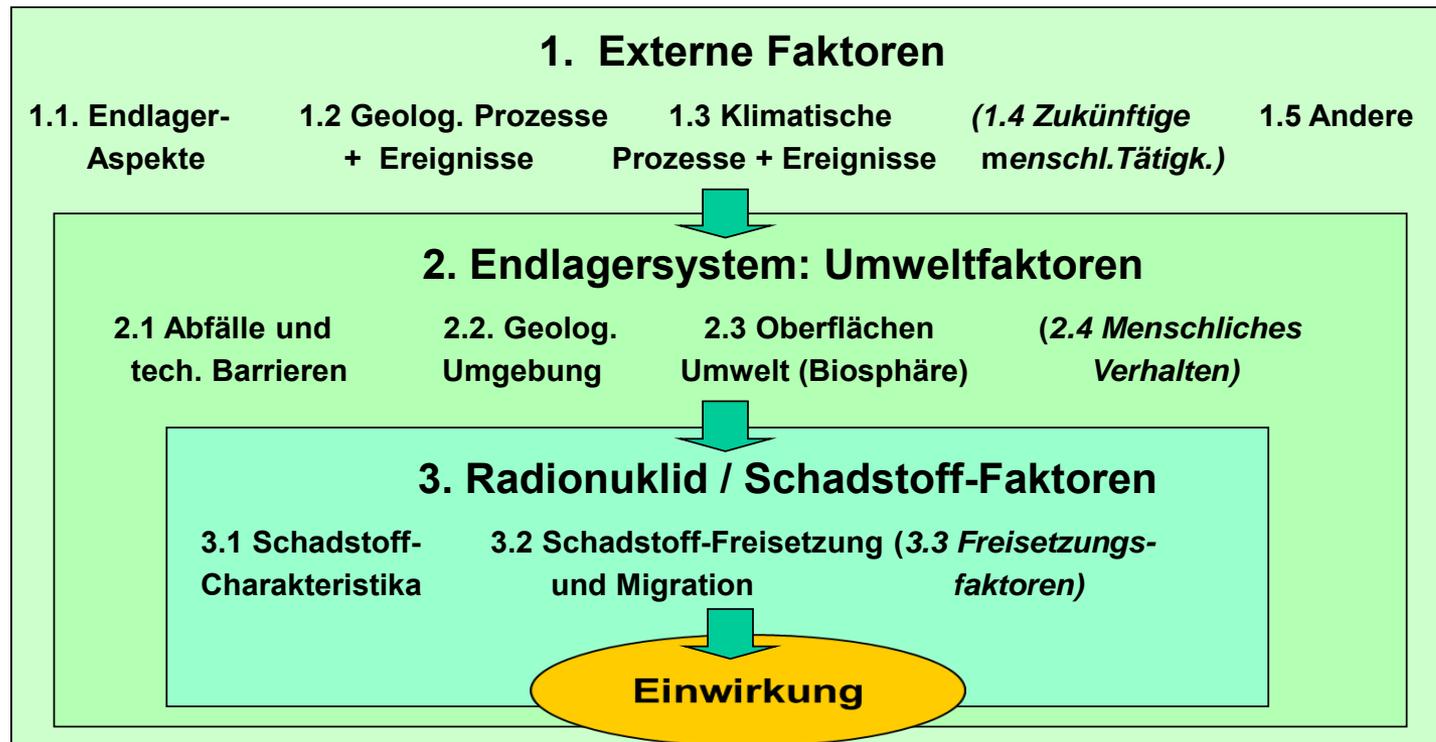
Aspekte mit
speziellem
Bezug zur
Methodik der
Szenarien-
entwicklung

ANSICHT FEP-Katalog und Szenarientwicklung

Stand der Erstellung der FEP-Kataloge



- Grundlage: die aus der NEA-FEP-Datenbank abgeleitete VSG / ISIBEL-Datenbank.
- Adaption der FEP-Liste an die geänderte Wirtsformation und das Endlagerkonzept.
- Regional unterschiedliche Standortbedingungen erfordern zwei FEP-Kataloge



Zusammenfassung und Ausblick

- Endlagermodellregionen Nord (EM Nord, Wirtsgestein: Hauterive / Barreme) und Süd (EM Süd; Opalinus-Ton) Charakterisierung und Erstellung von Referenzprofilen begonnen.
- Wirtsgesteinsspezifisches Sicherheitskonzept gemäß BMU Sicherheitsanforderungen entwickelt.
- Für beide EMs geeignetes Endlagerkonzept (unter Berücksichtigung von Rückholung / Bergung) abgeleitet.
- Generisches Verfüll- und Verschlusskonzept entwickelt.
- Methodik des Sicherheitsnachweiskonzeptes festgelegt.
- Erstellung FEP-Datenbank (EM Nord) begonnen.

- *Datensammlung und Charakterisierung für EM Nord und EM Süd*
- *Erstellung der Geowissenschaftlichen Langzeitprognosen Nord und Süd*
- *Erstellung der FEP-Datenbank EM Süd (Differenzbetrachtung zu EM Nord)*
- *Szenarienentwicklung EM Nord und, als Differenzbetrachtung, EM Süd*
- *Abstimmung der Datensätze für die Integritätsnachweise*

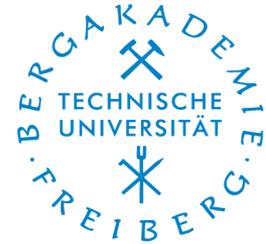
Danke für ihre Aufmerksamkeit !



Die Ressourcenuniversität. Seit 1765.

Institut für Bergbau und Spezialtiefbau

In Kooperation mit:



ELSA Teil 1: Randbedingungen und Anforderungen bei Schächten für Endlager für hochradioaktive Abfälle

Wolfram Kudla

**W. Bollingerfehr, D. Freyer, M. Gruner, M. Jobmann
N. Müller-Höppe, F. Schreiter, T. Wilsnack**

(TUBAF, DBE Tec, IBEWA)

Institut für Bergbau und Spezialtiefbau an der TU Bergakademie Freiberg
Gustav-Zeuner-Str. 1A | 09596 Freiberg
Tel. 0 3731/39-2893 | Fax 0 3731/39-3581 | www.bergbau.tu-freiberg.de



Gliederung des Gesamtvorhabens

- Phase 1:** Randbedingungen und Anforderungen für Schachtverschlüsse in Salz- und Tonformationen
(Laufzeit bis 31.1.2013)
- Phase 2:** Konzeptentwicklung für Schachtverschlüsse und Test von Funktionselementen von Schachtverschlüssen (Laborversuche und halbtechnische Versuche)
(Geplante Laufzeit 1.2.2013 bis 30.9.2015)
- Phase 3:** Großtechnischer Test und Nachweisführung mit Anpassung des entwickelten Verschlusskonzeptes

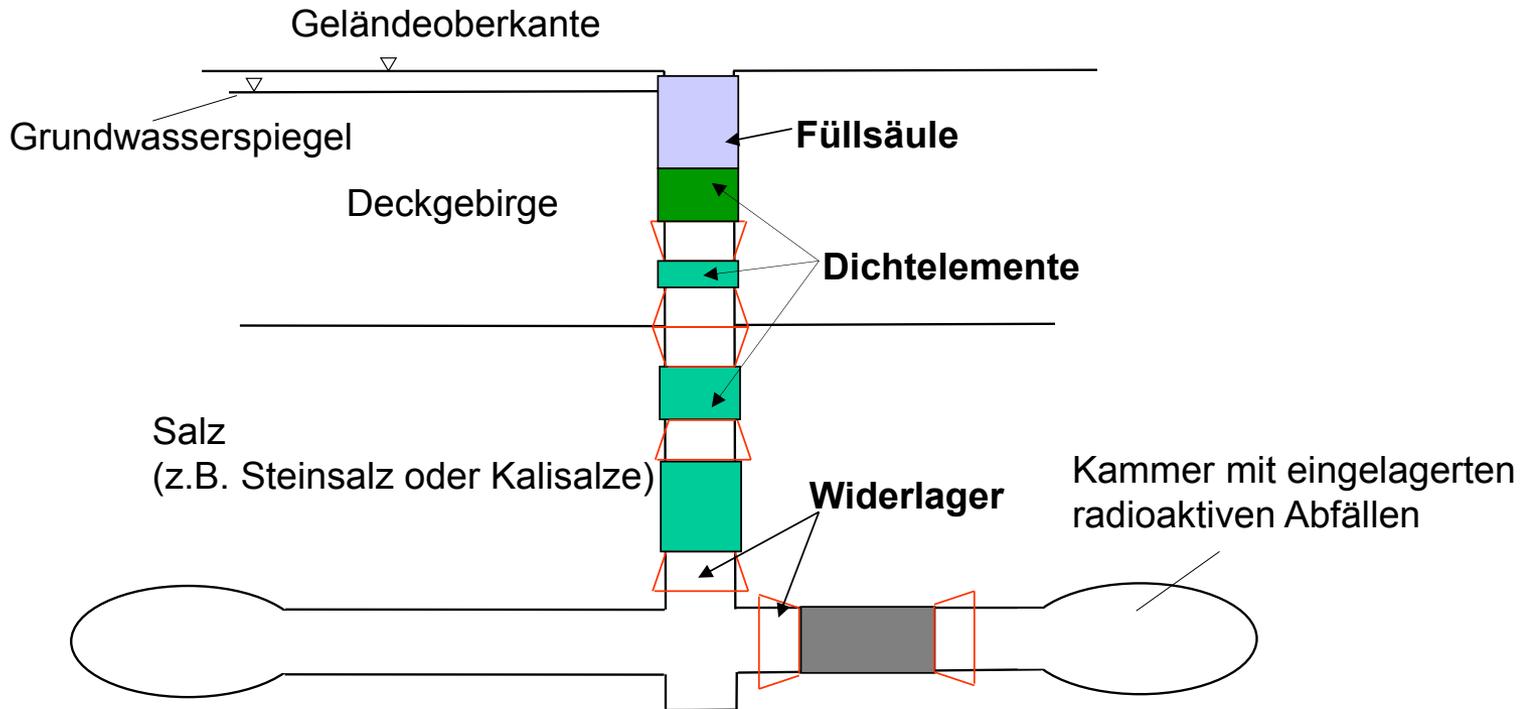


Grundlagen:

1. Kenntnisse und Erfahrungen aus Schachtverschlüssen bei UTV und UTD (national und international)
2. Stand der Forschung (*ISIBEL, ANSICHT, CARLA, Div. u. red. Dichtelemente, Schachtverschluss Salzdetfurth, VSG*)
3. Mögliche Endlagerstandorte im Salz und im Tonstein (Tonstudie BGR)
4. „Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder, radioaktiver Abfälle“ (BMU 2010)



Prinzipdarstellung für einen Schachtverschluss bei einem Endlager



Ziel:

Langzeitstabiles, diversitär und redundant aufgebautes Dichtsystem zu entwerfen, zu testen und dessen Herstellbarkeit nachzuweisen



Arbeitsprogramm – Vorhabensphase 1

- AP 1: Stand von Wissenschaft und Technik zu langzeitstabilen Schachtverschlüssen (TU BAF - IfBuS)
- AP 2: Sicherheitsnachweise - Konzept der Nachweisführung (DBETEC)
- AP 3: Randbedingungen für die Wirtsgesteine Salz und Tonstein (Beide)
- AP 4: Anforderungen (DBETEC)
- AP 5: Einbindung internationaler Partner (TU BAF)
- AP 6: Bericht (Beide)

Laufzeit: 1.4.2011 bis 31.1.2013



AP 1

Stand von Wissenschaft und Technik zu langzeitstabilen Schachtverschlüssen

Realisierte Großprojekte

- Flüssigkeitsdichte Schächte im Salzbergbau und bei unterirdischen Gasspeichern (Bernterode I (1978), Immenrode (2011))
- Großversuch "Schachtverschluss Salzdetfurth"
- Nachfolgeprojekte von K+S
- RESEAL II (Benonit-Großversuch in Belgien)

Geplante Projekte

- NAGRA-Verschlusskonzept
- ASSE, ERAM, KONRAD
- WIPP



Oberirdischer Großversuch ("BISETO") im Auftrag des BfS

Bitumenverfülltes Schotterelement, Maßstab 1:1, Hermsdorf Sommer 2012



AP 2

Sicherheitsnachweise

- Konzept der Nachweisführung

- Berücksichtigung der Sicherheitsanforderungen des BMU für Endlager für wärmeentwickelnde radioaktive Abfälle
- Übertragung bestehender Sicherheitsnachweis-konzepte für Streckenverschlüsse im Salinar auf Schachtverschlüsse im Salinar und im Tonstein
- Exemplarische Darstellung auf Basis der Ergebnisse der Vorhaben GENESIS und ERATO

AP 2

Sicherheitsnachweise

- Konzept der Nachweisführung

- Übernahme des Teilsicherheitskonzeptes nach Eurocode 7 (DIN EN 1997) soweit dieses anwendbar ist.
- Nachweise
 - des ausreichenden hydraulischen Widerstandes (Dichtigkeitsnachweis)
 - der Standsicherheit
 - der Dauerhaftigkeit
 - der Herstellbarkeitin Anlehnung an das Konzept in der VSG
- Der Nachweis der ausreichend geringen Permeabilität wird beispielhaft an einem Salzbetondichtelement geführt.



AP 3

Randbedingungen für die Wirtsgesteine Salz und Tonstein

- 3.1: Geomechanische Randbedingungen (TUBAF, IfBuS)
- 3.2: Charakterisierung der ALZ (DBE_{TEC})
- 3.3: Charakterisierung bestimmender Strömungs- und Transportprozesse (IBEWA, DBE_{TEC})
- 3.4: Geochemische Randbedingungen (TUBAF, IfAC)
- 3.5: Ableitung von Kenntnisdefiziten (alle)



Gewählte Referenzstandorte

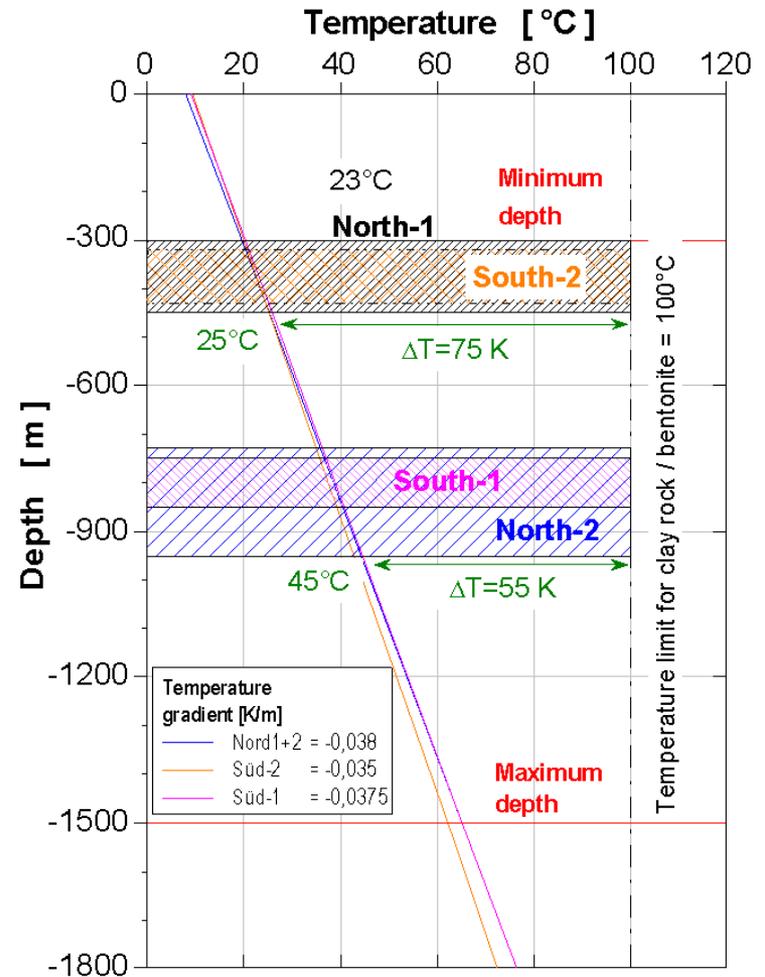
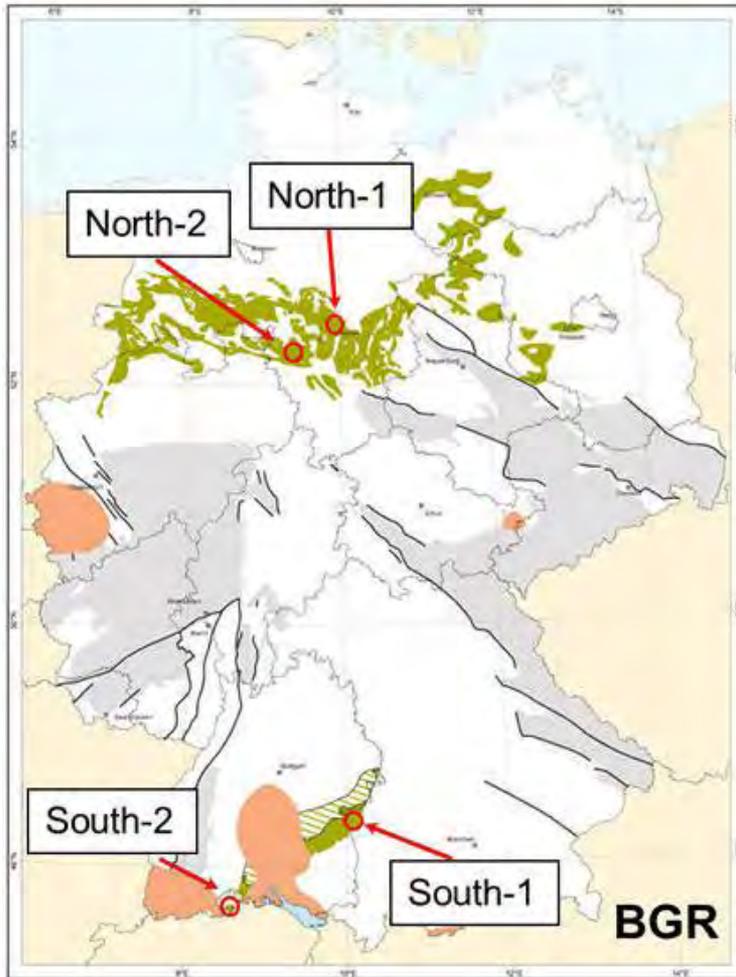
im Salz: Gorleben

im Tonstein: 4 Standorte (ERATO)

- Nord I und II**
- Süd I und II**



Modellregionen für HAW-Endlager in Tonstein



Zusammengetragene geomechanische Randbedingungen der Wirtsgesteine am Einbauort:

- Temperatur und Temperaturdifferenzen am Einbauort
- lithostatischer Druck
- Kriechverhalten (Kriechrate)
- Konvergenzverhalten im Gebirge
- Thermisches Verhalten (Wärmeleitfähigkeit, Wärmekapazität)
- Porosität (Dichte)
- Gaseindringdruck, Permeabilität
- Klüftigkeit
- Verhalten unter Luftfeuchte
- und Weitere

Mögliche anwendbare **Stoffgesetze** und ihre Parameter für die gewählten Referenzstandorte im Salz und Tonstein



Angaben aus Literatur (beispielhaft)

Eigenschaften	Parameter	Variationsbereich	Mittelwert	Einheit
Dichte und elastische Eigenschaften des Gebirges	Dichte	2,485 - 2,565	2,53	g/cm ³
	E-Modul parallel zur Schichtung	5,5 - 15,5	10,50	GPa
	E-Modul senkrecht zur Schichtung	2,5 - 7,5	5,00	GPa
	Poissonzahl		0,27	
Festigkeitseigenschaften der Schichtpakete	Spitzenreibungswinkel	21,0 - 24,6	22,80	°
	Restreibungswinkel	20,0 - 24,0	22,00	°
	Spitzenkohäsion	6,9 - 8,6	7,75	MPa
	Restkohäsion	3,5 - 4,3	3,90	MPa
	Dilatanzwinkel (Spitze und Rest)		0,00	°
	Zugfestigkeit	1,0 - 2,5	1,75	MPa
Festigkeitseigenschaften der Schichtung	Spitzenreibungswinkel	20,0 - 24,1	22	°
	Restreibungswinkel	20,0 - 22,0	21	°
	Spitzenkohäsion	1,7 - 1,9	1,80	MPa
	Restkohäsion	0,7 - 1,0	0,85	MPa
	Dilatanzwinkel (Spitze und Rest)	0 - 5,0	2,50	°
	Zugfestigkeit	0 - 1,2	0,60	MPa
Sonstige Eigenschaften des Gebirges	Porosität	9 - 13	11,00	%
	Temperatur		38,00	°C



Abgeschätzte Parameter für Standorte im Tonstein

E-Modul	Boom-Clay, Belgien: 0,2 – 0,4 GPa Opalinuston, Schweiz: 4 – 12 GPa
Einachsiale Druckfestigkeit	Boom-Clay, Belgien: 2 MPa Opalinuston, Schweiz: 10 – 16 MPa
Kohäsion	Boom-Clay, Belgien: 100 kPa Opalinuston, Schweiz: 2,2 – 5,5 MPa (abhängig von σ_1)
Kriechverhalten	(Visko-)elasto – plastische Stoffgesetze
Wärmeleitfähigkeit	Boom-Clay, Belgien: ca. 1,5 W/m*K Opalinuston, Schweiz: ca. 0,8 – 1,9 W/m*K



Kenntnisstand der Parameter

Salz (Gorleben)

- Teufenlage des Einlagerungsbereiches
- lithostatische Druckverhältnisse im Bereich eines Dichtelementes sind ableitbar
- Geologie inkl. Stratigraphie
- Stoffgesetze für das viskoplastische Materialverhalten für Salz im allgemeinen, sowie speziell mit Bezug auf den Referenzstandort

Tonstein

- Teufenlage möglicher Einlagerungsbereiche
- Lithostatische Druckverhältnisse im Bereich eines Dichtelementes nur abschätzbar
- mögliche Wertebereiche der geomechanischen Parameter

Tonstein

- Detaillierte geologische und geomechanische Informationen der Wirts- und der Deckschichten nicht vorhanden
- mögliche anwendbare Stoffgesetze zur Berechnung des viskoplastischen Verhaltens noch nicht verifiziert



Defizite

Salz

- bislang nur 1 Großversuch – Salzdetfurth
- Alle bekannten Funktionselemente von Verschlussystemen sind an das getestete System angelehnt – Forschung und Entwicklung zur Weiter- und Neuentwicklung von Systemelementen

Tonstein

- Bezgl. geomech. Parameter derzeit nur Abschätzungen
- Entwicklung und vor allem Prüfung der Materialmodelle für Tonstein (Benchmarkrechnung)
- Tonsteine zeigen deutlichere Anisotropien im Vergleich zu Salzgestein. Entwicklung zerstörungsfreier Messmethoden (Ermöglichung der Messung vor Ort) und Kalibrierung dieser ist notwendig.

Salz & Tonstein

- Festlegung von geomechanischen Parametern, welche für den Einbauort von Dicht- und Stützelementen für Schachtverschlüsse ermittelt werden müssen

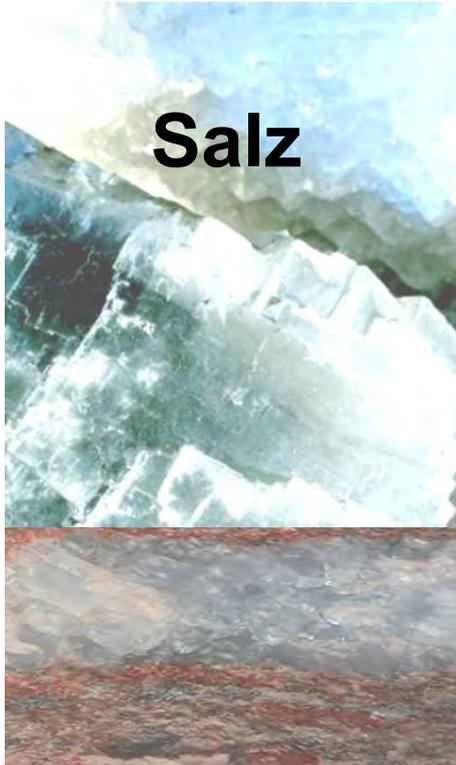


AP 3.2 und 3.3: ALZ, Strömungs- und Transportprozesse

- Vorauswahl in Abhängigkeit von geologischen Bedingungen (Heterogenität) und bergtechnische Gegebenheiten (Ausbausituation), Bemusterung hinter Ausbau
- geologische, geotechnische und strömungstechnische Charakterisierung der ALZ und des Gebirges,
- Parameterfestlegung einschl. Streubereichen (Porosität, Porendruckverteilung, Porengrößenverteilung, Sättigungsgrad usw. ggf. druck- und zeitabhängig)
- Zusammensetzung und rheologische Eigenschaften der angreifenden Fluide und der eingesetzten Materialien (Bentonit, Sorelbeton, Salzbeton, Magnesiabeton, Bitumen usw.),
- Ableitung eines Methoden- und Parameterkataloges für die repräsentative Beprobung, Parameterbestimmungen und in situ-Untersuchungen



AP 3.4 Geochemische Randbedingungen



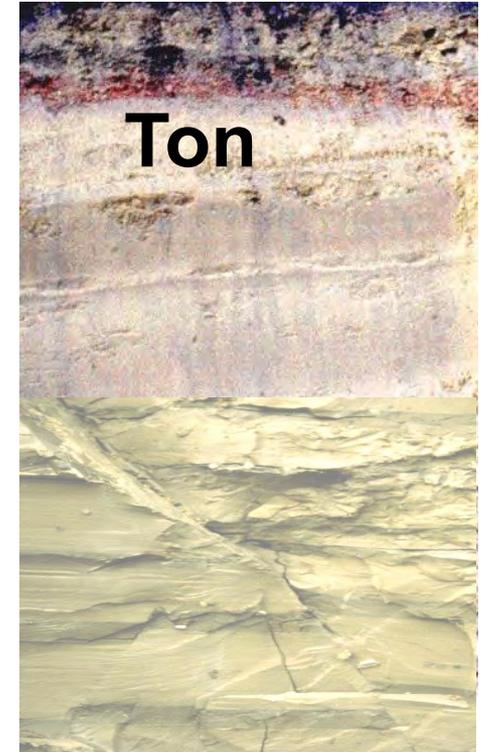
für die Wirtsgesteine

Phasenbestand

Lösungen

(Lösungsvorkommen
Zutrittslösungen
Gleichgewichtslösungen)

**Materialien
für geotechnische Barriere**

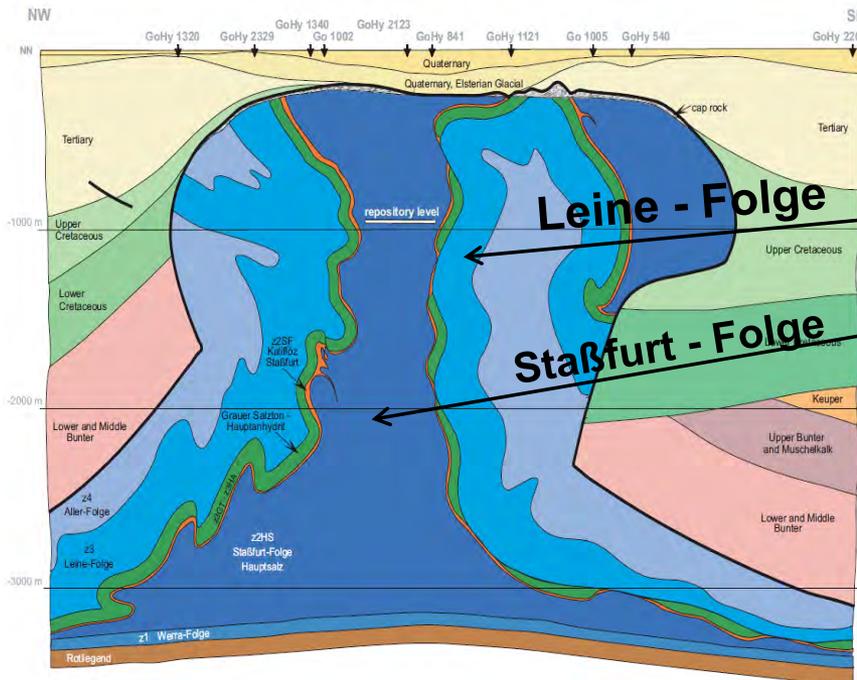


Auswahl der Schachtverschlussmaterialien so, dass der **natürliche bzw. thermodynamische Gleichgewichtszustand** zwischen **Wirtsgestein** und **geotechnischer Barriere** (Schachtverschlussmaterial) beim Bau bereits erreicht wird.

Phasenbestand Salz

Zechsteininformationen

Schnitt Salzstock Gorleben



German Zechstein Cycles		German Zechstein Lithostratigraphy		Relative Shift of Coastal Onlap		German Zechstein Sequence Stratigraphy				
KULICK and PAUL (1987), SÄGNDL (1979), TROSKOWSKI (1989)		KULICK and PAUL (1987), SUBKOMMISSION PERLA (1982)		Landward	Basinward	Systems Tracts	Sequences			
Late Permian	Transitional Cycle	Z8 ?	B2	Upper "Brocksalchtafer"			HST			
	Mölin	Z7	B1	A7r	Lower "Brocksalchtafer"		LSB			
			Basal Anhydrite Main Salt							
	Friesland	Z6	Na6	Na7	Friesland Salt			ZS8		
			Friesland Anhydrite Friesland Clay							
	Ohre	Z5	Na5	Na7	Ohre Salt			LSB	ZS8	
			Ohre Anhydrite Ohre Clay							
	Aller	Z4	A4r		Boundary Anhydrite			MSB	ZSB8	
			A4		Aller Salt					ZS7
			T4		Pegmatite Anhydrite Red Salt Clay					
	Leine	Z3	Na3		Leine Salt			LSB	ZSB7	
			A3		Main Anhydrite					ZS6
	Stassfurt	Z2	Ca3		Platy Dolomite			MSB	ZSB6	
			T3		Gray Salt Clay					ZS5
			A2r		Banded Ceiling Anhydrite					
			Na2		Stassfurt Salt					MSB
	Werra	Z1	A2		Basal Anhydrite			LSB	ZSB4	
			Ca2		Stassfurt Carbonate					MSB
A1r			Upper Werra Salt		LSB	ZS2				
		Na1		Lower Werra Anhydrite				MSB	ZSB2	
		Ca1		Zechstein Limestone		LSB	ZS1			
		T1		Copper Shale ("Mutterlöß" Carbonate)				MSB	ZSB1	
		(T1)Ca				LSB	ZSB1			
		Z1C		Zechstein Conglomerate						
Early Permian		Rotliegendes		Late Carboniferous						

Stratigraphie des deutschen Zechstein (Lithostratigraphie vereinfacht nach Richter-Bernburg, 1987), Sequenzstratigraphie (ZS5-ZS7 vgl. Tucker 1991).

BGR 2008
ISBN 978-3-9813373-6-5

Phasenbestand Salz Gorleben

- möglichst reine Steinsalzhorizonte für Endlager !

Steinsalzbereiche mit großen Mächtigkeiten
stellen die Staßfurt-Folge (Na 2) und die Leine-Folge (Na 3) dar

Zusammensetzung des Staßfurt- und Leine-Steinsalzes am Beispiel Gorleben /MÜL1985/, /BOR1987/:

Folge	Untergliederung		Mineralbestand und Gehalte (Gew.-%)				
		alte Symbole	neue Symbole	Halit	Anhydrit	Polyhalit	Carnallit
Zechstein 3 Leine-Folge Z3	Anhydritmittelsalz	Na 3	z3AM	x	x		x
	Buntes Salz		z3BT	x	x	x	
	Bänder- u. Banksalz		z3BD/BK	97,1	0,4	2,0	0,5
	Orangesalz		z3OS	94,4	5,0	0,5	<0,1
	Liniensalz		z3LS				
	Basissalz		z3BS				
Zechstein 2 Staßfurt-Folge Z2	Hangendensalz	Na 2	z2HG	95,0	4,9	0,1	-
	Hauptsalz		z2HS				
	Basissalz		z2BS				

/BORN1987/

Bornemann, D.; Fischbeck, R.; Exkursionsführer I Zechstein 87, Internationales Symposium Kassel – Hannover, Exkursion K, 08.05.1987, Auszug: Zechstein 2-4 des Salzstocks Gorleben

/MÜLL1985/

Müller-Schmitz, S. (1985): Mineralogisch-petrographische und geochemische Untersuchungen an Salzgesteinen Staßfurt-, Leine und Aller-Serie im Salzstock Gorleben, Dissertation Universität Heidelberg

der

Mögliche Materialien für geotechnische Barriere im Salz

- **Salzgrus und Steinsalzformsteine**
- **Bentonit bzw. Tone**
- **Basaltschotter**
- **Bitumen und Asphalt**
- **MgO-Baustoff**
- **Salzbeton**
- **Steinsalz-Anhydrit-Baustoff**



Mögliche Materialien für geotechnische Barrieren im Salz und deren Langzeitstabilität (1)

Salzgrus und Steinsalzformsteine ✓

sind Bestandteil des thermodynamischen Salz-Lösungs-Gleichgewichts

Bentonit bzw. Tone ✓

Bentonit ist Gemisch aus verschiedenen Tonmineralien mit Hauptphase Montmorillonit, Nebenbestandteile: Glimmer, Feldspat, Quarz, Calcit und Pyrit

Tonminerale sind Schichtsilikate

In Kontakt mit Salzlösungen bleibt Bentonit stabil, wenn keine hohen Temperaturen ($> \sim 80^\circ\text{C}$) erreicht werden, bei welchen Mineralumwandlungen stattfinden können.

Bentonit ist ein natürlich vorkommendes, weltweit verbreitetes Material, u.a. marinen Ursprungs (Na^+ in Zwischengitterschichten, z.B. Keide-Bentonite aus Wyoming).

Befunde von natürlichen Bentonitlagerstätten sowie zahlreiche Veröffentlichungen zu Bildungsbedingungen von Bentoniten bestätigen, dass Bentonite durch Umwandlung vulkanischer Sedimente in salinärer Umgebung entstehen und dort auch über geologische Zeiträume stabile Vorkommen aufweisen (Lago-Pellegrini Lagerstätte in Nord-Patagonien ist u.a. Bsp. für ein **natürliches Analoga**).

Mögliche Materialien für geotechnische Barrieren im Salz und deren Langzeitstabilität (2)

Basaltschotter



Langzeitbeständigkeit durch natürliches Analoga belegt
(Basaltintrusionen im Werra-Kali-Revier seit geologischen Zeiten ohne Veränderungen)

Bitumen (bzw. Asphalt)



Synthetisches und auch natürlich vorkommendes Gemisch aus hochmolekularen aliphatischen und aromatischen Kohlenwasserstoffen

Befunde der natürlichen Vorkommen, insbesondere der Entstehung und dem stabilen Verbleib in Kontakt mit Salzwasser lassen auf Beständigkeit über geologische Zeiträume schließen (Asphaltsee von Trinidad, Pechsee von Bermudez, Asphaltvorkommen im südlichen Teil des Toten Meeres – Tal von Siddim, Israel).



Mögliche Materialien für geotechnische Barrieren im Salz und deren Langzeitstabilität (3)

Salzbeton (x) mit temporärer Beständigkeitanforderungen

Bindemittelphasen des Salzbetons [Calciumsilikat-Hydrat-Phasen (CSH-Phasen)] stehen nicht im thermodynamischen Gleichgewicht mit dem Salzgebirge und dessen Gleichgewichtslösungen.

Zeit bis zur Zersetzung im Fall eines Lösungsangriffs wurde bisher aus Modellrechnungen (Transportmodelle) abgeleitet /Schmidt-Doehl2009/ und hängt im Einzelfall von der Permeabilität des Baustoffs selbst ab. Ist diese entsprechend gering ($k = 10^{-18} \text{ m}^2$), wird eine hinreichende Langzeitbeständigkeit für einen bestimmten Betrachtungszeitraum prognostiziert werden.

Steinsalz-Anhydrit-Baustoff

In Steinsalz-Anhydrit-Baustoffen /Mischo2002/, /Kühn2004/, /Langefeld2005/ stellt das Calciumsulfat-Dihydrat (Gips) die Bindemittelphase dar – steht nicht im Gleichgewichtsphase mit dem Salinar und dessen Lösungen.



Phasenbestand im Ton/Tonstein

Tongesteine weisen eine große Bandbreite in ihrer mineralogischen Zusammensetzung auf. Je nach Gesteinstyp existieren

- ⇒ **Boom-Formation, Belgien**
- ⇒ **Opalinus-Ton, Schweiz**
Callovo-Oxford-Ton, Frankreich
Oxford-Ton, Großbritannien
Boda-Ton, Ungarn
Mizunami-Ton, Japan

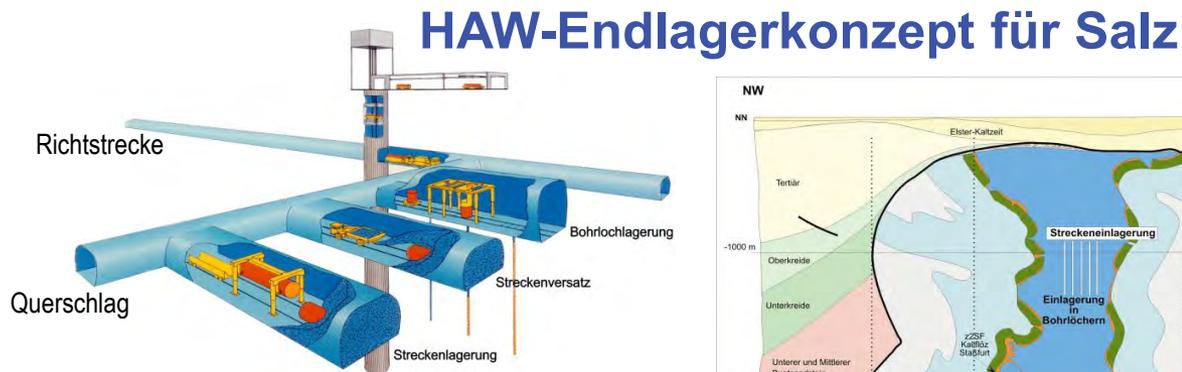
Tongesteinstypen mit unterschiedlichen Wassergehalten.

(siehe auch “Clay Club Catalogue” – eine Zusammenstellung der verschiedenen Tonformationen)



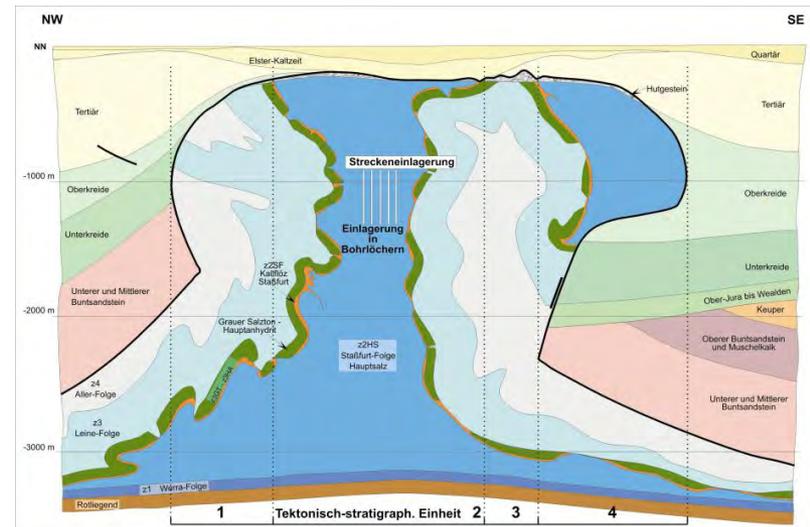
AP 4

Anforderungen an Schachtverschlüsse für HAW-Endlager



Referenzkonzept für HAW-Endlager in Salz:

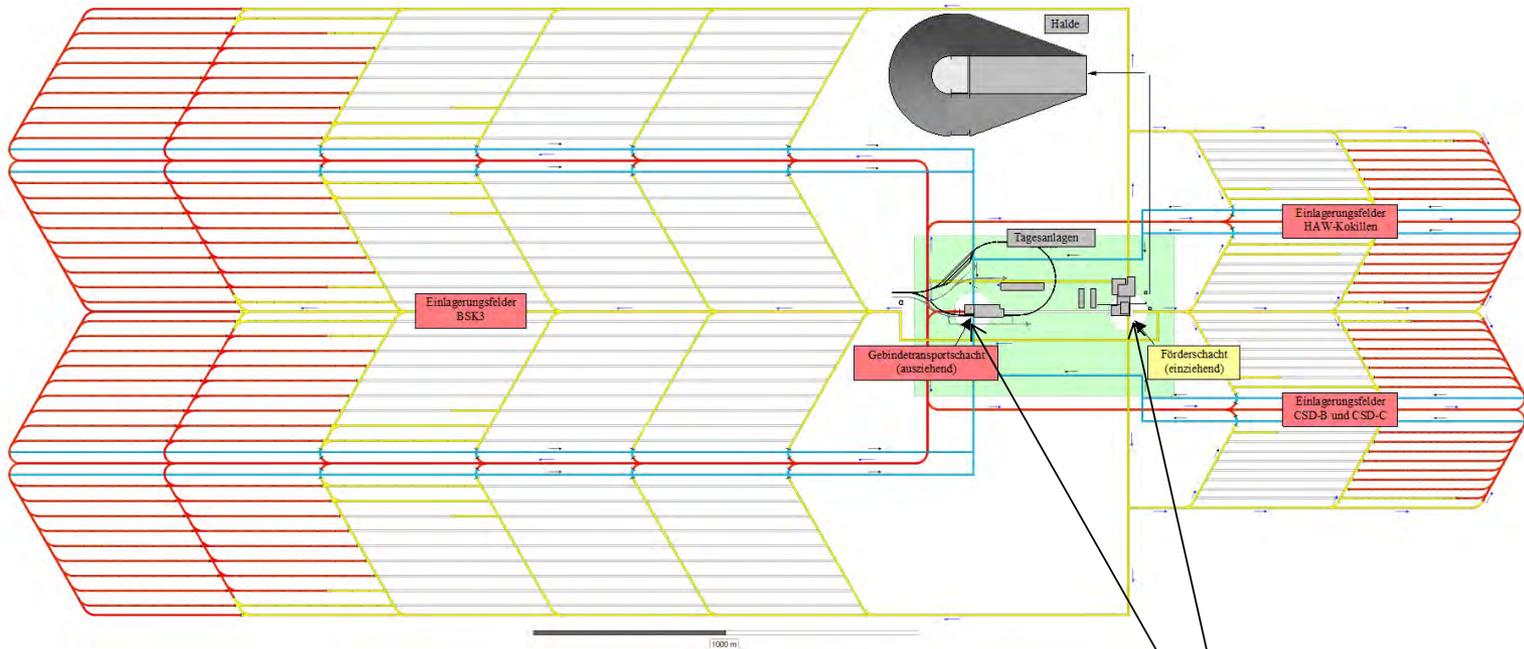
- Tiefe geologische Endlagerung (Teufe: 870 m)
- Einlagerung von HAW-Kokillen in Bohrlöchern
- Einlagerung von POLLUX-Behältern in Strecken
- Versatzmaterial: Salzgrus



Projektion des Referenzkonzeptes in vereinfacht dargestellte Geologie des Salzstockes Gorleben



HAW-Endlagerkonzept für Tonstein



Vollständiges Grubengebäude mit Einlagerungsfelder für:

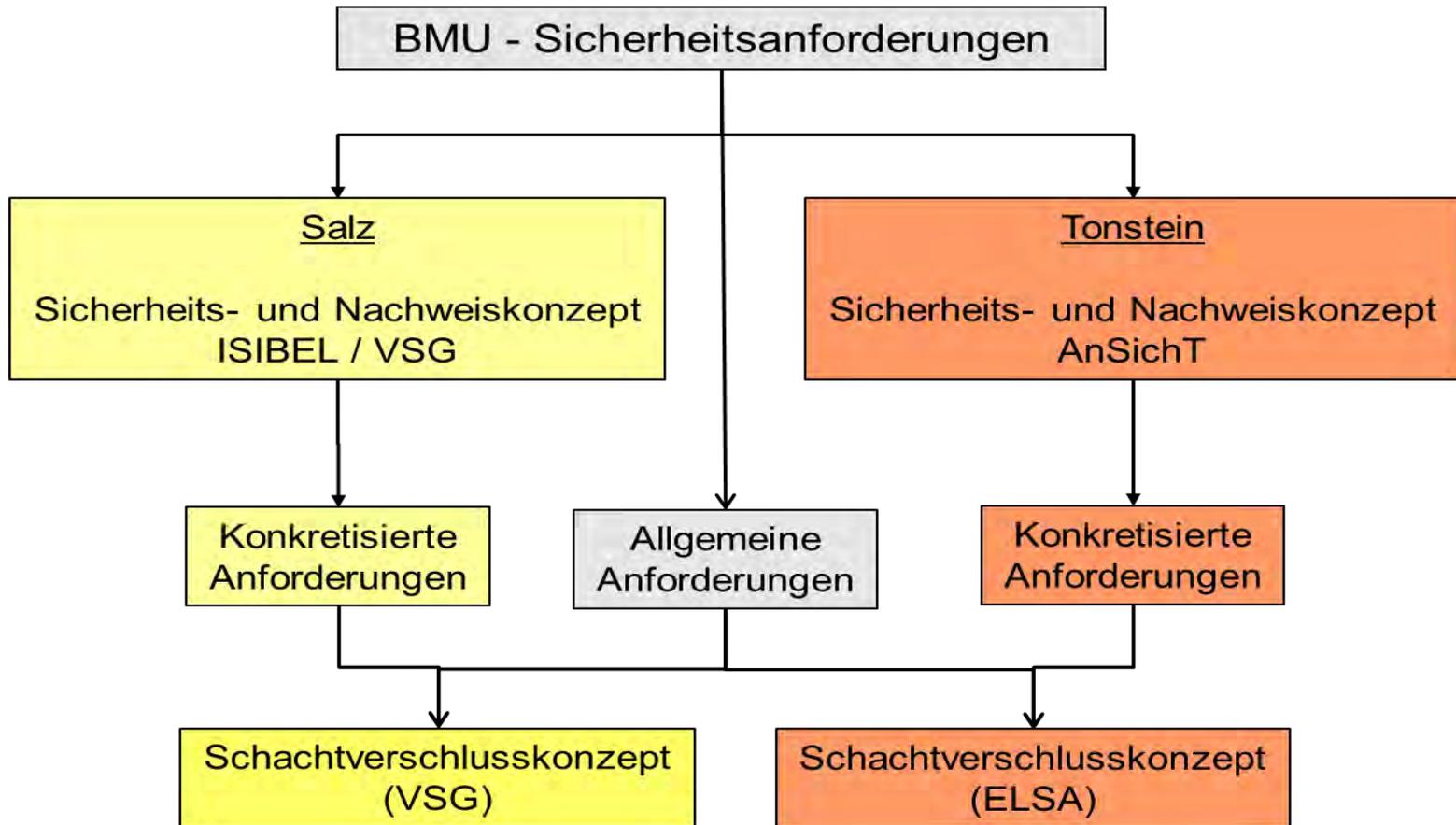
- ausgediente Brennelemente (linker Flügel) und
- Wiederaufarbeitungsabfälle (rechter Flügel)

Tagesschächte
für **Frischwetter**
Gebindetransport

(Quelle: M. Pöhler/Bollingerfehr)



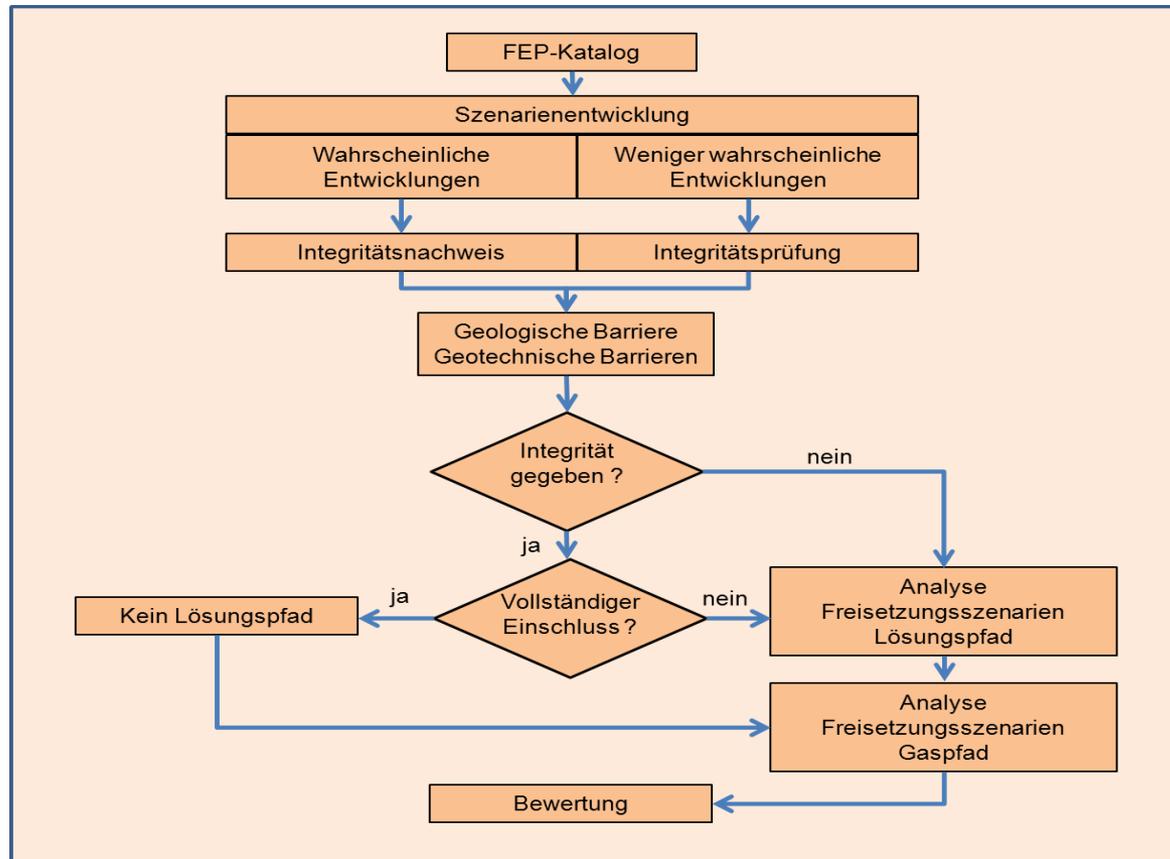
Herleitung der Anforderungen für Schachtverschlüsse



(Quelle: M. Jobmann, et.al.)



Sicherheitsbewertung am Salzstandort



Strukturelles Vorgehen zur Sicherheitsbewertung am Salzstandort

In ähnlicher Weise auch für Tonstandort angebar.

(Quelle: Jobmann)



Anforderungen an Schachtverschlüsse leiten sich ab aus:

- BMU-Sicherheitsanforderungen
- Sicherheits- und Nachweiskonzept
- Technischen Funktionsnachweisen
- Standortspezifischen Randbedingungen und
- Sonstigen Vorgaben



Anforderungen aus BMU-Sicherheitsanforderungen

Quelle	Anforderung	Steinsalz	Tonstein
Sicherheitsanforderungen (BMU-2010)	<ul style="list-style-type: none"> • Prozessanalyse der Einwirkungen auf Schachtverschluss. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Falls Komponenten des Schachtverschlusses im ewG liegen, so müssen in den Komponenten ablaufende Transportprozesse in ihrer Geschwindigkeit mit diffusiven Transportprozessen vergleichbar sein (ausreichend geringe Durchlässigkeit). 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Quelldrücke von Dichtelementen dürfen die Gebirgsfestigkeit nicht überschreiten. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Falls für geotechnische Barrieren keine anerkannten Regeln der Technik vorliegen, muss deren Herstellung, Errichtung und Funktion grundsätzlich unter Anwendung von Qualitätssicherung erprobt sein. (Kann entfallen, falls die Robustheit anderweitig nachgewiesen werden kann oder falls ausreichend Sicherheitsreserven bestehen.) 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Zum Nachweis der Bauwerksintegrität sind die maßgeblichen Beanspruchungszustände und Eigenschaften der Baustoffe zu untersuchen. Die hinreichende Belastbarkeit und Alterungsbeständigkeit dieser Baustoffe ist für den Zeitraum nachzuweisen, für den die Funktionstüchtigkeit der Bauwerke gegeben sein muss. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Soweit notwendig müssen sofort wirksame Barrieren den Einschluss der Abfälle für den Zeitraum übernehmen, in dem die volle Wirksamkeit der langfristig wirksamen Barrieren noch nicht gegeben ist. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Eventuelle Anforderungen aus einer Analyse von Freisetzungsszenarien sind zu identifizieren und zu berücksichtigen. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Innerhalb des Schachtverschlusses soll möglichst Redundanz und Diversität berücksichtigt werden z.B. durch Verwendung mehrerer Dichtelemente mit diversitären Materialien. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Der Schachtverschluss ist in seiner Bedeutung für die Sicherheit des Endlagers im Zusammenspiel mit den anderen Barrieren (z. B. Streckenverschlüsse) zu bewerten (z. B. für die Festlegung des Wirkungszeitraums). 	X	X



Anforderungen aus Sicherheits- und Nachweiskonzept

Quelle	Anforderung	Steinsalz	Tonstein
Sicherheits- und Nachweiskonzepte	<ul style="list-style-type: none"> Maximaler Wirkungszeitraum 50.000 Jahre (nächste Eiszeit). <i>Einschränkung über Verschlusskonzept (Steinsalz):</i> Der Schachtverschluss muss solange hinreichend dicht sein, bis der hydraulische Widerstand des kompaktierenden Salzgrusversatzes groß genug ist. (1000 Jahre nach aktuellen Abschätzungen). Daraus resultiert die hydraulische Anforderung, dass der sich einstellende Volumenstrom so gering sein muss, dass die zutretende Lösung den Salzgrusversatz in den Zugangsstrecken erst nach (hier) 1000 Jahren erreicht. 	X	-
	<ul style="list-style-type: none"> Maximaler Wirkungszeitraum 50.000 Jahre (nächste Eiszeit). <i>Einschränkung über Verschlusskonzept (Tonstein):</i> noch offen. 	-	X
	<ul style="list-style-type: none"> Vorbemessung des Schachtverschlusses (Dimensionierung, Eigenschaften und Nachweis der prinzipiellen Herstellbarkeit). 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Berücksichtigung einer FEP-Liste mit wahrscheinlichen und weniger wahrscheinlichen Prozessen bezüglich einer Konsequenzanalyse. Daraus eventuell resultierende Anforderungen an Funktionselemente des Schachtverschlusses sind zu berücksichtigen (ggf. iterativ optimieren). 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Unterbindung einer advektiven Lösungsbewegung aus dem Endlager bzw. aus dem ewG heraus. 	-	X
	<ul style="list-style-type: none"> Erhaltung eines stabilen geochemischen Milieus 	-	X
	<ul style="list-style-type: none"> Verwendung von Materialien mit hoher Sorptionskapazität. 	-	X



Anforderungen aus Technischen Funktionsnachweisen

Quelle	Anforderung	Steinsalz	Tonstein
Technische Funktionsnachweise	<ul style="list-style-type: none"> Die Auslegung des Verschlusssystems sollte in Anlehnung an die technischen Regelwerke DIN EN 1997-1 Eurocode 7, DIN EN 1990 Eurocode, DGGT-GDA-Empfehlungen und DAfStb Richtlinie 2004 erfolgen 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Die einzelnen Funktionselemente eines Schachtverschlusses sind so zu konfigurieren, dass gemäß dem Nachweiskonzept der Funktionsnachweis geführt werden kann. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Für den Nachweis einer ausreichenden hydraulischen Dichtheit sind nicht nur die Dichtelemente für sich zu betrachten, sondern immer im Zusammenspiel mit der Kontaktzone und der Auflockerungszone (integrale Dichtheit). 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Im Bereich von Dichtelementen ist die Auflockerungszone nachzuschneiden und bis in eine geeignete Tiefe zu entfernen . 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Wird einem Dichtelement eine sofortige Wirksamkeit im Rahmen des Verschlusskonzeptes zugeordnet, so ist der Einsatz quellfähiger Materialien vorzusehen. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Bei Verwendung von nicht kohäsiven und nicht eigentragfähigen Abdichtmaterialien ist eine setzungsarme Stützsäule vorzusehen (Setzung max. 3 % der Dichtungslänge). 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Zur Vermeidung von Erosion und Suffosion ist der Einsatz von Filterschichten am Dichtelement vorzusehen. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> Für alle Materialien muss ein vollständiger und konsistenter Datensatz zur Verfügung stehen, der das Materialverhalten bzw. seine Eigenschaften charakterisiert. 	X	X



Anforderungen aus standortspezifi. Randbedingungen

Quelle	Anforderung	Steinsalz	Tonstein
Standortspezifische Randbedingungen	<ul style="list-style-type: none"> • Durchörtert der zu verschließende Schacht Störungzonen oder Zonen, die potenziell Flüssigkeitsführend sein können, so sind diese mit Dichtelementen abzudichten. 	x	x
	<ul style="list-style-type: none"> • In Abhängigkeit von der einwirkenden Porenlösung sind die Materialien der Dichtelemente entsprechend so zu wählen, dass es zu keiner signifikanten Korrosion der Dichtelemente bei Eintreffen entsprechender Lösungen kommt. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Dichtelemente aus nicht quellfähigem Material sollten aus Einspannungsgründen so tief wie möglich im Schacht angeordnet werden. 	X	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Es ist vorzusehen, dass die Einlagerungssohle von anderen Sohlen (z. B. Erkundungssohlen) durch ein Dichtelement getrennt wird. 	x	x
	<ul style="list-style-type: none"> • Dort wo Wechsellagerungen von toniger und sandiger Fazies auftreten, sind Dichtelemente im Bereich der tonigen Fazies anzuordnen, um keine Umläufigkeiten durch die sandigen Bereich zu ermöglichen. 	-	X
	<ul style="list-style-type: none"> • Sind mehrere Grundwasserleiter vorhanden, so ist ein Kurzschluss der Grundwasserleiter durch Abdichtung zu vermeiden. 	x	x
	<ul style="list-style-type: none"> • Die Komponenten des Schachtverschlusses sind gegen den standortspezifisch maximal möglichen vertikalen Lösungsdruck zuzüglich 50m durch klimabedingte Meeresspiegelschwankungen auszulegen. 	x	x



AP 5 Einbindung internationaler Partner

Technologieplattform

AP 6 Bericht

Fertigstellung Anfang 2013



Zusammenfassung

ELSA Teil 1 stellt eine Kompendium

- des Standes der Technik zu ausgeführten und geplanten Schachtverschlüssen,
- zu Randbedingungen bei Schachtverschlüssen bei diskutierten Endlagerstandorten (GL,N1,N2, S1,S2) (mechanisch, hydraulisch, chemisch),
- zu Anforderungen,
- und abgeleiteten Kenntnisdefiziten dar.



Workshop

„Randbedingungen und Anforderungen bei Schächten für Endlager für hochradioaktive Abfälle“

am 19. September 2012 in Peine
mit ca. 65 Teilnehmern



Vielen Dank für die Aufmerksamkeit



Monitoring eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle - Möglichkeiten und Grenzen -

Michael Jobmann

DBE TECHNOLOGY GmbH, Eschenstrasse 55, 31224 Peine

Gemäß den Sicherheitsanforderungen (BMU, 2010) an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle ist der Betreiber eines Endlager in Deutschland gehalten, ein Monitoring-Programm zu installieren, das während der Betriebsphase und für einen definierten Zeitraum nach Schließung des Endlagers relevante messtechnische Informationen liefert. Im Rahmen einer Fallstudie wurde dazu eine Beurteilungsbasis erstellt, in welcher Form Informationen über den Zustand eines verschlossenen Endlagerbergwerkes technisch gewonnen werden könnten, ohne die Sicherheit der Barrieren, zum Beispiel durch Kabelführungen, zu beeinträchtigen.

Als Konzeptionsgrundlage wurde das aktuelle Sicherheitsnachweiskonzept für ein HAW-Endlager in Deutschland herangezogen (Krone et al., 2008). Die den darin genannten Nachweiskomponenten zugeordneten Schutzfunktionen stehen im Zusammenhang mit im Endlager ablaufenden physikalischen und chemischen Prozessen (FEP). Diese FEP werden als Grundlage genommen werden, um die Prozesse zu ermitteln, die die Schutzfunktionen einer Nachweiskomponente signifikant beeinflussen könnten. Für eine Beispielvariante wurden Überwachungsmöglichkeiten für diese Prozesse auf Basis von Monitoring-Modulen aufgezeigt. Zum Vergleich wurde ein Monitoring-Modul aus dem Französischen Überwachungsprogramm herangezogen, mit dem die dauerhafte Funktionstüchtigkeit des Bohrlochliners überwacht wird.

Ein entscheidender Punkt bei der Frage der Überwachung von Prozessen innerhalb des untertägigen Endlagers, insbesondere nach dessen Verschluss, ist die Forderung, dass eine Datenübertragung per Kabel weder innerhalb der Einlagerungsbereiche und schon gar nicht aus dem Endlager nach übertage zulässig ist, da entlang von Kabeln eine Fluidbewegung nie ausgeschlossen werden kann. Für den Einsatz kabelloser Übertragungssysteme im Endlagerbereich laufen bereits erfolgversprechende Versuche in europäischen Untertagelaboratorien in Belgien (NRG et al., 2013), Frankreich, der Schweiz und in Schweden.

Bezüglich der langfristig zu sichernden autarken Stromversorgung von Messsystemen bestünde aus jetziger Sicht die Möglichkeiten thermoelektrische Isotopengeneratoren oder Betavoltaik-Batterien zu verwenden (Jobmann, 2011).

Literatur:

BMU (2010): Sicherheitsanforderungen an die Endlagerung wärmeentwickelnder radioaktiver Abfälle, Stand 30. September 2010, Berlin.

Jobmann et al. (2012): Development of a theoretical monitoring system design for a HLW repository based on the „MoDeRn Monitoring Workflow“ (A Case Study), WM2012, Phoenix, USA.

Krone et al. (2008): Überprüfung und Bewertung des Instrumentariums für eine sicherheitliche Bewertung von Endlagern für HAW, ISIBEL

NRG et al. (2013): Hades monitoring demonstrator, Technical Report, EC-Project MoDeRn, Deliverable D-3.4.1 (in preparation).

Monitoring eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle

- Möglichkeiten und Grenzen -

- **MonA** -

- **MoDeRn** -

Laufzeit: 01.01.2009 – 31.10.2013

Michael Jobmann

DBE TECHNOLOGY GmbH

Die Arbeiten werden im Auftrag des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi) unter dem Förderkennzeichen 02E10639 durchgeführt.

Monitoring

Endlagerüberwachung
(Monitoring)



Phase nach dem Verschluss des Endlagers
Phase institutioneller Kontrolle (...50 – 100 a ...)

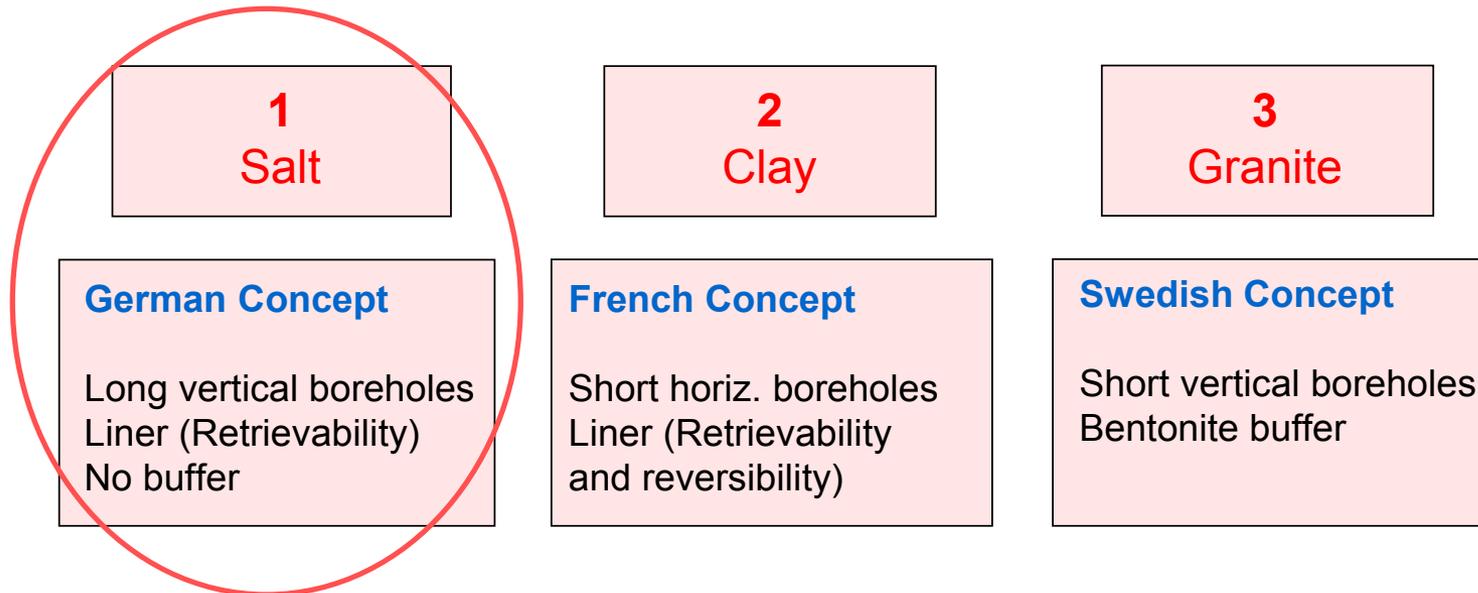
Fragen:

- Was soll technisch überwacht werden (Parameter) ?
- Was kann überhaupt technisch überwacht werden ?
- Wie könnte so ein Überwachungssystem aussehen ?

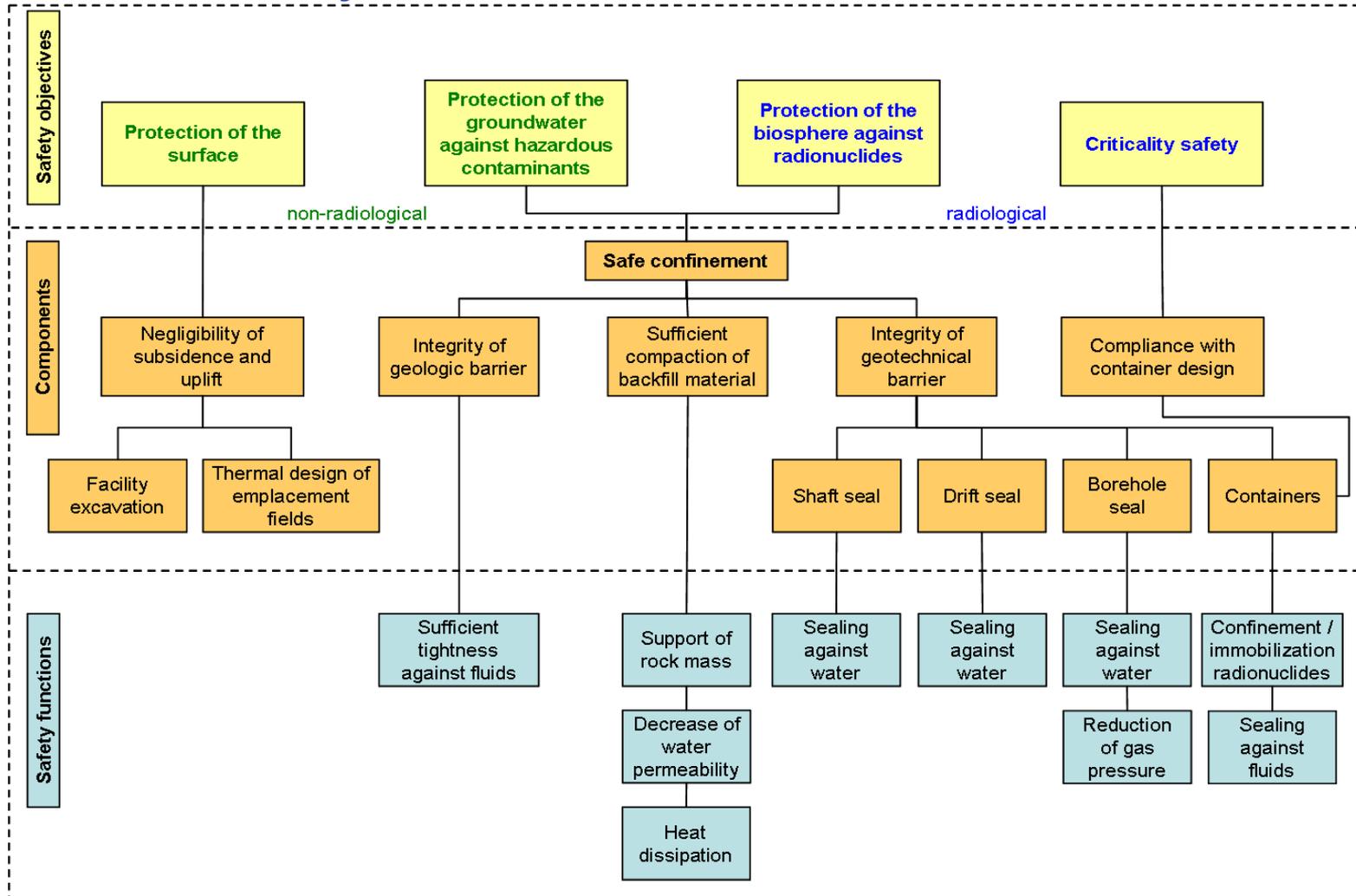


Fallstudien

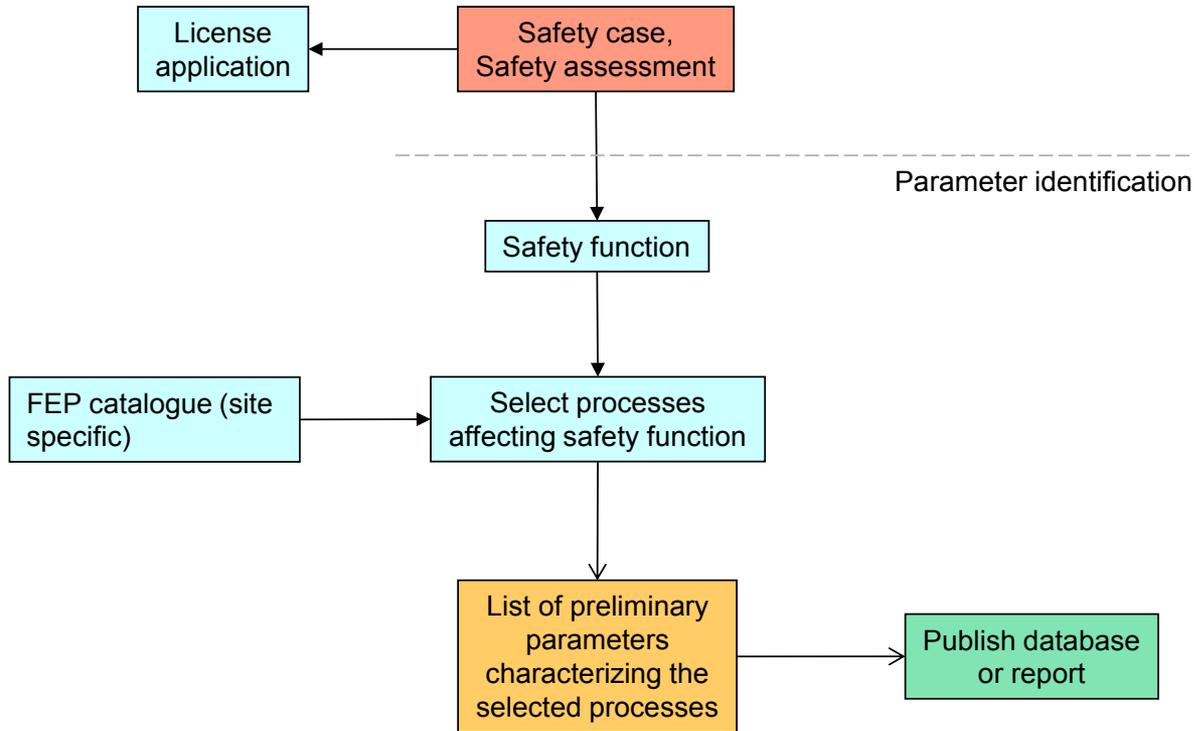
Case Study



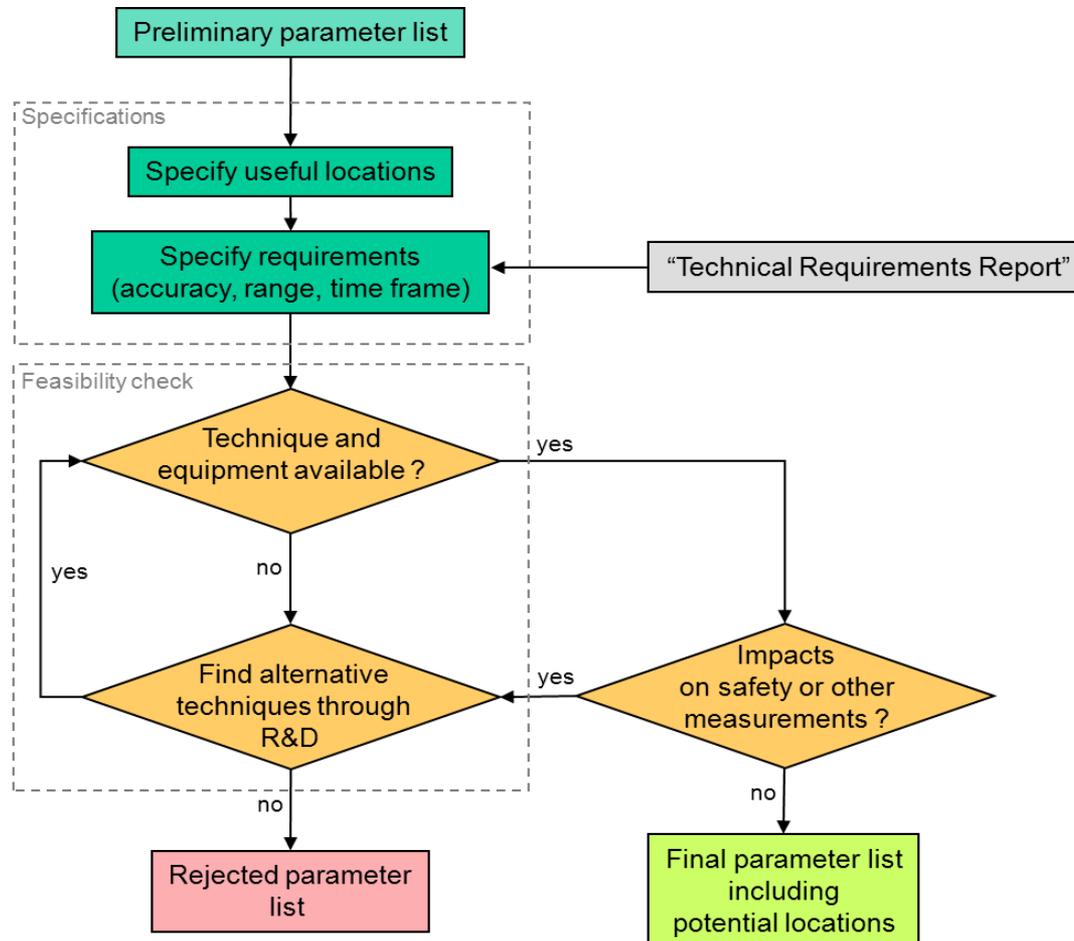
German Safety Assessment



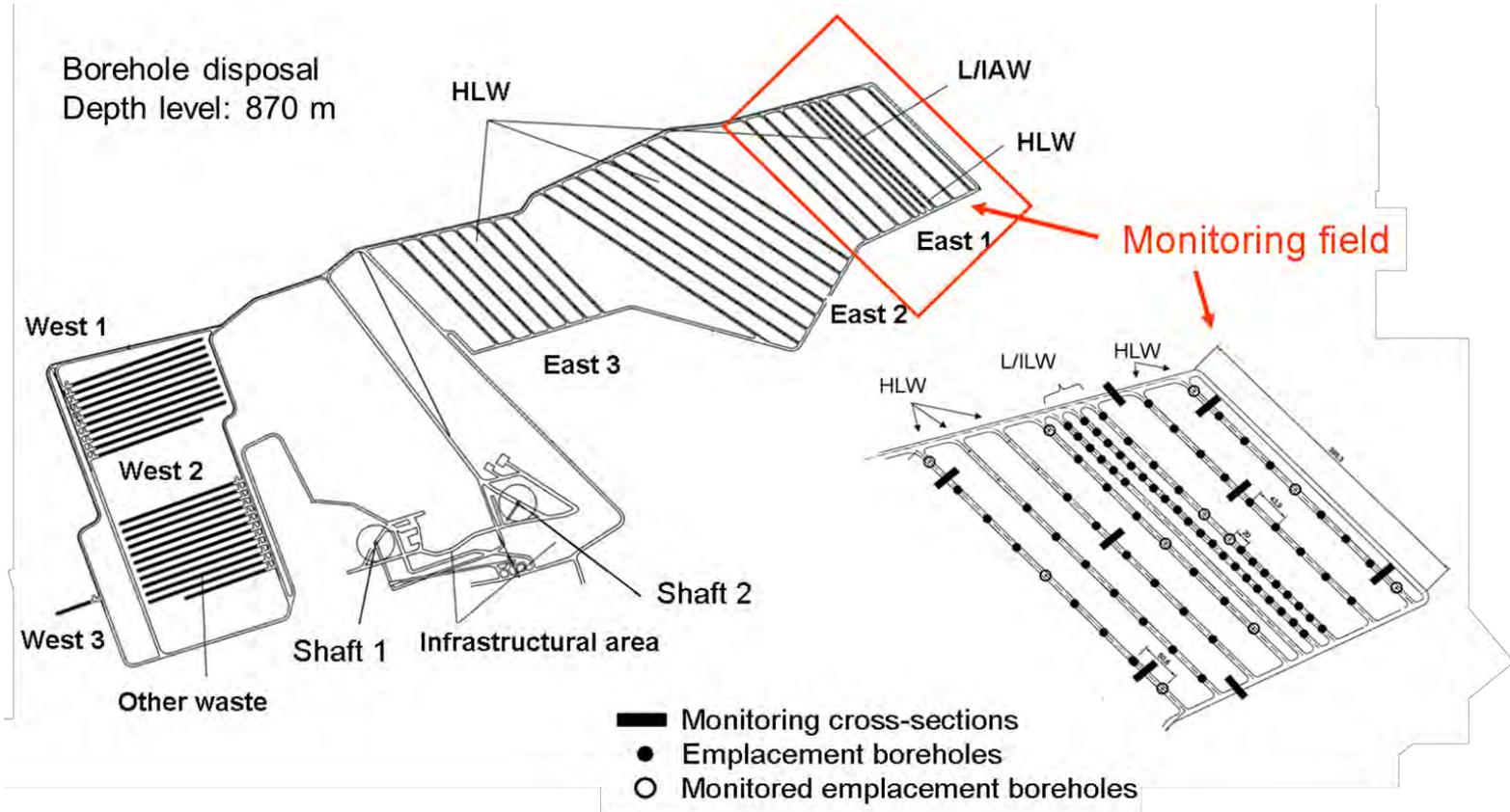
Parameter Identification



Specifications and Screening



Monitoring Location



source: Preliminary safety analysis of the Gorleben site, design dated January 2011

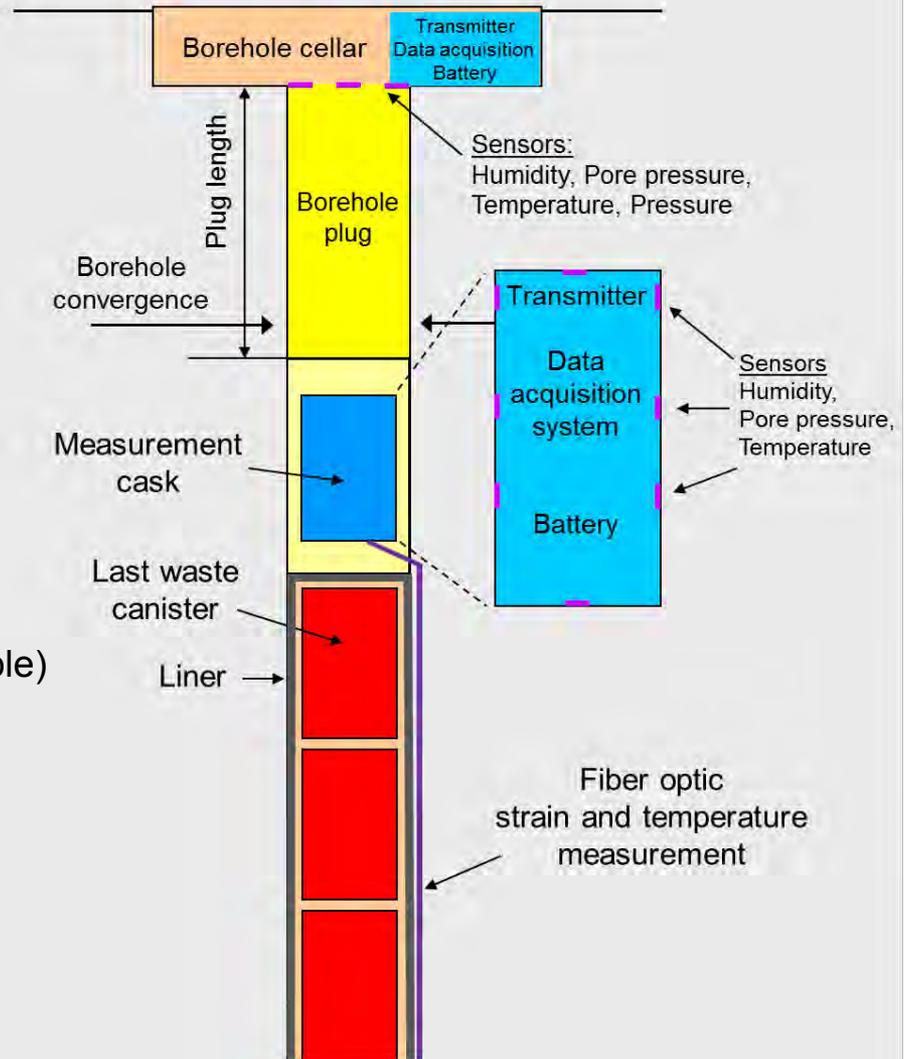
Parameters and Location

Relevant processes:

- borehole convergence
- gas pressure build up (bottom of plug)
- brine pressure build up (top of plug)
- temperature development
- liner deformation

Parameters:

- the rock displacements (not feasible)
- the borehole convergence (not feasible)
- the pore pressure, total pressure (feasible)
- the humidity (feasible)
- the temperature development (feasible)
- the strain at the liner
- the temperature at the liner

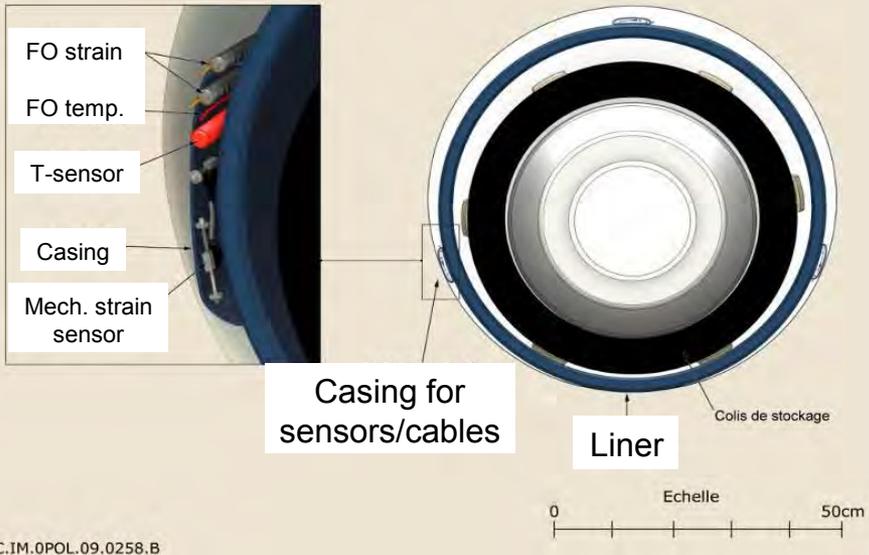


Liner Monitoring in French Concept

Source: ANDRA



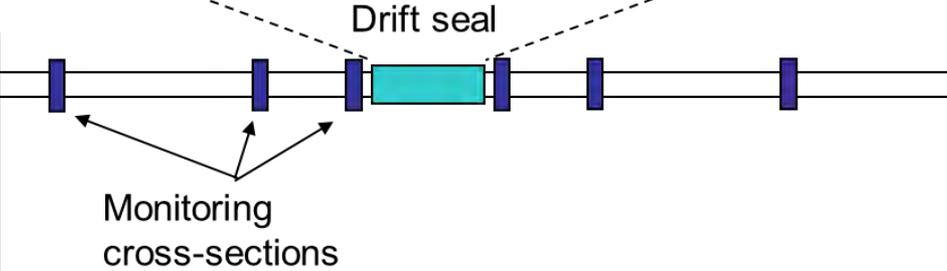
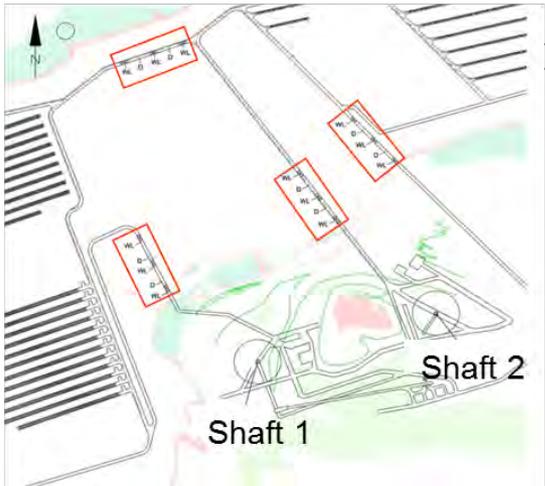
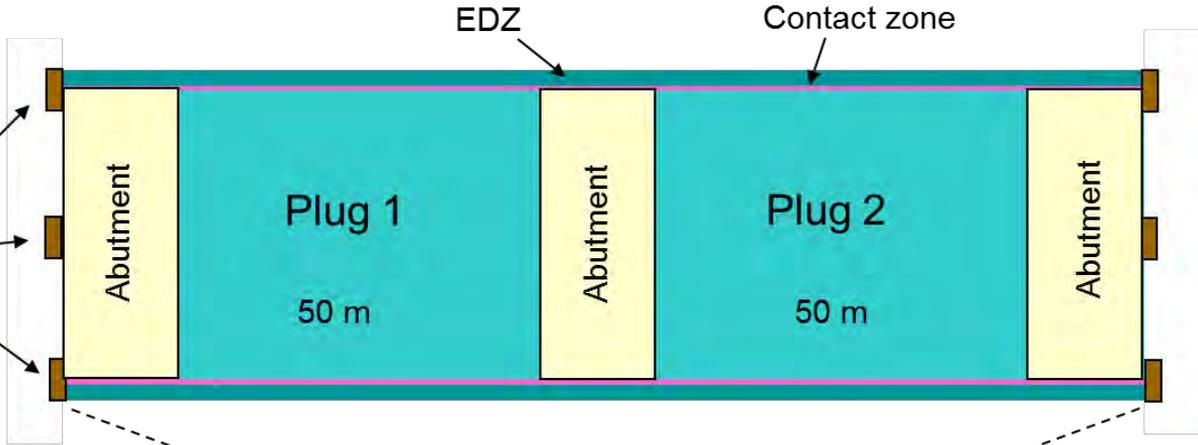
Optical fiber for distributed strain and temperature measurements



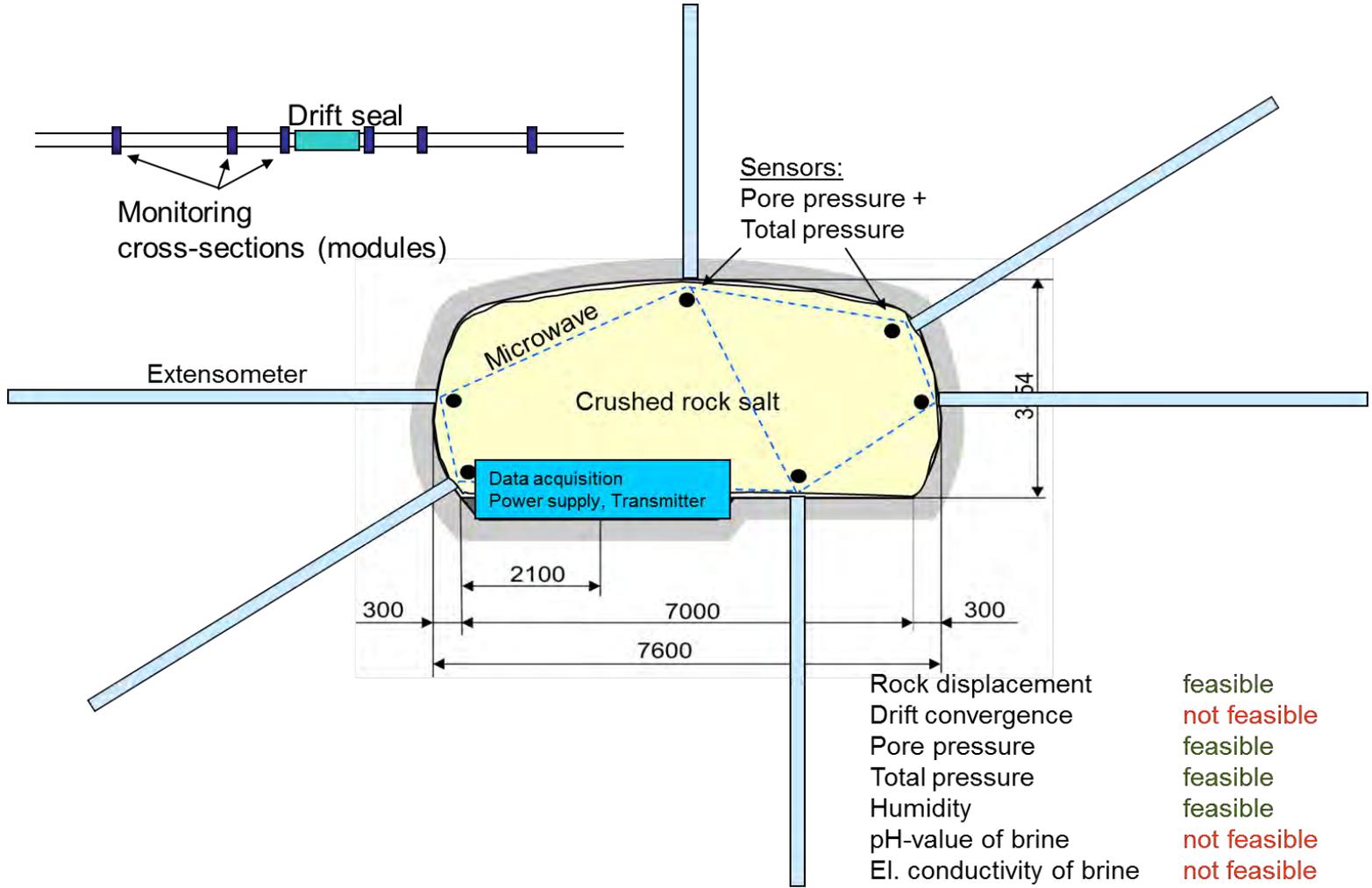
C.IM.OPOL.09.0258.B

Drift Seal Monitoring

Sensors:
 Humidity,
 Pore pressure,
 Total pressure
 (feasible)



Drift Seal and Compaction Monitoring



Monitoring Principles

Monitoring systems for the generic German concept in rock salt are assumed to be implemented by applying the following

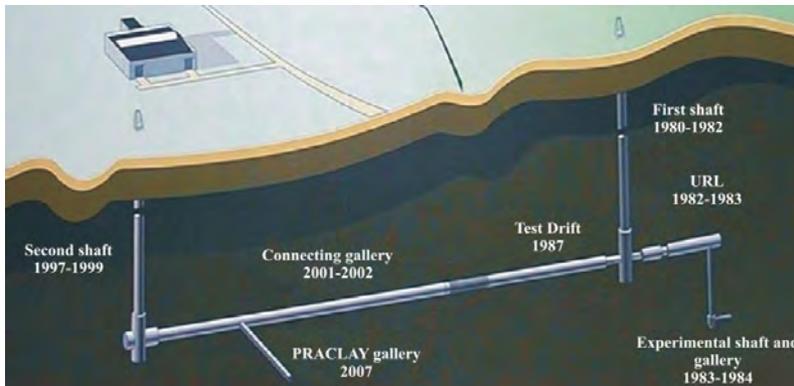
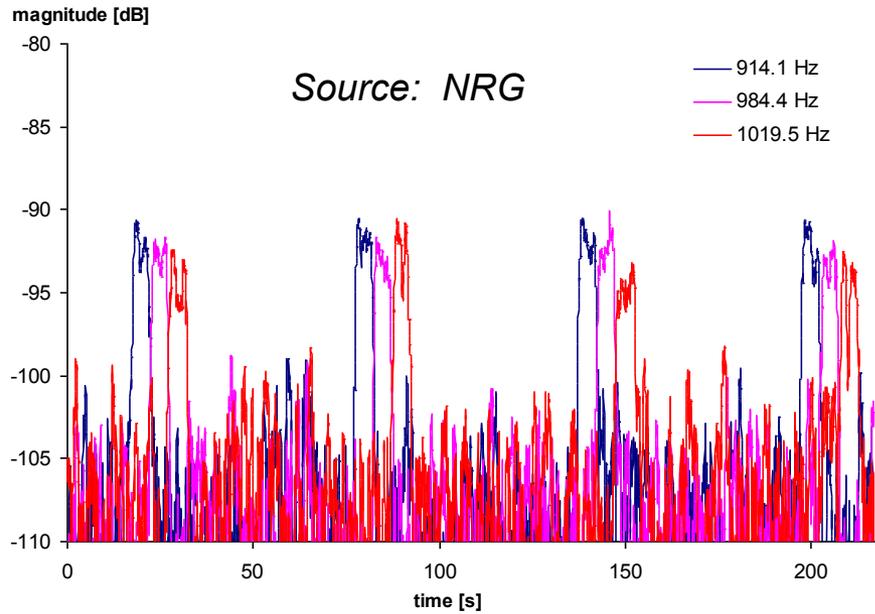
Principles

- *Preferably no installation of sensor systems within geotechnical barriers*
- *No cables running through geotechnical barriers*
- *No cables running along access drifts backfilled with compacting crushed salt*
- *No cable connection from the repository to the surface*

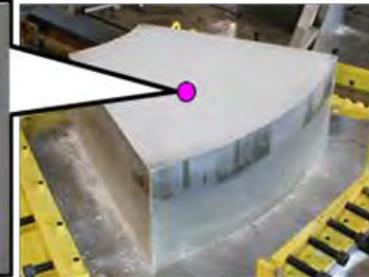
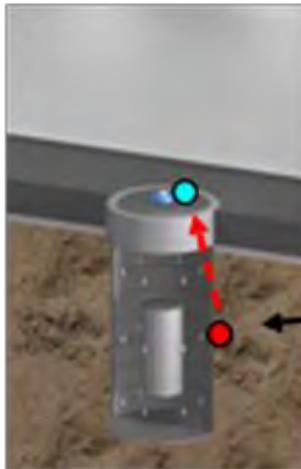
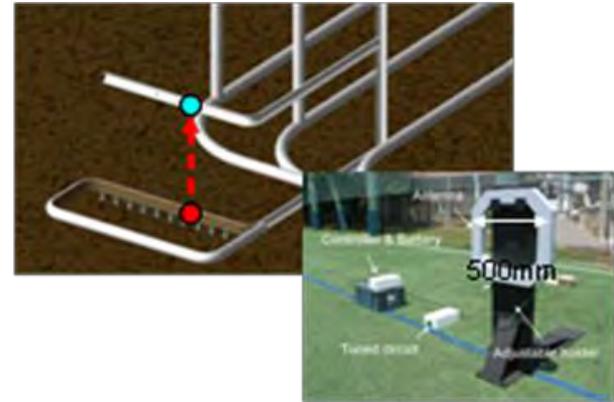
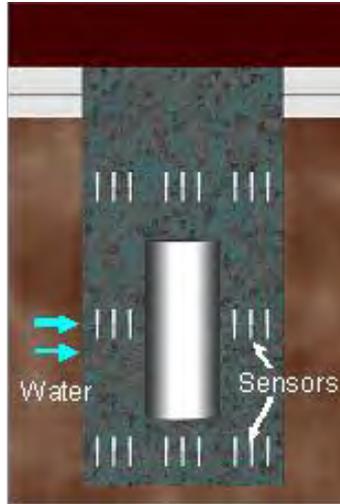
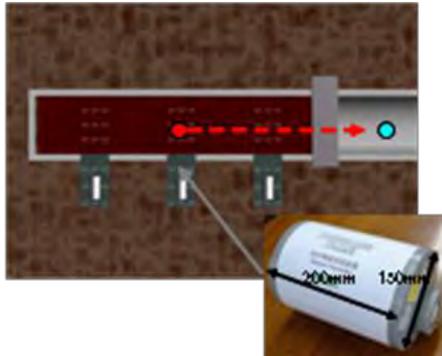


Wireless data transmission is indispensable

Wireless Data Transmission

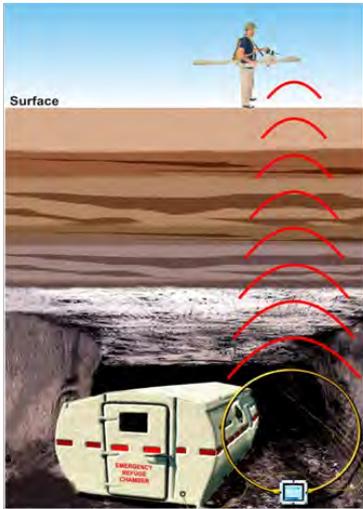


Wireless Data Transmission



Source: RWMC + Kajima Cooperation, Japan

Wireless Data Transmission

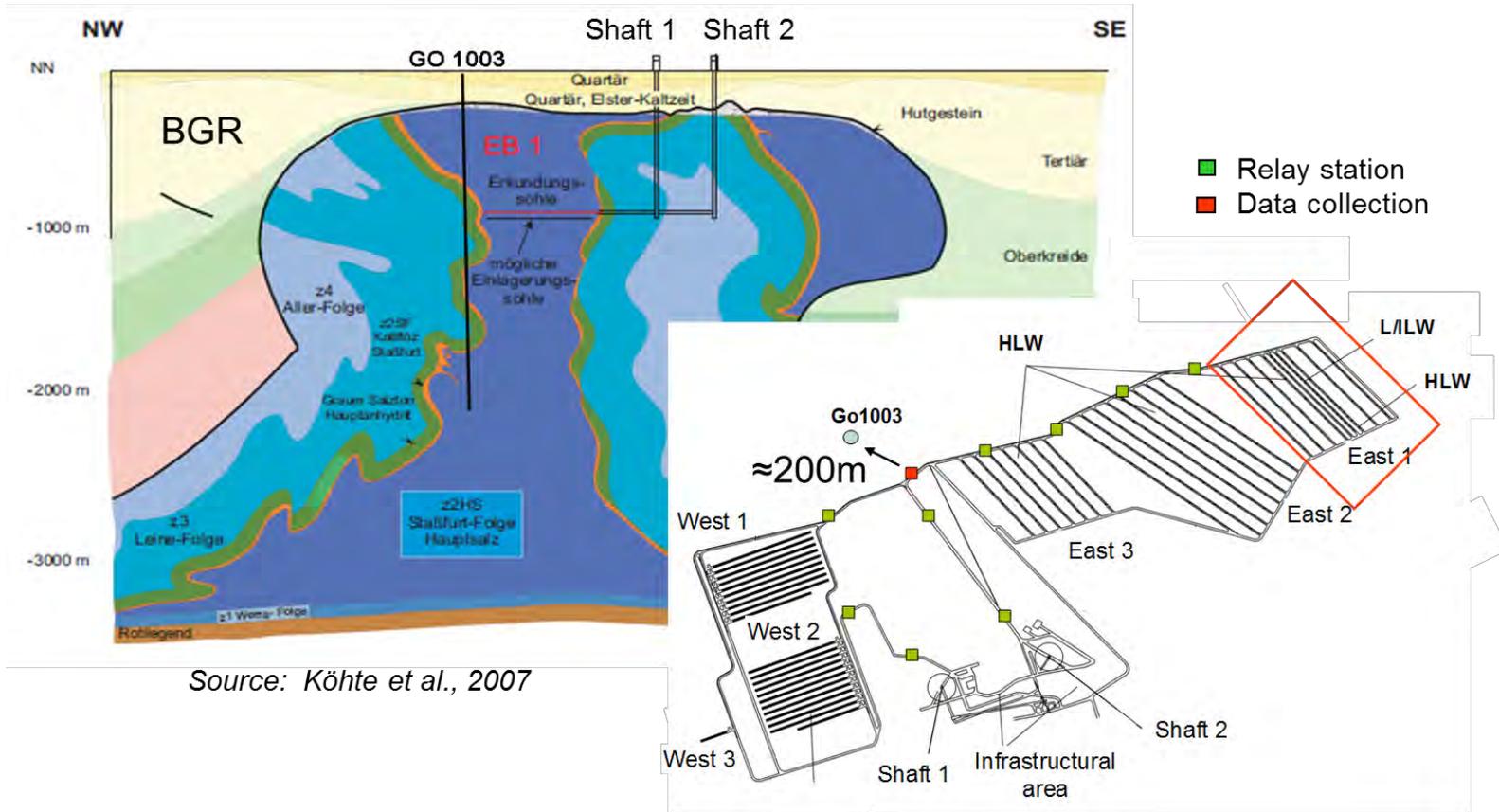


www.stolarhorizon.com

Company	Frequency-range	Operating distance	Name
Kajima Corporation, Japan	1–10 kHz (VLF)	100 – 150 m	unknown
Mine Site Technologies, Australia	ULF	> 100 m	unknown
WFS, Ireland	LF	not denoted	Terratext
Transtek, USA	4 kHz (VLF)	300 m	TeleMag
Stolarhorizon, USA	20 kHz	up to 600 m	RadCAT
Vital Alert, Canada	2–8 kHz (VLF)	180m	Canary™Talk
Lockheed Martin, USA	unknown	470 m	MagneLink MCS

Depth level at the German Gorleben site: **870 m**

Wireless Data Transmission



Source: Köhte et al., 2007

Self-sufficient Power Supply

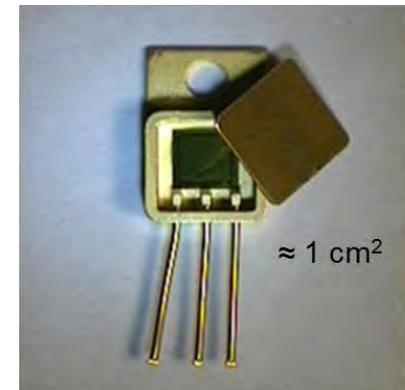
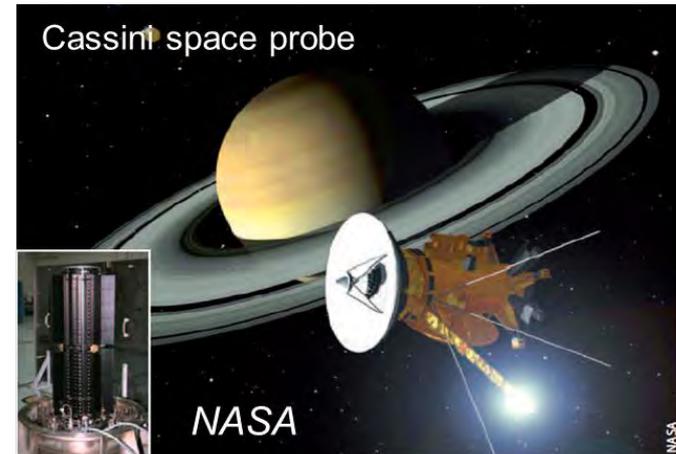
Promising principles of energy conversion:

- Radioisotope thermoelectric generator (RTG)
- Betavoltaic batteries

RTGs convert heat into electric current

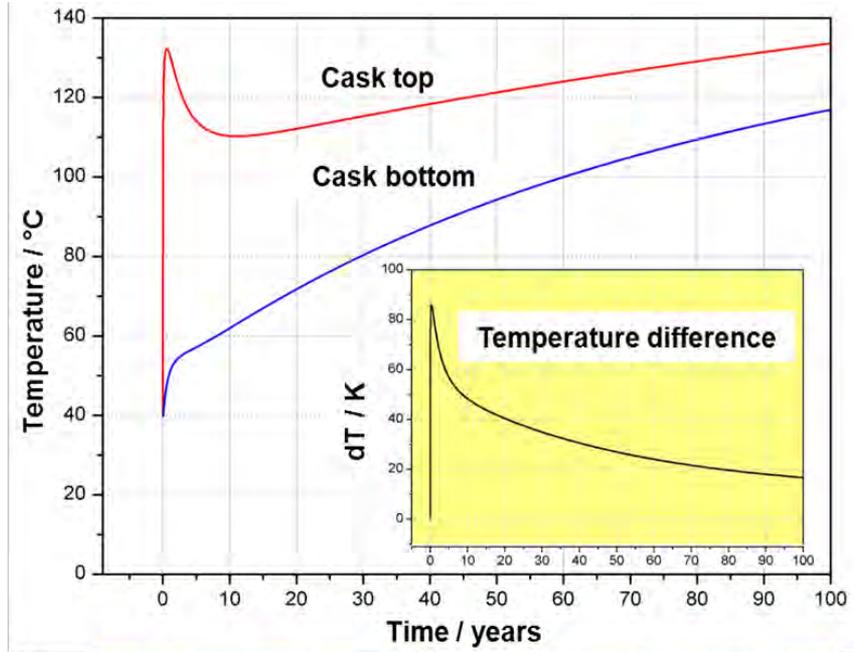
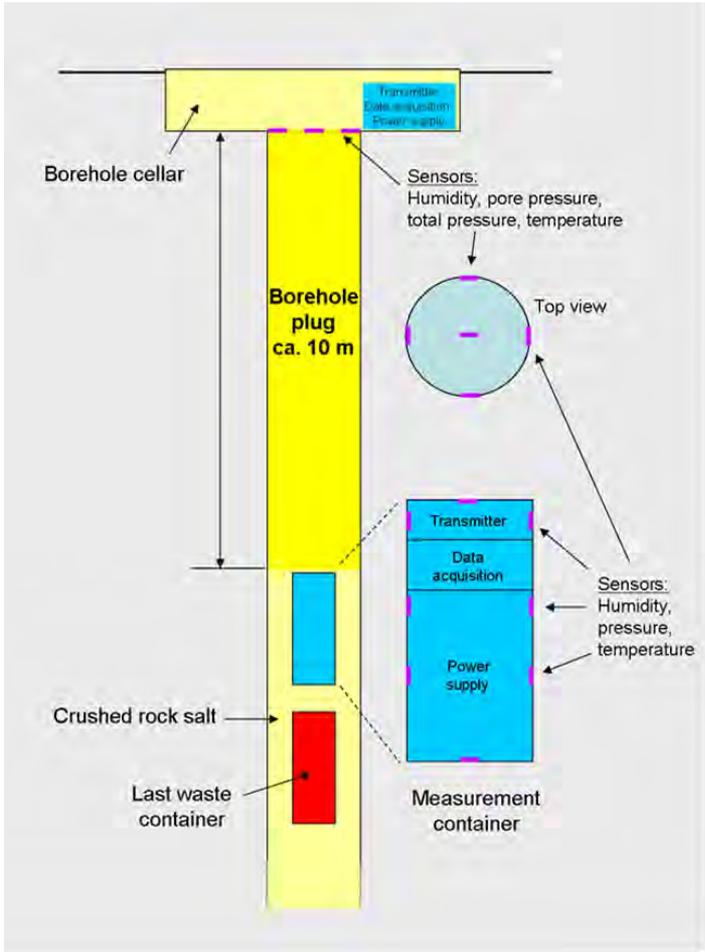
Betavoltaic batteries work similar to solar cells but instead of using photons they use beta particles from the radioactive decay to directly produce electrical current.

Tritium-based prototypes of betavoltaic batteries have already been developed and successfully tested (max. 30 years).



(Source: www.widetronix.com)

Self-sufficient Power Supply



RTGs need T-difference not just heat !!

$\Delta T \approx 20 \text{ K}$ after 100 years

Current RTGs produce 2.5 V at $\Delta T = 10 \text{ K}$
 (www.micropelt.com)



5 V still available

Conclusions I

- If it seems advisable to gain measurement data after closure of a repository, suitable equipment has to be installed in parallel to the disposal process. That means, the decision for post-closure monitoring has to be made in the beginning.
- Embedding of sensors at the outer shell of the canisters should be avoided to not weaken the canister and to produce predetermined breaking points. (Problem of waste handling and radiological safety).
- Monitoring is limited to representative canister environments, emplacement boreholes and seals etc. Otherwise the measurement logistics would be enormous and thus highly interference-prone increasing the risk of failure and wrong interpretation.
- Sensing systems would need a lifetime of more than 100 years by thinking about post-closure monitoring (unmaintained). We can hardly assume that most of the sensors will survive that long. Even the use of massive redundancy and diversity cannot guarantee a continuous monitoring.

Bordes & Debreuille analysed the long-term performance of nearly 7,000 sensors over a wide range of applications. Their analysis showed that malfunctions preferentially occurred during the initial period of use with a significant decrease in failure rates over time.

Conclusions II

- To keep the integrity of sealing constructions, no cables should be guided through seals.
- Although several wireless systems exist around the world, the signal transmission ranges of the current known systems are significantly limited, especially in rock formations. Several tests are currently underway to study the transmission of such signals in Belgium, Sweden, and in Switzerland.
- In principle, long-term power supply seems possible in case of using radionuclide batteries (RTG, Betavoltaics). Prototypes (> 30 years) are not yet available and will have to be developed to demonstrate the applicability.

In conclusion,

Monitoring of safety relevant processes in a geologic repository (unmaintained) does not represent an insurmountable task. However there are still many technological open questions that need to be addressed.

Many thanks !

www.modern-fp7.eu

THERMOHALINE FLOWS IN FRACTURED POROUS MEDIA

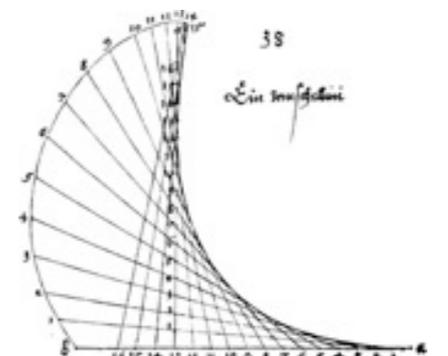
P. FROLKOVIC, A. GRILLO, M. LAMPE,
D. LOGASCHENKO, S. STICHEL, G. WITTUM

IN COOPERATION WITH

S. ATTINGER, E. FEIN, J. FLÜGGE, J. MÖNIG, F. RADU, A. SCHNEIDER



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

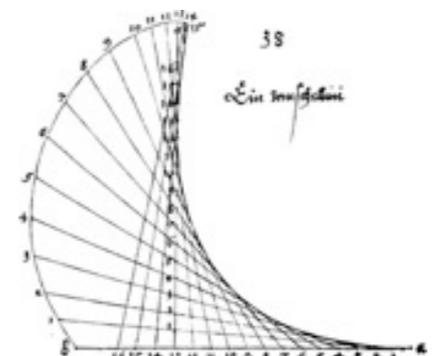


Projekte

- A-DuR
- E-DuR

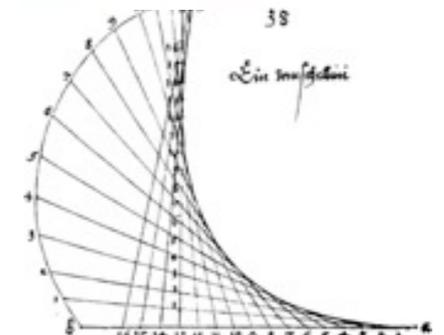
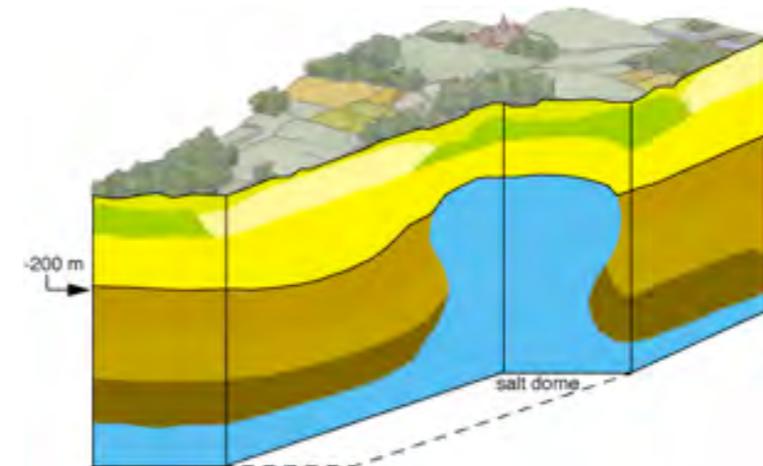
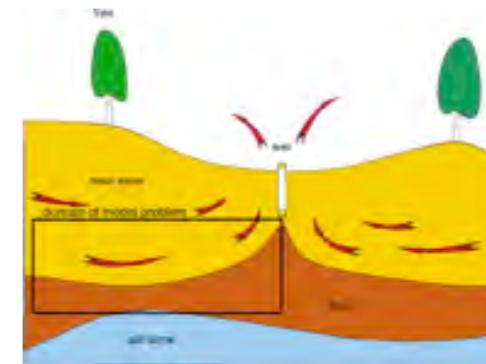
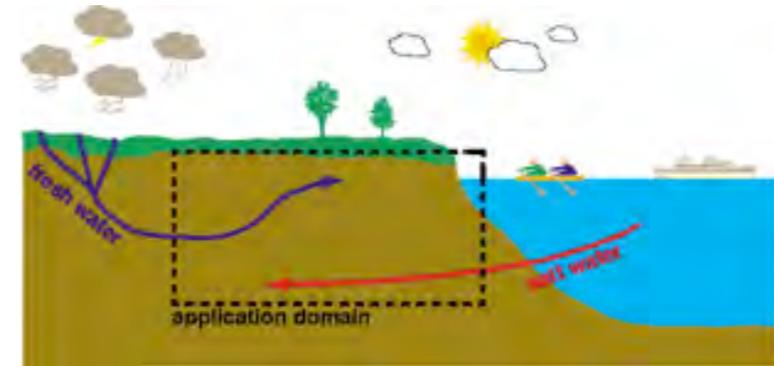


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Distributed Density Driven Flow D^3F

- Saltwater intrusion
- Upconing
- Flow around salt domes



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

D³F

- Distributed Density Driven Flow Solver for

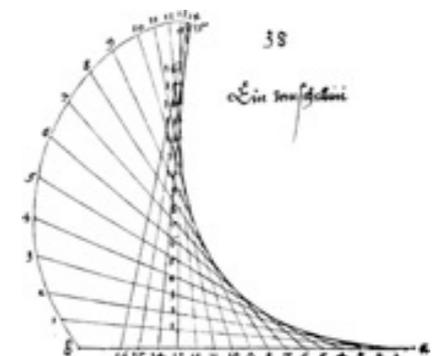
$$\frac{\partial(n\rho(c))}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho(c)\vec{v}) = Q_p(c),$$

$$\frac{\partial(n\rho(c)c)}{\partial t} + \nabla \cdot (\rho(c)(c\vec{v} - \mathbb{D}\nabla c)) = Q_c(c)$$

+ b.c.; with $\vec{v} = -K/\mu(c)(\nabla p - \rho(c)\vec{g})$,

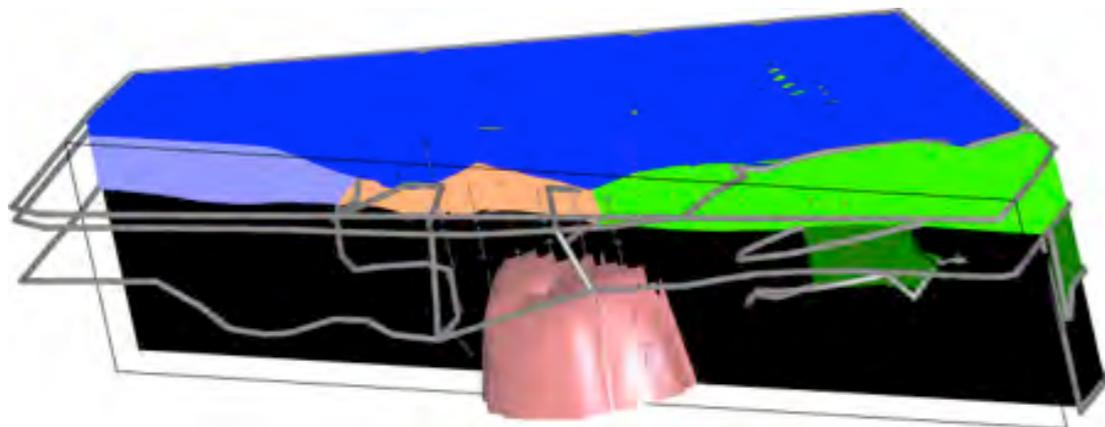
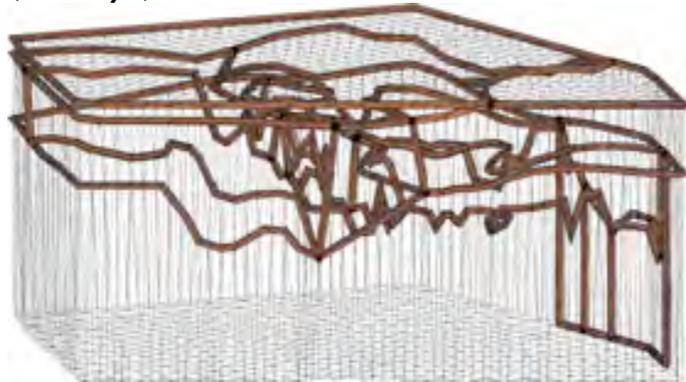


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

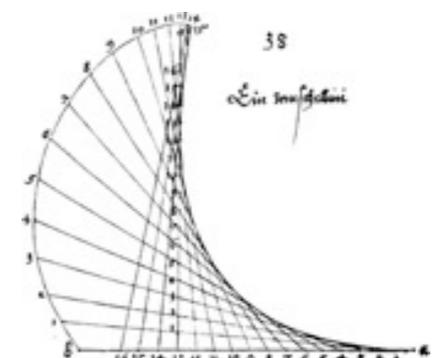


D³F

- complicated domains w. unstructured grids
(*UG*)

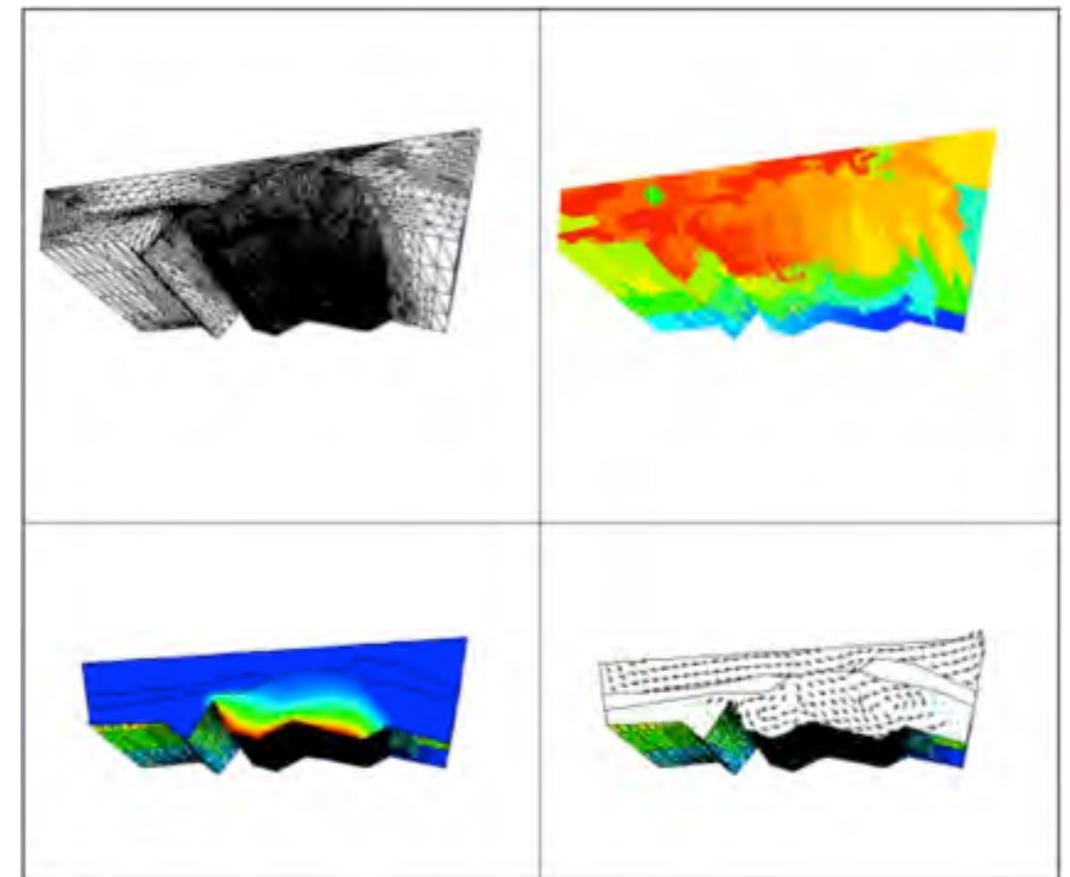
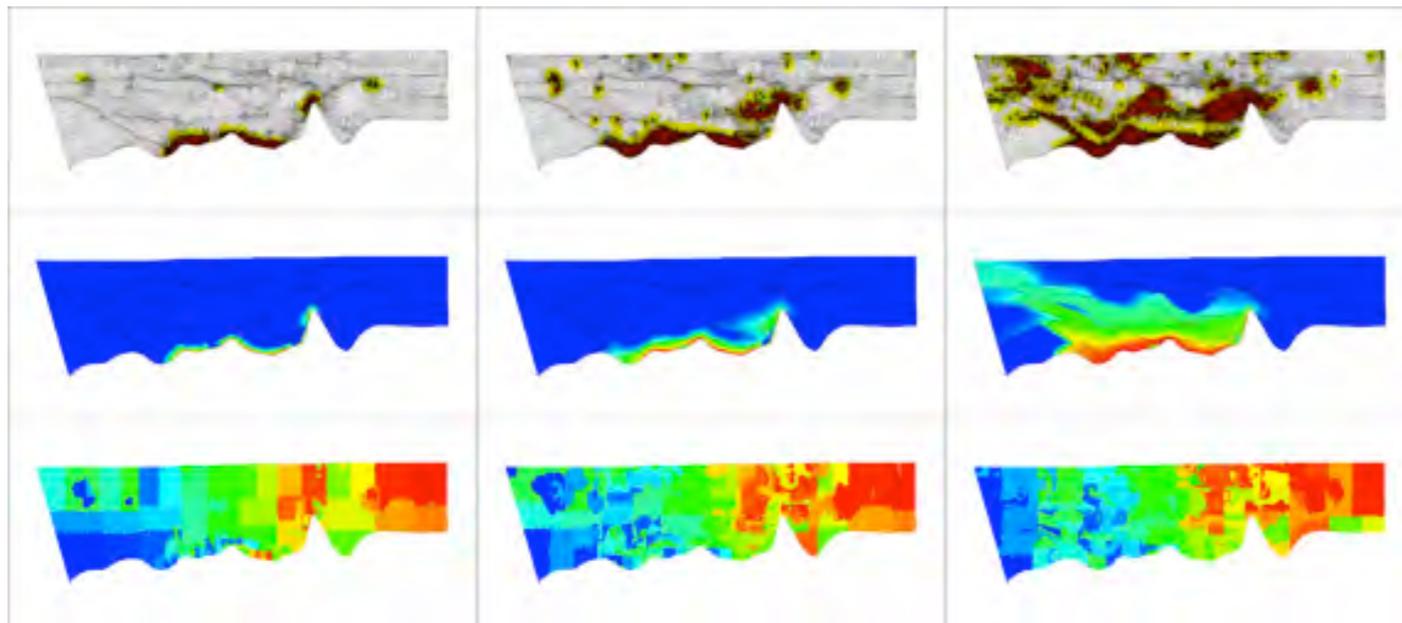


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

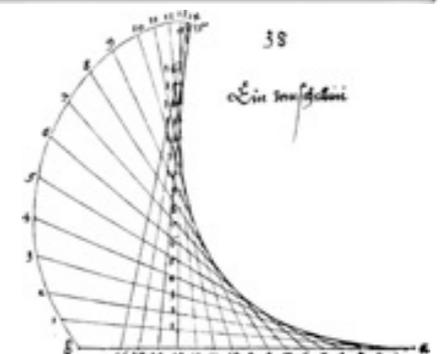


D³F

- Full density dependent non-linear dispersion
- fully parallel adaptive



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



R³T

- RRRT: Package solving systems of up to 160 coupled convection–diffusion reaction equations

RRRT: Radionuclides

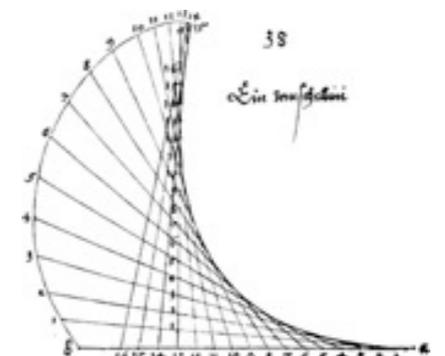
RRRT: Reactions

RRRT: Retardation

RRRT: Transport



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Validation

- Extensive validation

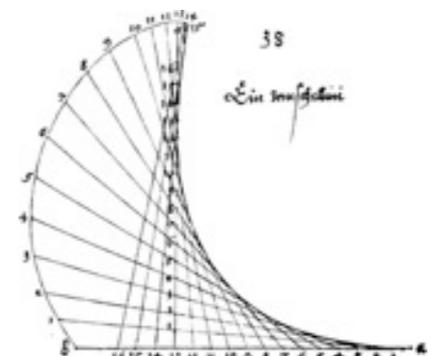
Especially designed experiments (saltpool)

Johannsen, K., Kinzelbach, W., Oswald, S., Wittum, G.: The saltpool benchmark problem – numerical simulation of saltwater upconing in a porous medium, *Advances in Water Resources*, 25 (3) (2002) pp. 335–348.

Field cases measured (Cape Cod, E. Fein)



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



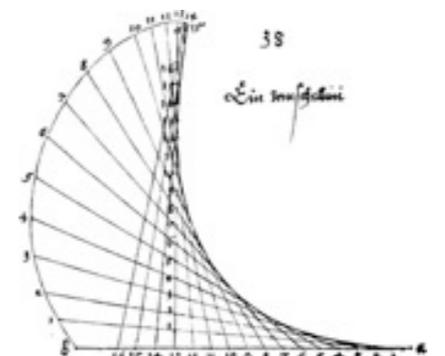
New Work

- Thermohaline flows
- Fractured media

P. Frolkovic, A. Grillo, S. Höllbacher, M. Lampe, D. Logaschenko, A. Nägel, S. Reiter, M. Rupp, S. Stichel, A. Vogel, C. Wehner, G.W.



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Thermohaline Flows

- Solving

$$\phi_f \frac{\partial \hat{\rho}_f}{\partial t} + \nabla \cdot (\hat{\rho}_f \mathbf{q}_f) = 0,$$

$$\phi_f \frac{\partial (\hat{\rho}_f \omega_s)}{\partial t} + \nabla \cdot (\hat{\rho}_f \omega_s \mathbf{q}_f + \mathbf{J}_d) = 0,$$

$$\phi_f \hat{\rho}_f \Theta \frac{D_f \hat{S}_f}{Dt} + (1 - \phi_f) \rho_r \Theta \frac{\partial \hat{S}_r}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{J}_T - \hat{\mu}_{sw} \mathbf{J}_d) = 0,$$

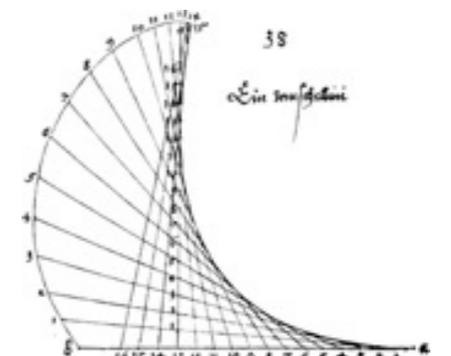
with $\mathbf{q}_f = -\frac{k}{\nu_f} (\nabla p - \rho_f \mathbf{g})$ (Onsager)

$$\mathbf{J}_d = -\phi_f \rho_f D \nabla \omega_s - \phi_f \rho_f D \frac{k_p}{p} \nabla p - \phi_f \rho_f D S \omega_s (1 - \omega_s) \nabla \Theta,$$

$$\mathbf{J}_T = -\phi_f \rho_f D Q \nabla \omega_s - \phi_f \rho_f D Q \frac{k_p}{p} \nabla p - \left[L_{TT} - \phi_f \rho_f \frac{D Q h_{sw}}{\Theta \frac{\partial \hat{\mu}_{sw}^i}{\partial \omega_s}} \right] \nabla \Theta,$$



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Thermohaline Flows

Solving

$$\phi_f \frac{\partial \hat{\rho}_f}{\partial t} + \nabla \cdot (\hat{\rho}_f \mathbf{q}_f) = 0,$$

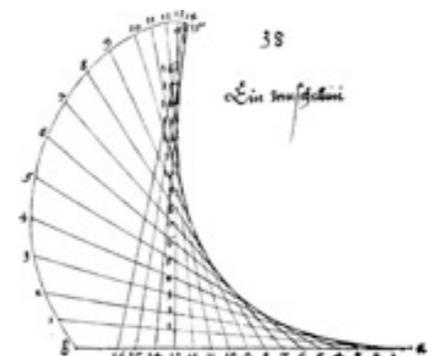
$$\phi_f \frac{\partial (\hat{\rho}_f \omega_s)}{\partial t} + \nabla \cdot (\hat{\rho}_f \omega_s \mathbf{q}_f + \mathbf{J}_d) = 0,$$

$$\phi_f \hat{\rho}_f \Theta \frac{D_f \hat{S}_f}{Dt} + (1 - \phi_f) \rho_r \Theta \frac{\partial \hat{S}_r}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{J}_T - \hat{\mu}_{sw} \mathbf{J}_d) = 0,$$

Alfio Grillo, Michael Lampe, Gabriel Wittum: Modelling and Simulation of temperature-density-driven flow and thermodiffusion in porous media. *Journal of Porous Media*, 14/8, 671-690, 2011



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Thermohaline Flows

- opposite effects of temperature and salt concentration

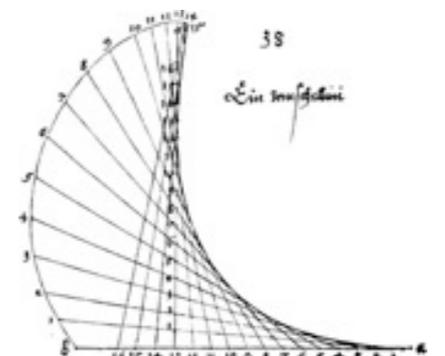
Temperature \uparrow

salt water \downarrow

- connection of mass flux with temperature gradient (Soret effect)
- connection of heat flux with concentration gradient (Dufour effect)



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

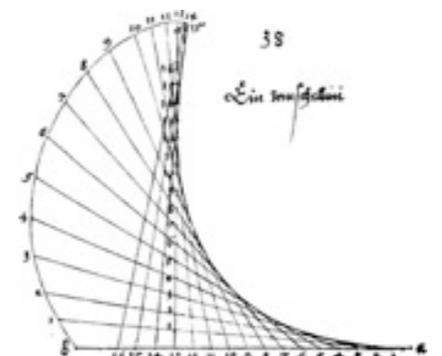


Example

- Moving parcel, benchmark problem from Oldenburg, Pruess, 1999 (2d)

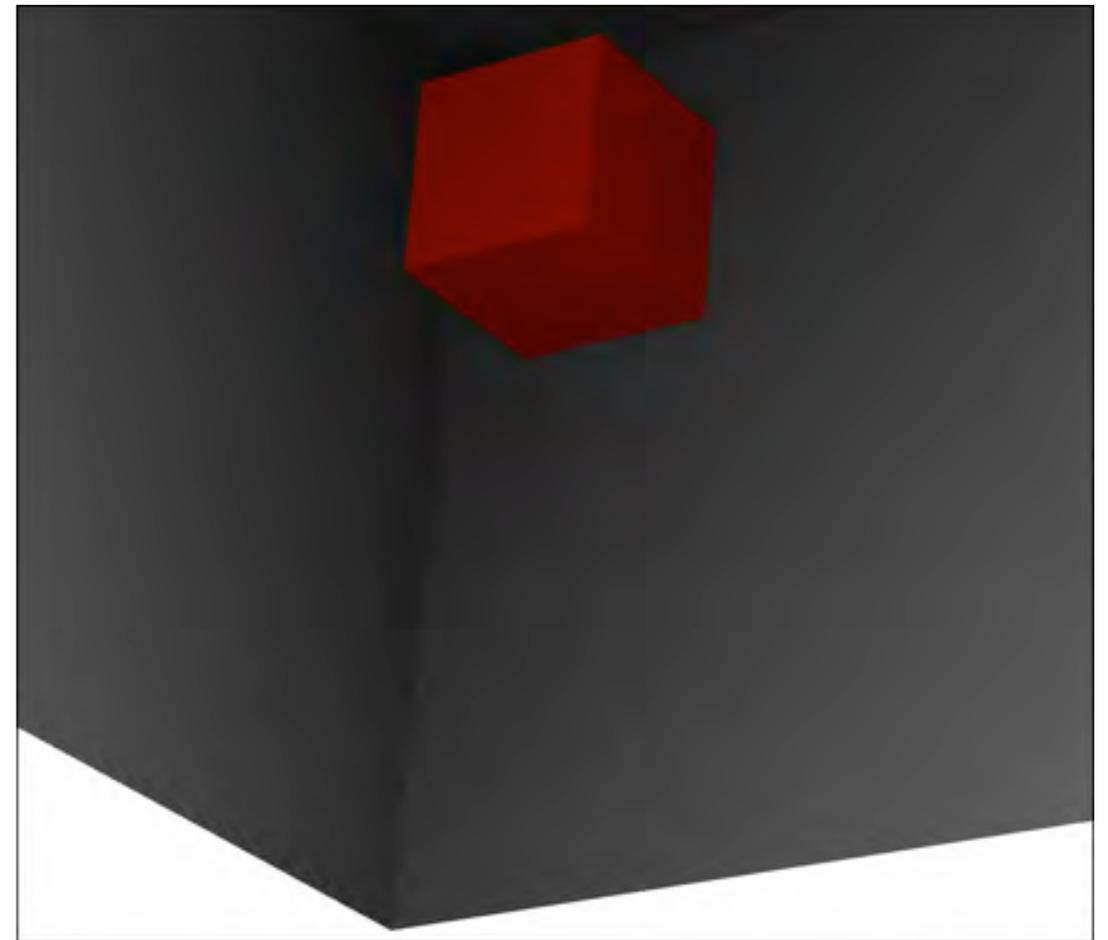
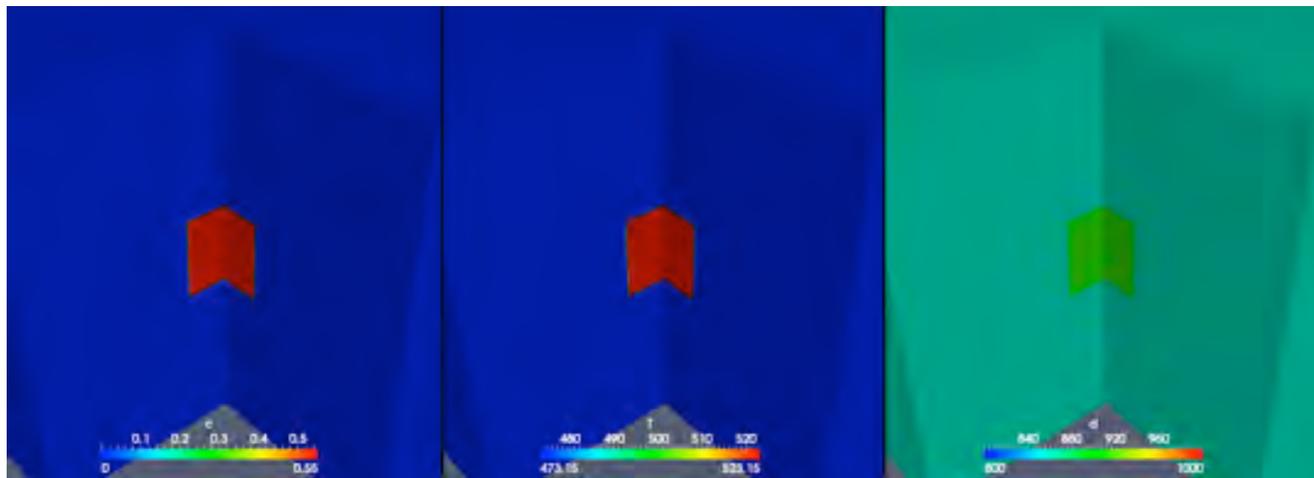


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

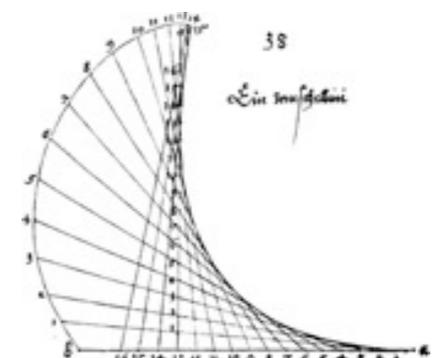


Thermohaline Flows

- negative buoyancy

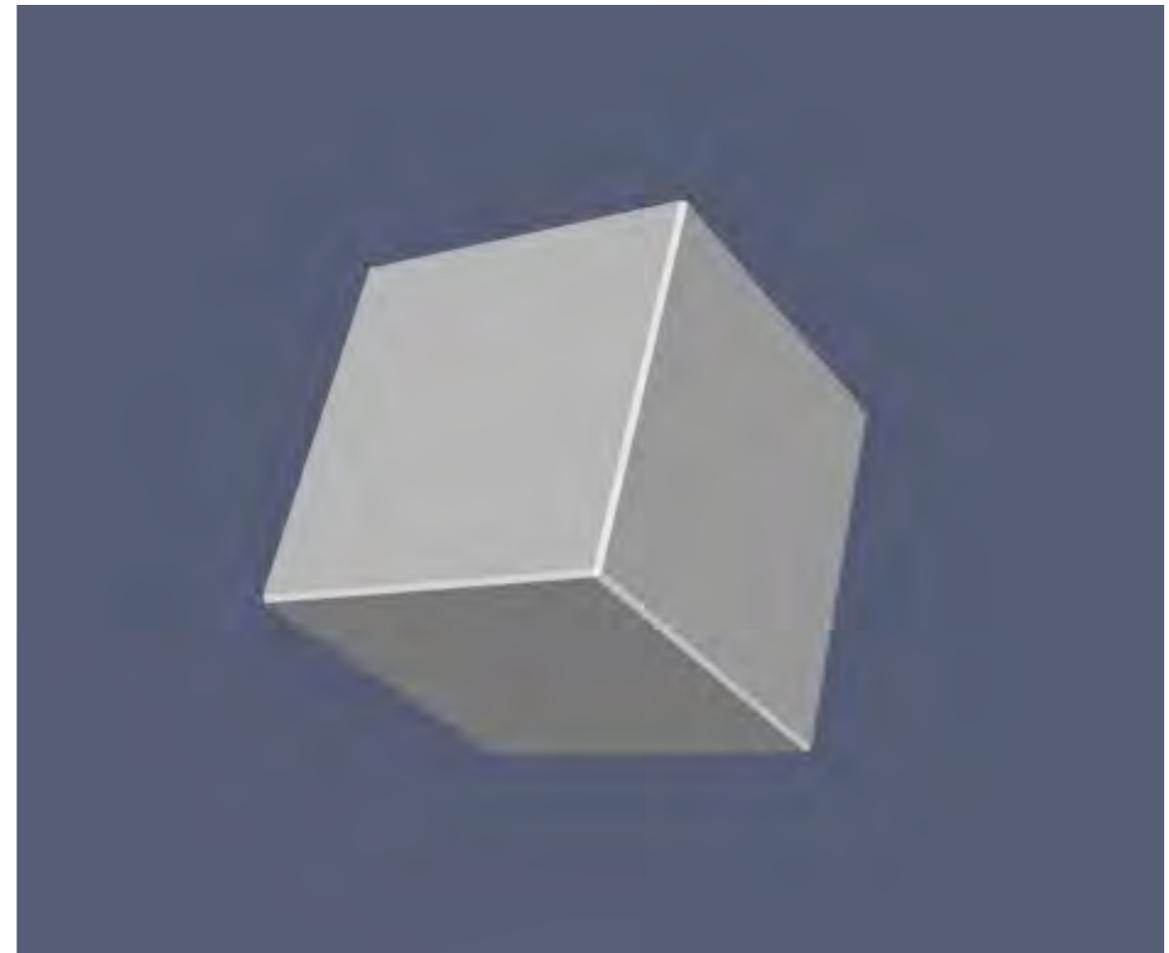


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

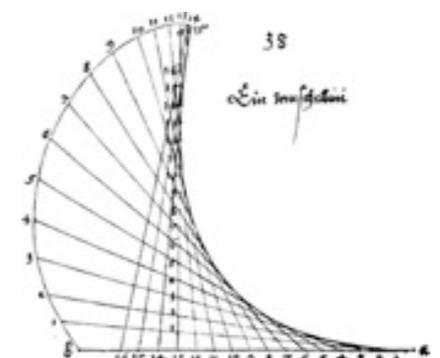


Thermohaline Flows

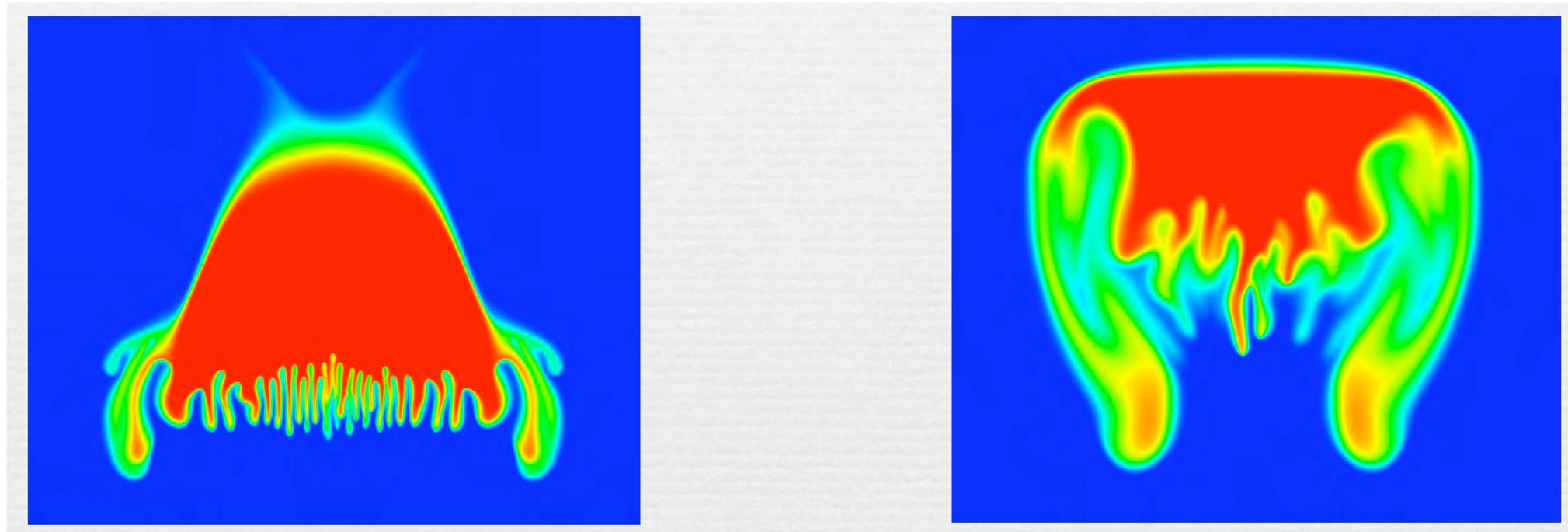
- positive buoyancy



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



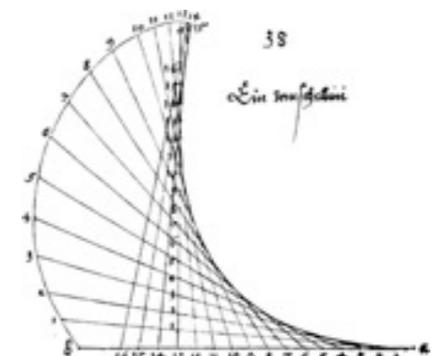
Grid Dependence



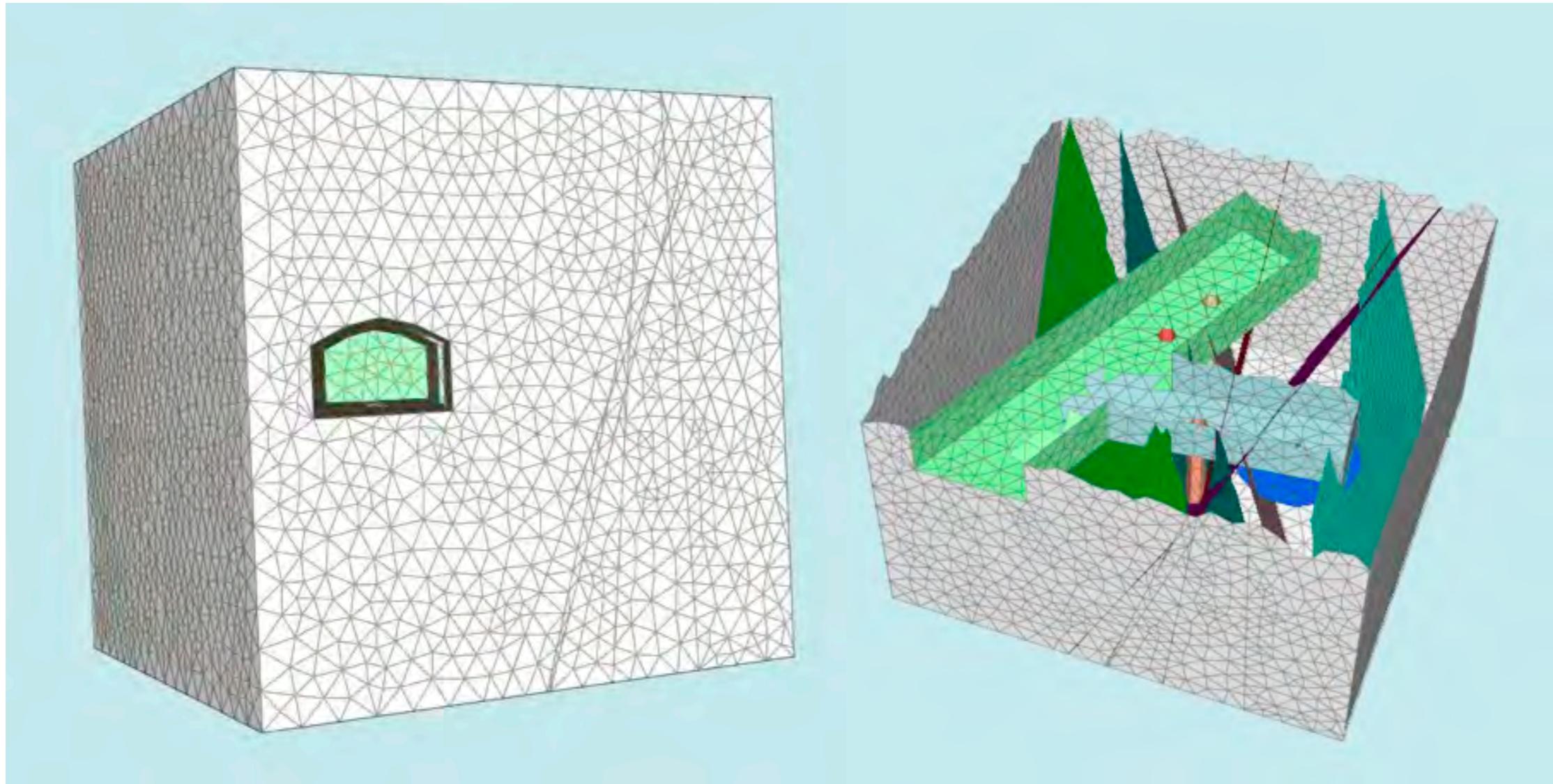
Symmetry breaking due to grid refinement
The number of fingers depends on grid size and time.



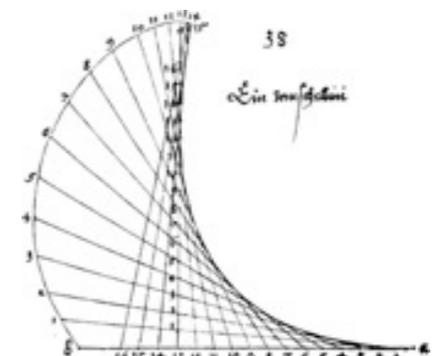
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Fractured Media



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Fractured Media

- Low dimensional formulation

Multiphase flow

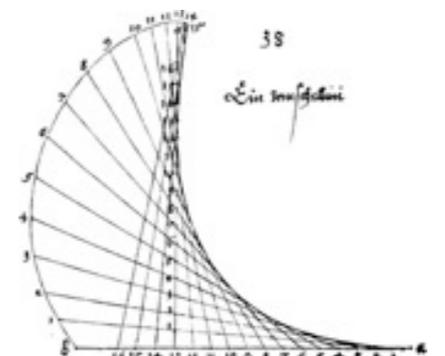
R. Helmig; O. Kolditz; V. Reichenberger;

...

- Multiscale modeling and numerics:
Dynamic coupling between micro and
macroscales

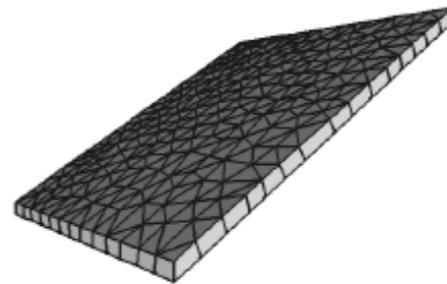
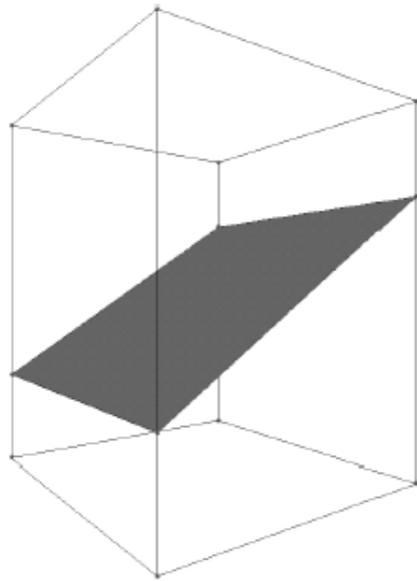


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Flow in Fractured Media

- low dimensional \leftrightarrow full dimensional

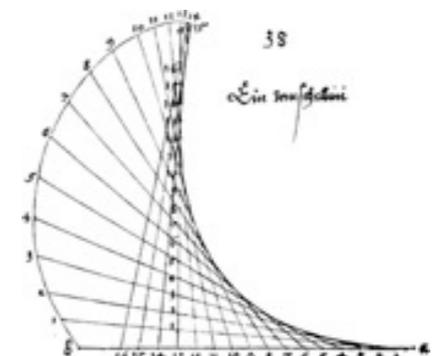


Representation of fractures:

1. Polyhedral faces + pointwise thickness
2. expand to volume



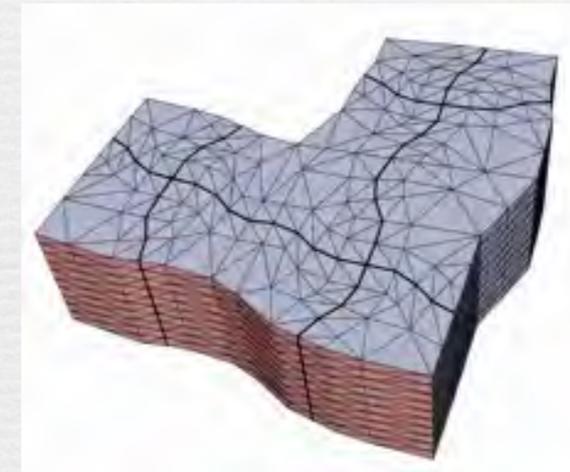
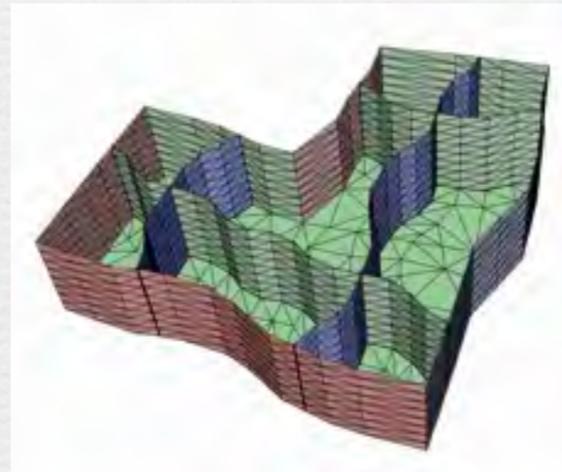
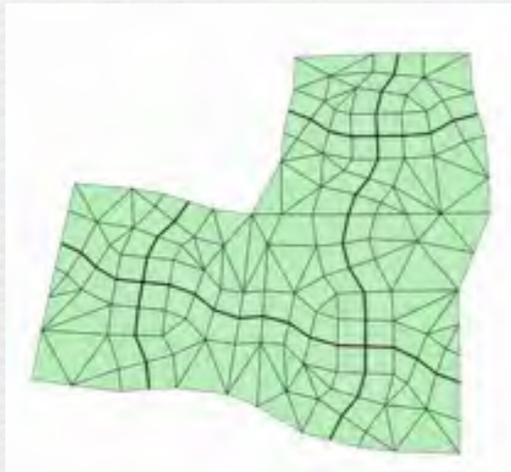
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Fracture Extrusion in 3d



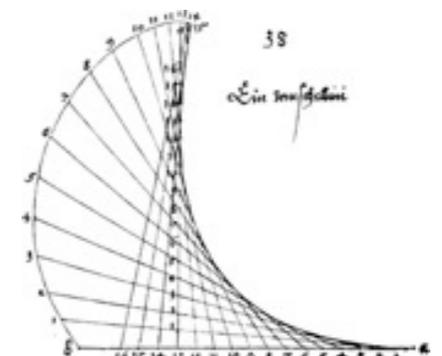
Extrusion of a triangle and a quadrilateral.



Extrusion of a 2d fractured geometry.
Left: 2d source, Middle: boundary surfaces, Right: Volume geometry.
Created with ProMesh3.

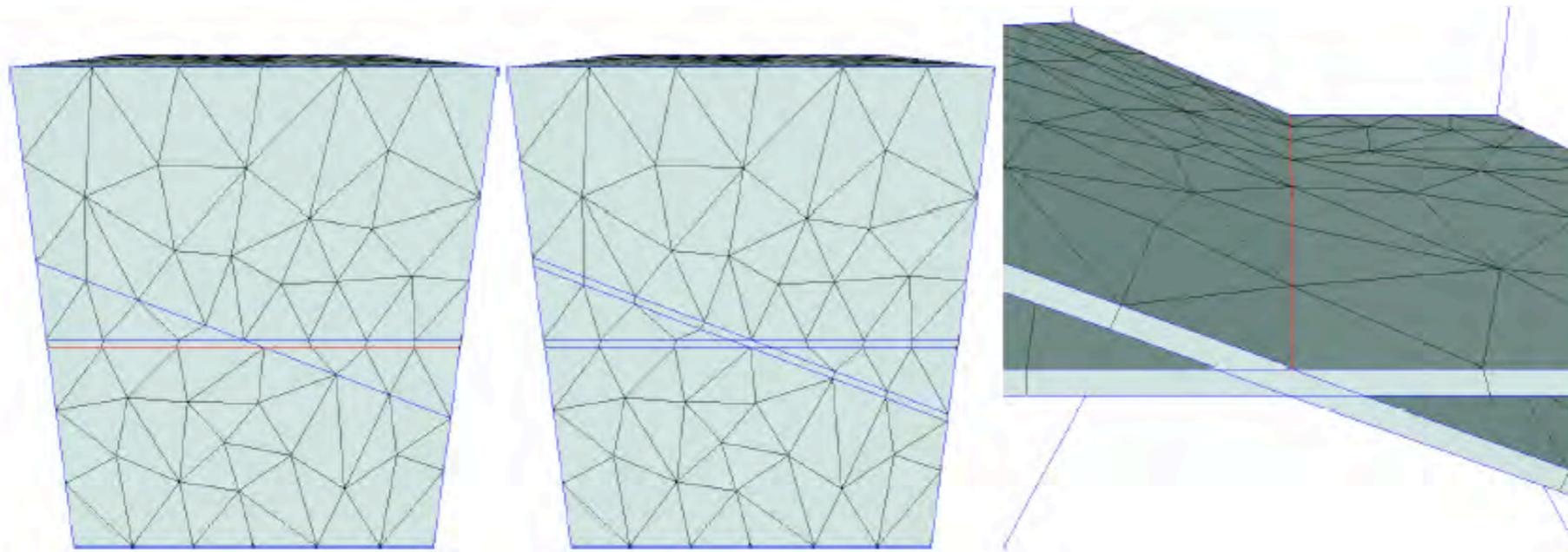


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Flow in Fractured Media

- Grid follows the anisotropic direction rectangularly

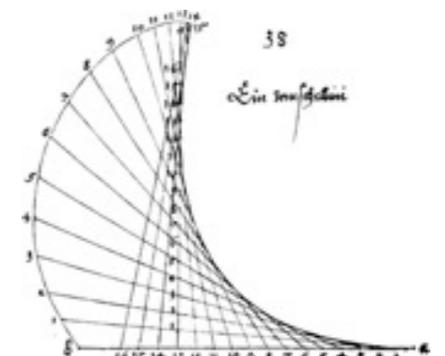


successful treatment of anisotropy possible: ARTE

Fuchs, W., 2003



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Low Dimensional Model

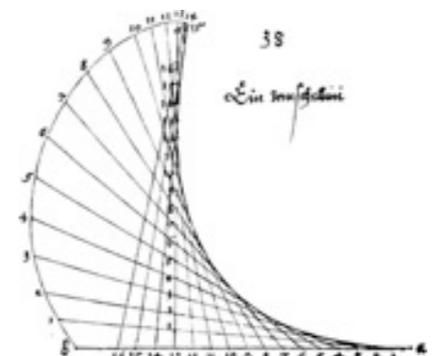
- Density driven flow model
average across fracture

$$\langle F \rangle(t, x, y) := \frac{1}{\epsilon} \int_{-\epsilon/2}^{\epsilon/2} F(t, x, y, z) dz.$$

+transmission conditions



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Transmission Conditions

- Full dimensional:

Continuity of normal fluxes

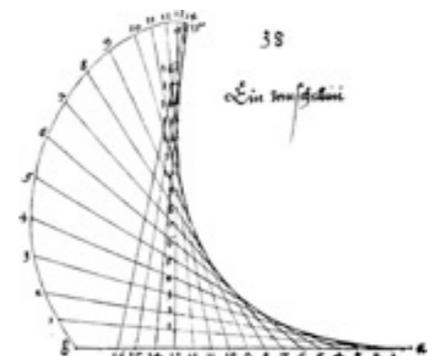
$$\begin{aligned} -\rho(c_f) \frac{K_f}{\mu} \left(\frac{\partial p_f}{\partial n} - \rho(c_f) g_n \right) &= -\rho(c_m) \frac{K_m}{\mu} \left(\frac{\partial p_m}{\partial n} - \rho(c_m) g_n \right) \\ -D_f \left(1 - \frac{\rho'}{\rho^{pW}} c_f \right) \frac{\partial c_f}{\partial n} &= -D_m \left(1 - \frac{\rho'}{\rho^{pW}} c_m \right) \frac{\partial c_m}{\partial n}. \end{aligned}$$

Continuity of pressure and concentration

$$p_f = p_m, \quad \text{and} \quad c_f = c_m$$

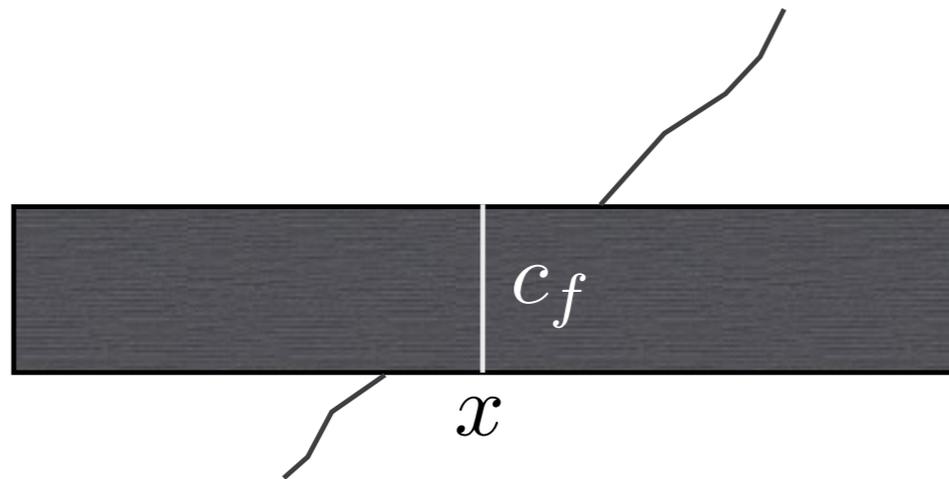


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

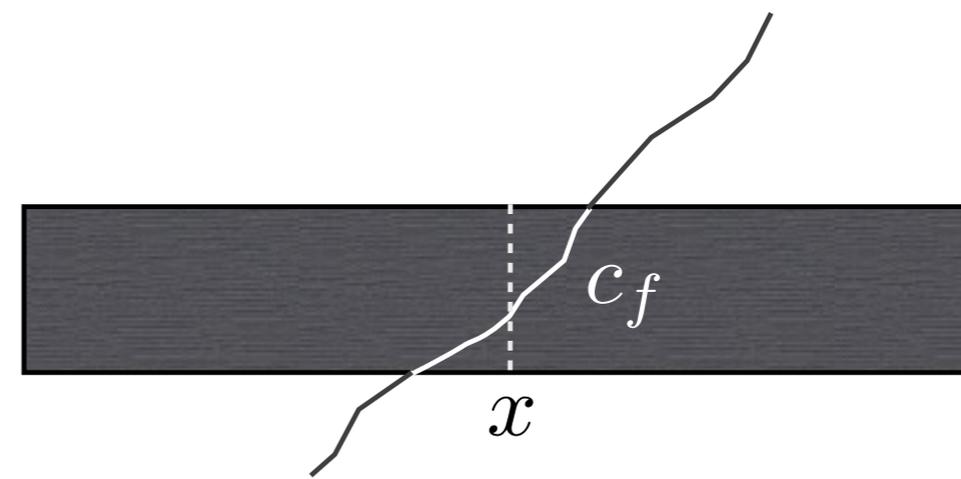


Transmission Conditions

Jumping variables



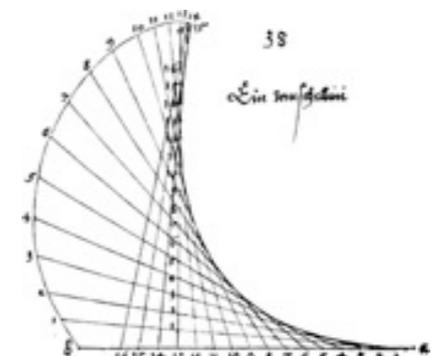
(d-1)-dimensional



d-dimensional



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Transmission Conditions

- Low dimensional

the auxiliary vector fields

$$\mathbf{Q}_\alpha := \rho^{pW} \mathbf{q}_\alpha - \rho' \mathbf{J}_\alpha, \quad \text{and} \quad \mathbf{P}_\alpha := c_\alpha \mathbf{q}_\alpha + \mathbf{J}_\alpha;$$

with

$$\mathbf{q}_\alpha = -\frac{\mathbf{K}_\alpha}{\mu} [\nabla p_\alpha - \rho_\alpha(c_\alpha) \mathbf{g}], \quad \rho' = \frac{\rho^{pB} - \rho^{pW}}{\rho^{pB}}$$

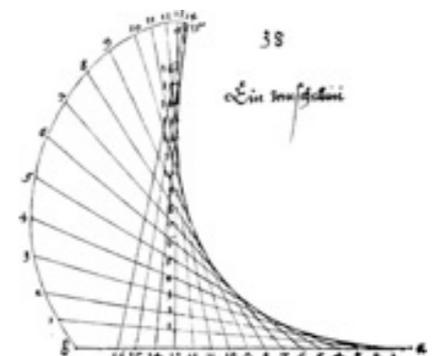
$$\mathbf{J}_\alpha = -\left(\frac{\rho^{pW}}{\rho^{pW} + \rho' c_\alpha} \mathbf{D}_\alpha \right) \nabla c_\alpha.$$

are continuous across the fracture

$$Q_{fn}^{(k)} = Q_{mn}^{(k)}, \quad \text{and} \quad P_{fn}^{(k)} = P_{mn}^{(k)}$$



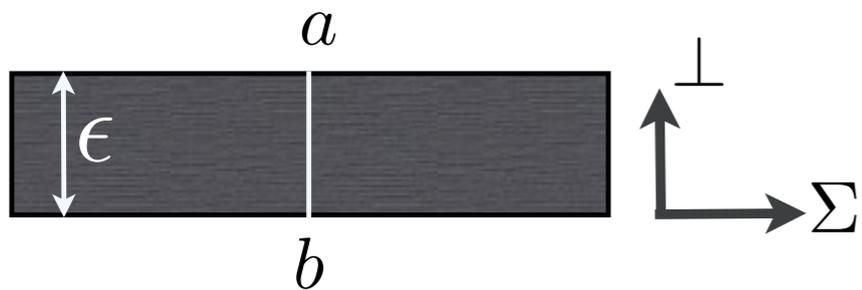
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Lower Dim. Representation

$$\frac{\partial(\phi_\Sigma \rho_f c_f)}{\partial t} + \nabla_\Sigma \cdot (\rho_f c_f \mathbf{q}_\Sigma - \rho_f \mathbf{D}_\Sigma \nabla_\Sigma c_f) + \frac{1}{\epsilon} (\rho_f c_m \mathbf{q}_\perp - \rho_f D_\perp \delta c_m)|_b^a = 0$$

$$\frac{\partial(\phi_\Sigma \rho_f)}{\partial t} + \nabla_\Sigma \cdot (\rho_f \mathbf{q}_\Sigma) + \frac{1}{\epsilon} (\rho_f \mathbf{q}_\perp)|_b^a = 0$$



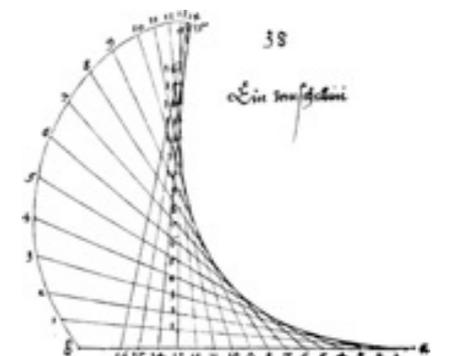
$$\mathbf{q}_\Sigma = -\frac{K_\Sigma}{\mu_f} (\nabla_\Sigma p_f - \rho_f \mathbf{g}_\Sigma)$$

$$\mathbf{q}_\perp = -\frac{K_\perp}{\mu_f} (\delta p - \rho_f \mathbf{g}_\perp)$$

$$(\delta c_m)|_a := \frac{c_a - c_f}{\epsilon/2}, \quad (\delta p)|_a := \frac{p_a - p_f}{\epsilon/2}$$



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Dichte-getriebene Strömung - Mittelung II

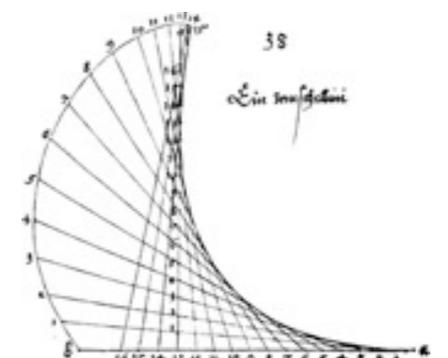
Austauschterme niederdimensionale Kluft zu Medium

$$\begin{aligned}(\rho_m c_m \mathbf{q} - \rho_m \mathbf{D}_m \nabla c_m) \cdot \mathbf{n} &= \rho_f c_m \mathbf{q}_\perp - \rho_f D_\perp \delta c_m \\(\rho \mathbf{q}) \cdot \mathbf{n} &= \rho_f \mathbf{q}_\perp\end{aligned}$$

wobei \mathbf{n} die Normale an Σ ist



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



HENRY'S PROBLEM (2D)

Intrusion of saltwater in freshwater aquifer

$$\frac{\partial c}{\partial n} = 0 \quad , \quad \frac{\partial p}{\partial n} = 0$$

$$c = 0$$

$$q_{in} = 6.6 \cdot 10^{-5}$$



$$c = 1$$

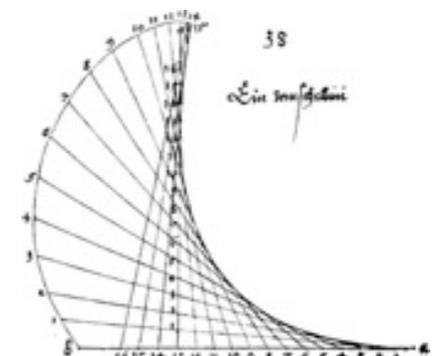
$$p = 10055.25 \cdot z$$

$$\frac{\partial c}{\partial n} = 0 \quad , \quad \frac{\partial p}{\partial n} = 0$$

Parameters in fracture: $\phi_{\Sigma} = 2\phi_m$, $K_{\Sigma} = 10^3 \cdot K_m$



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



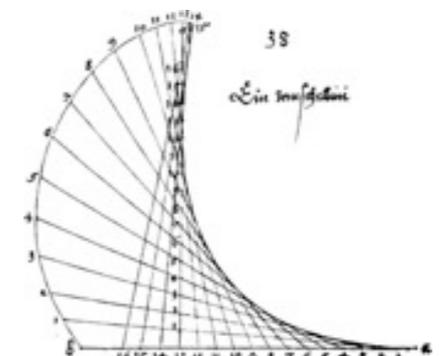
Henry's Problem

- Parameters

Symbol	Quantity	Value	Unit
D_d	Diffusion coefficient	$18.8571 \cdot 10^{-6}$	$[\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$
$D_m = \phi_m D_d$	Diffusion coefficient in the medium	$6.6 \cdot 10^{-6}$	$[\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$
$D_f = \phi_f D_d$	Diffusion coefficient in the fracture	$13.2 \cdot 10^{-6}$	$[\text{m}^2 \text{s}^{-1}]$
\mathbf{g}	Gravity	9.81	$[\text{m s}^{-2}]$
K_m	Permeability of the medium	$1.019368 \cdot 10^{-9}$	$[\text{m}^2]$
K_f	Permeability of the fracture	$1.019368 \cdot 10^{-5}$	$[\text{m}^2]$
ϕ_m	Porosity of the medium	0.35	-
ϕ_f	Porosity of the fracture	0.7	-
μ	Viscosity	10^{-3}	$[\text{kg m}^{-1} \text{s}^{-1}]$
ρ_w	Density of water	$1 \cdot 10^3$	$[\text{kg m}^{-3}]$
ρ_s	Density of brine	$1.025 \cdot 10^3$	$[\text{kg m}^{-3}]$
a_α^t	Transversal dispersivity length	0	$[\text{m}]$
a_α^l	Longitudinal dispersivity length	0	$[\text{m}]$

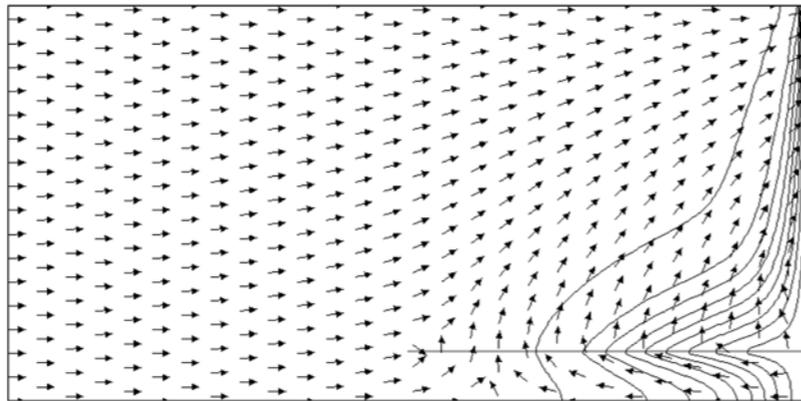


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

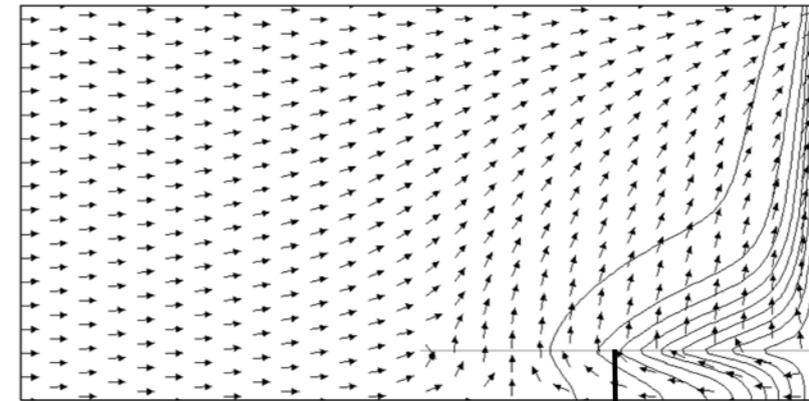


Henry's Problem w. Fracture

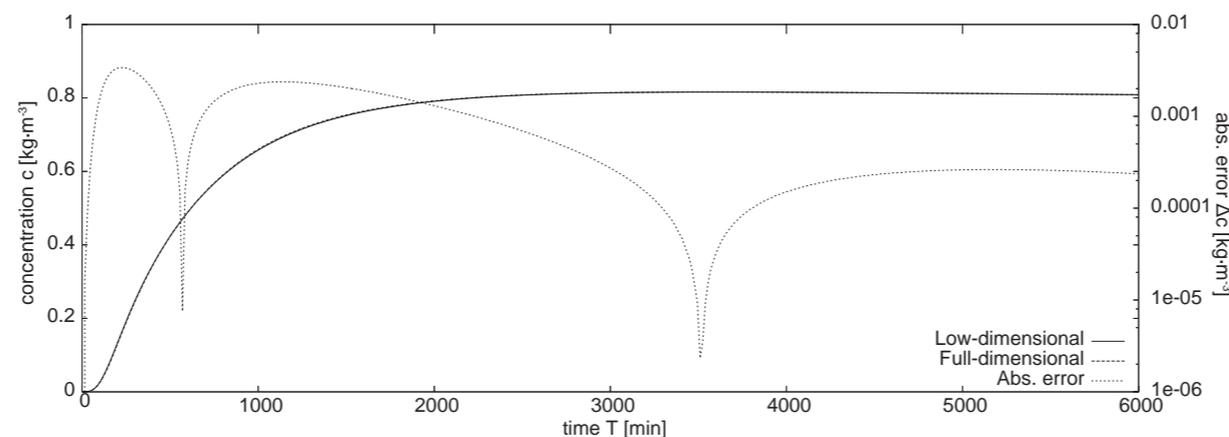
$$\varepsilon = 3 \text{ mm}, T = 5 \text{ h}$$



full dim. rep.



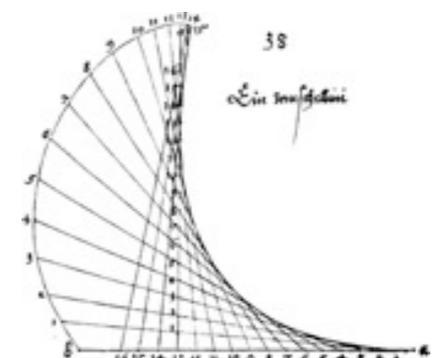
low dim. rep.



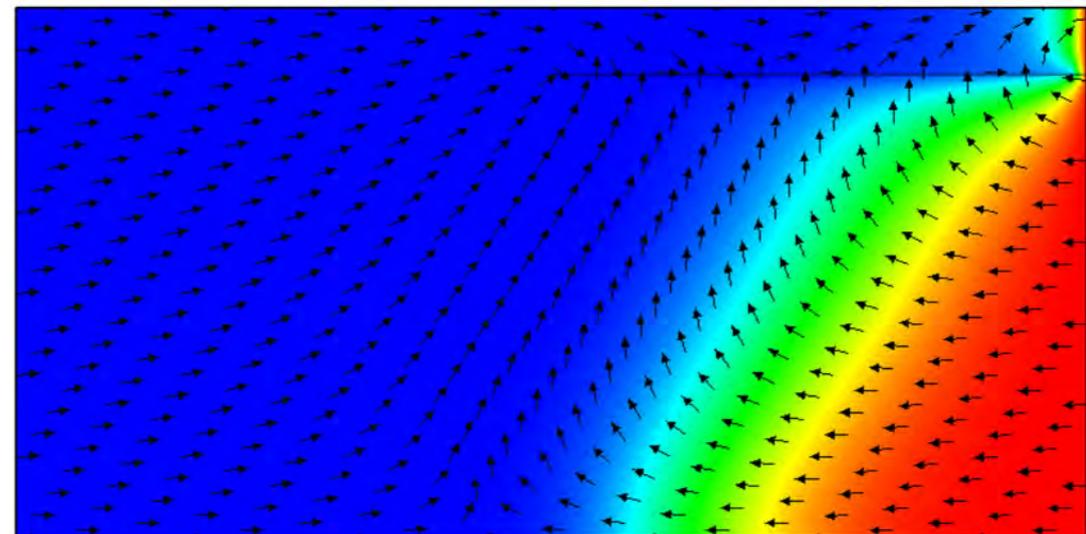
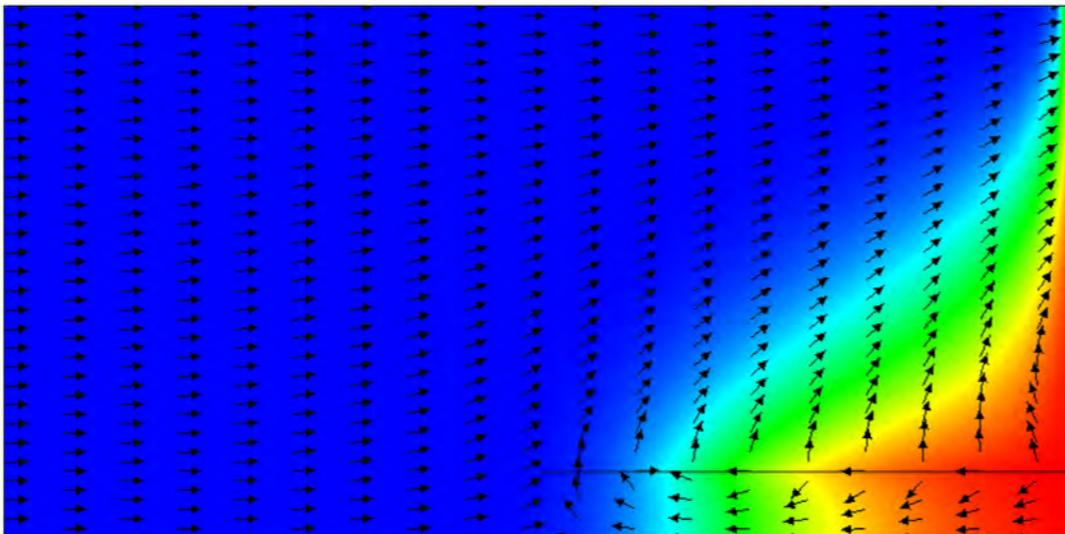
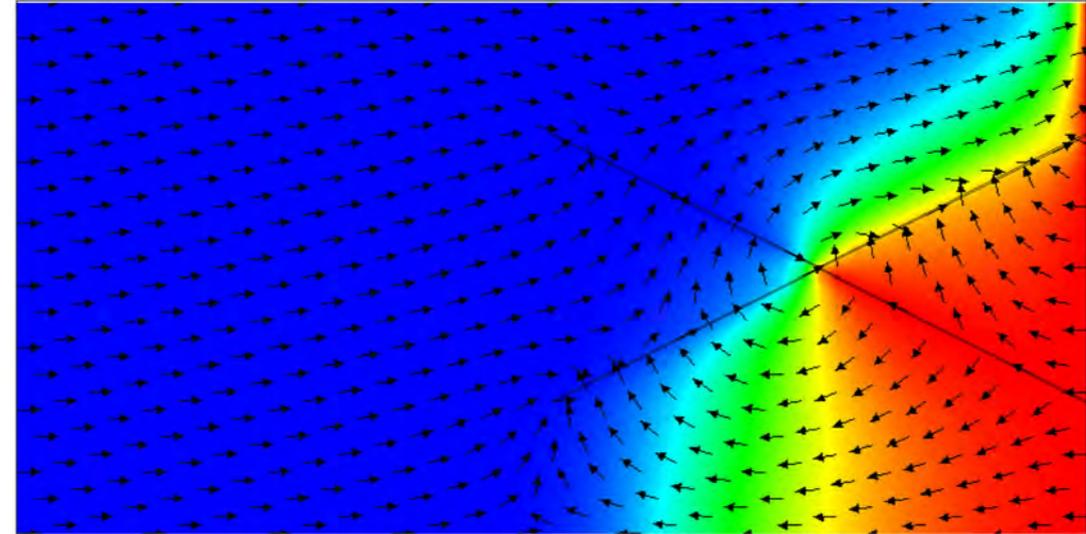
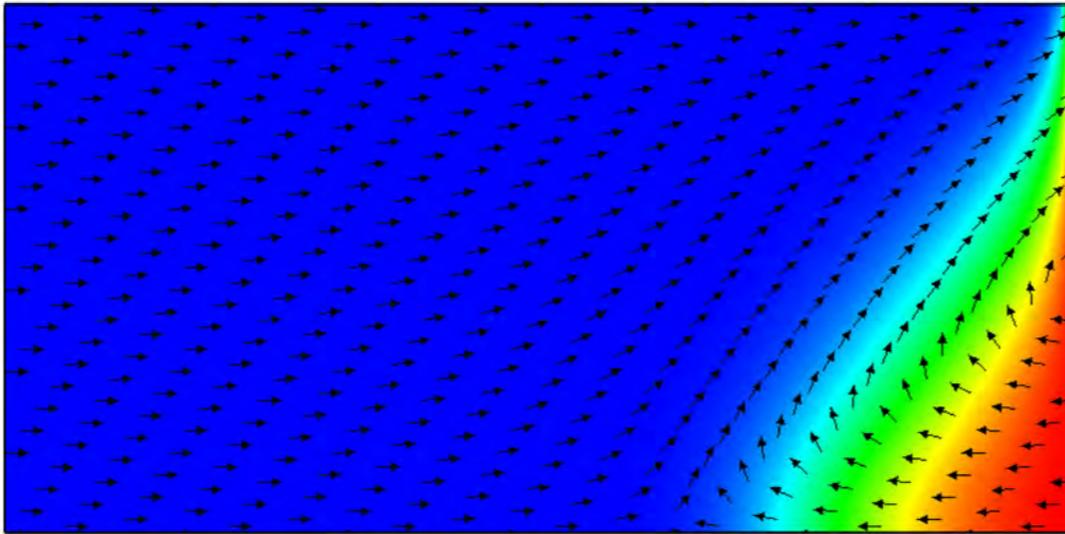
$x = 1.5 \text{ m}$



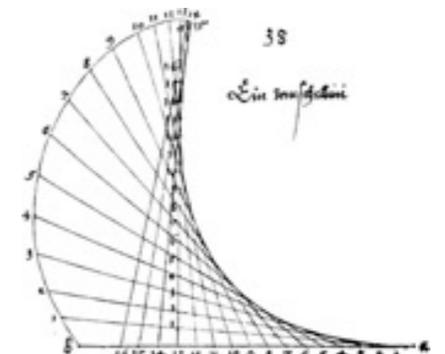
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Henry's Problem w. Fracture

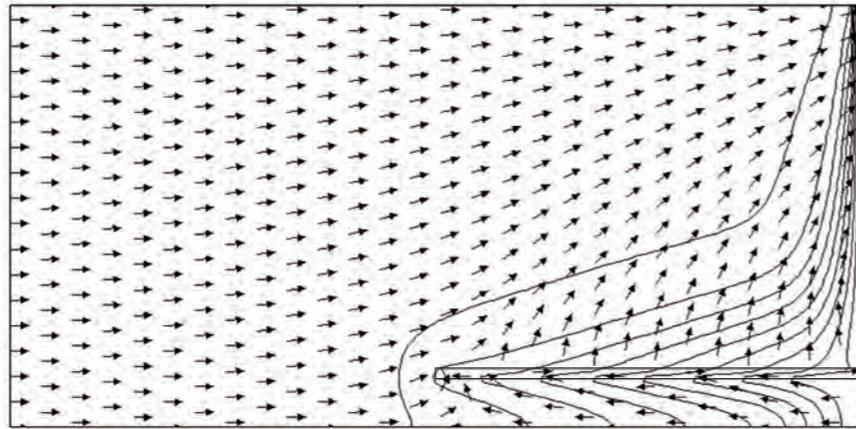


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

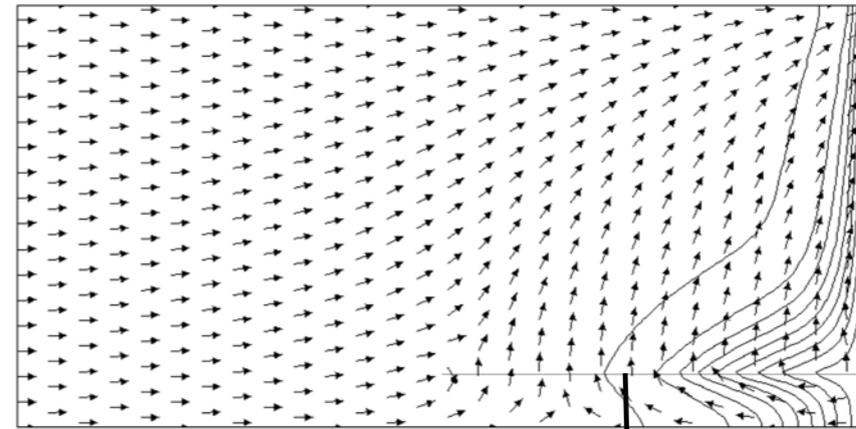


Henry-Problem w. Fracture

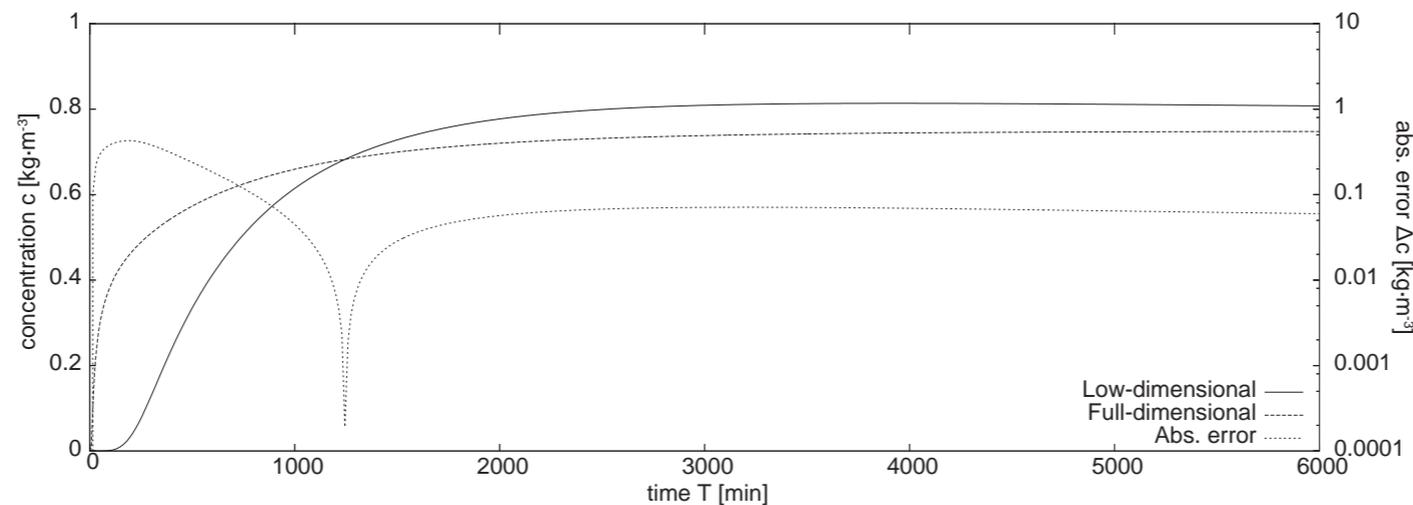
$\varepsilon = 24 \text{ mm}$, $T = 5 \text{ h}$



full dim. rep.



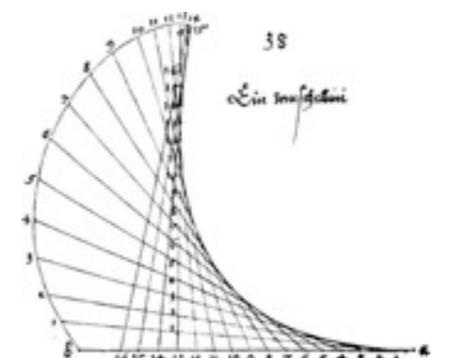
low dim. rep.



$x = 1.5 \text{ m}$

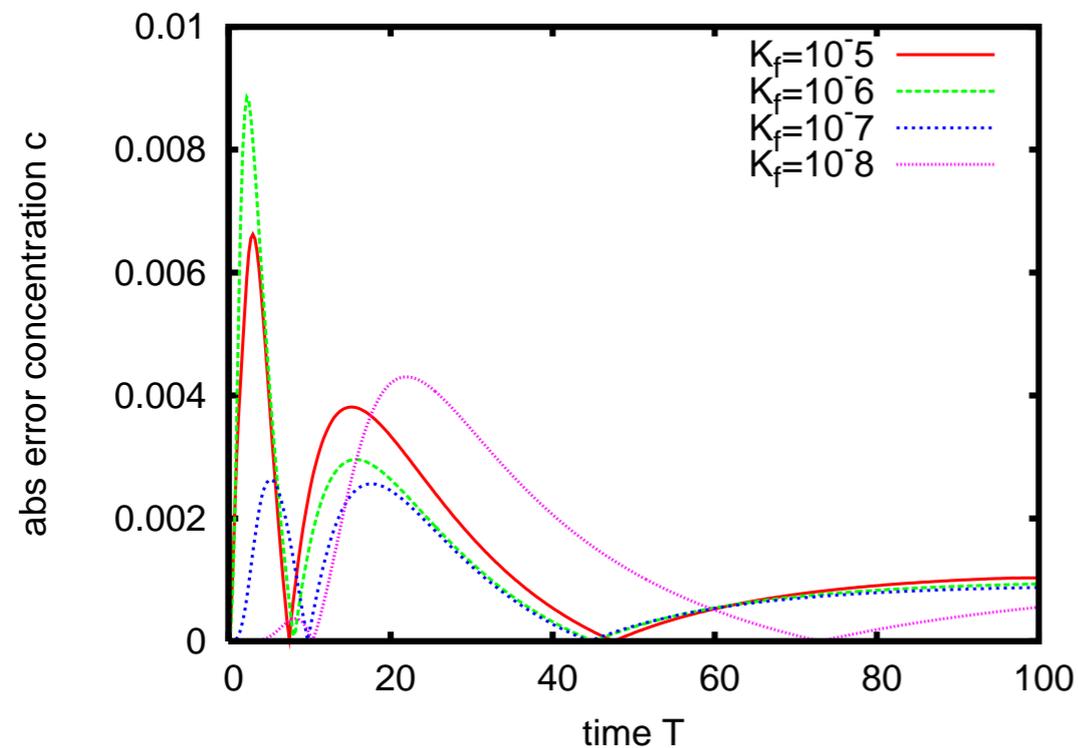


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

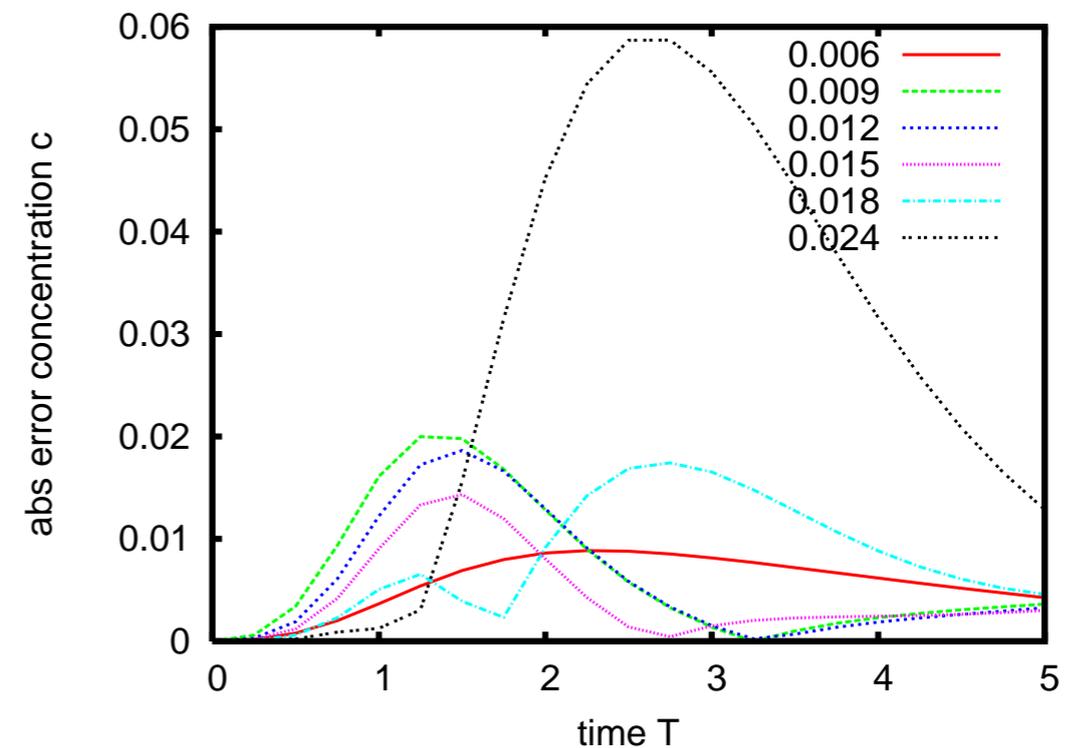


Comparison d-1 and d dim

averaged c



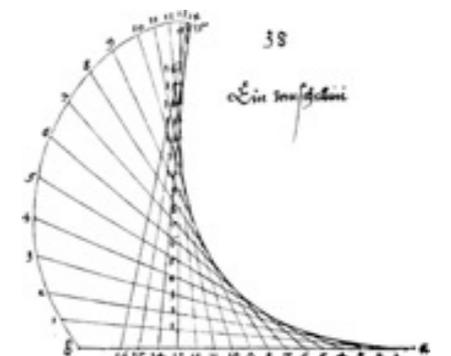
$\epsilon = 0.0006$ fixed



$K_f = 10^{-6}$ fixed



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Vorticity

$$\boldsymbol{\omega} = \nabla \times \mathbf{q} = \frac{\rho' K}{\mu} \nabla c \times \mathbf{g}$$

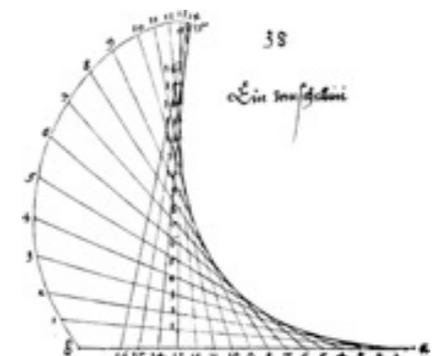
with
$$\mathbf{q} = -\frac{K}{\mu} (\nabla p - \rho \mathbf{g})$$

and
$$\rho_{\alpha}(c_{\alpha}) = \rho^{pW} + \rho' c_{\alpha},$$

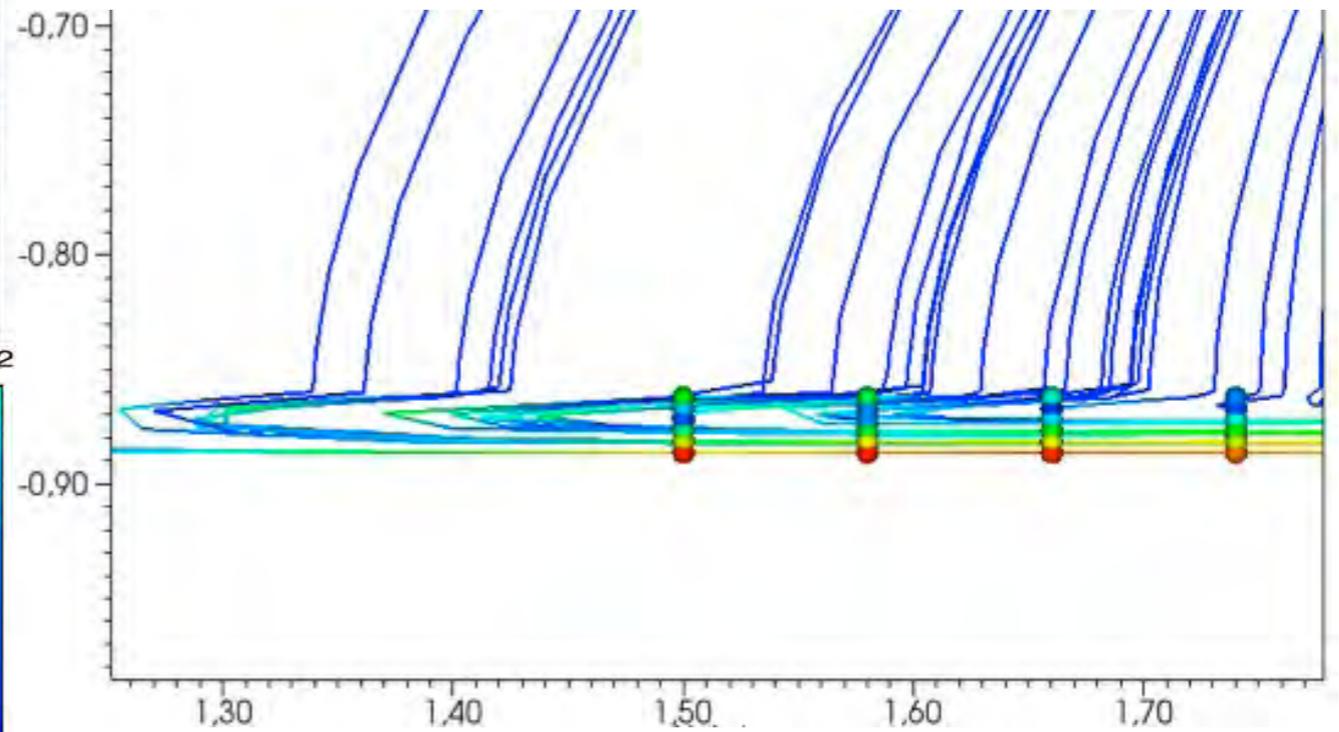
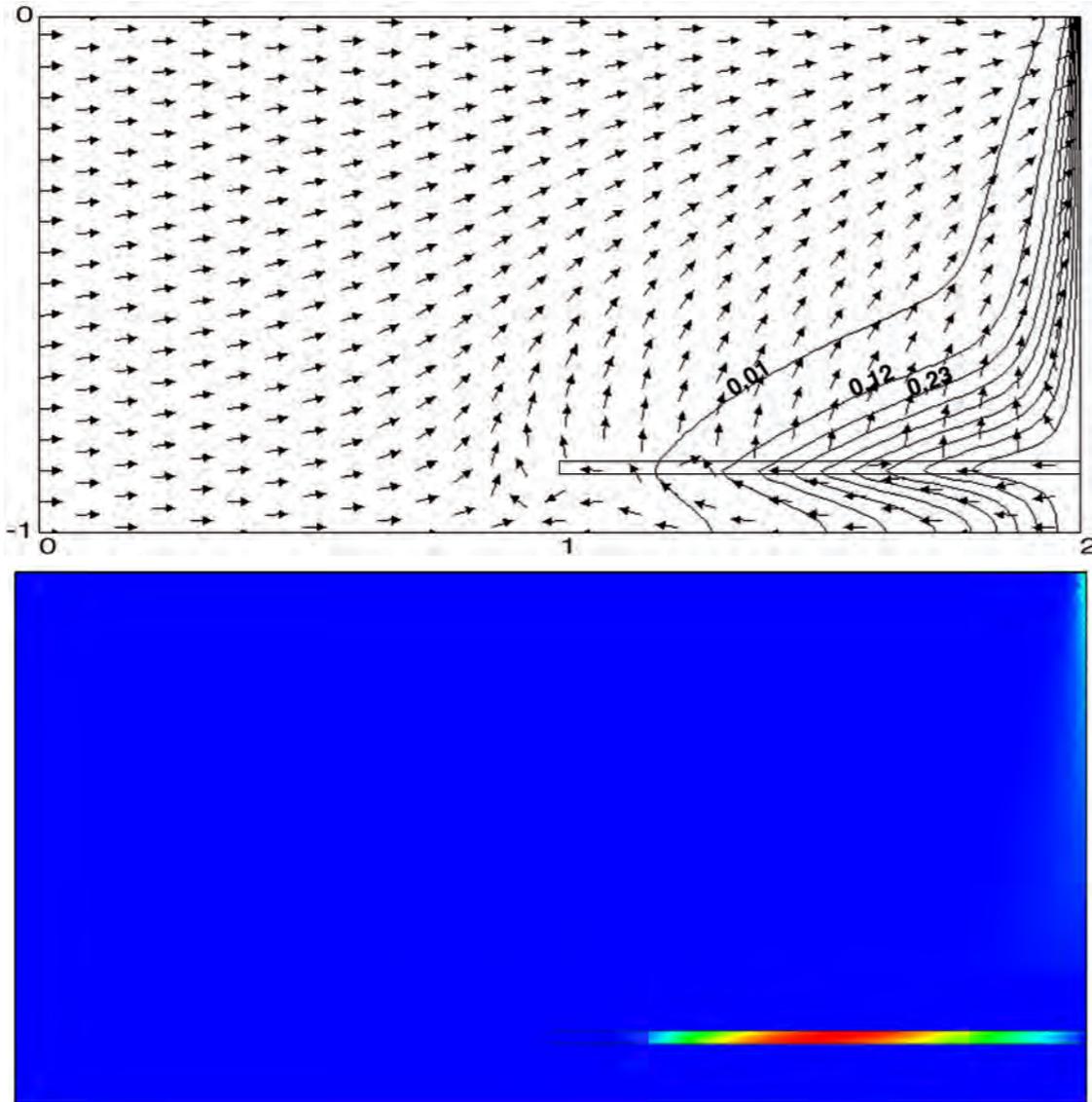
Vorticity is maximum, if the concentration gradient is perpendicular to gravity (i.e. isolines are parallel)



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



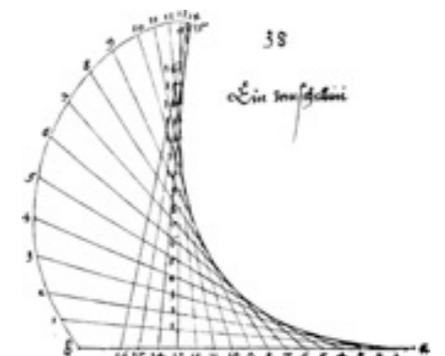
Vorticity



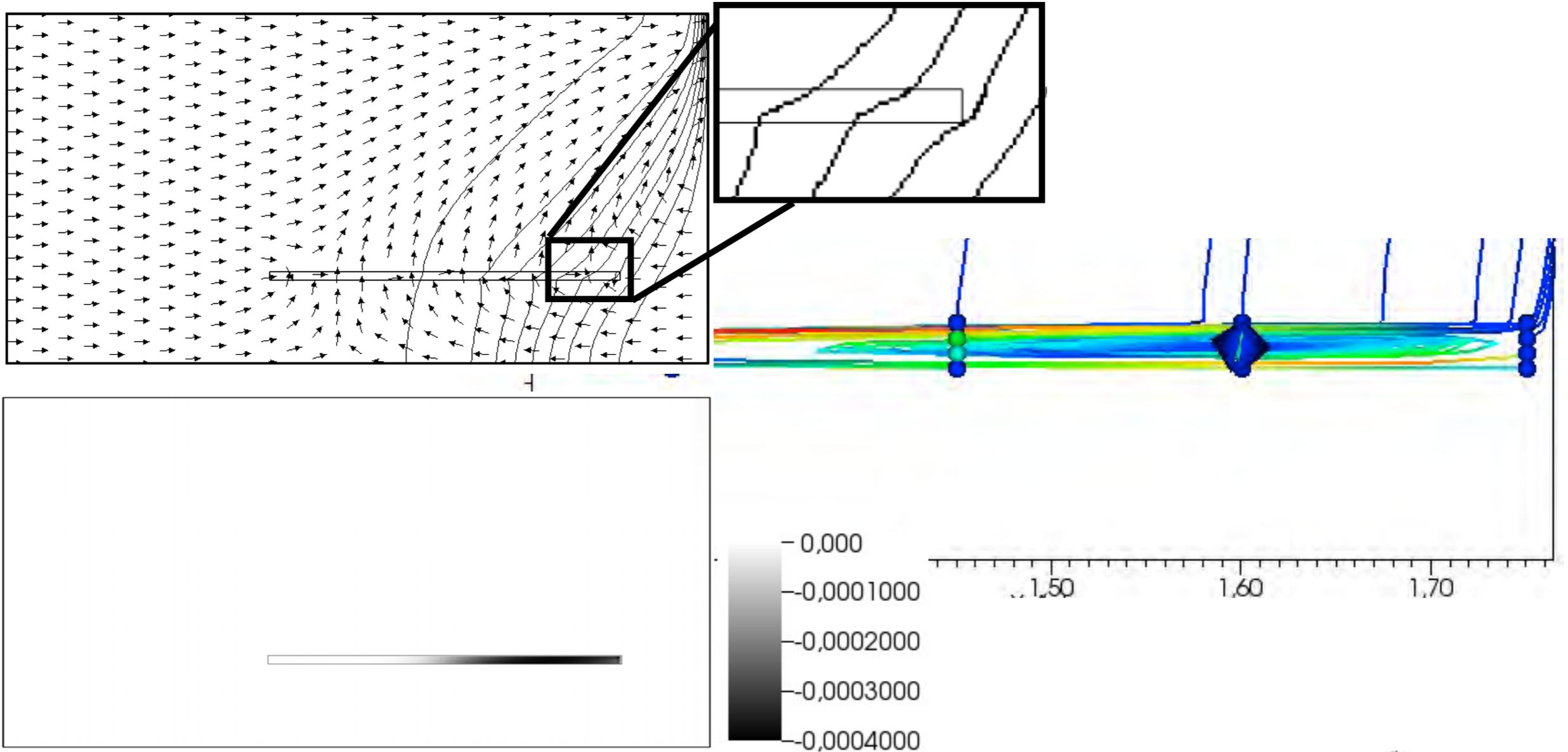
$$|\nabla \times \mathbf{q}|$$



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



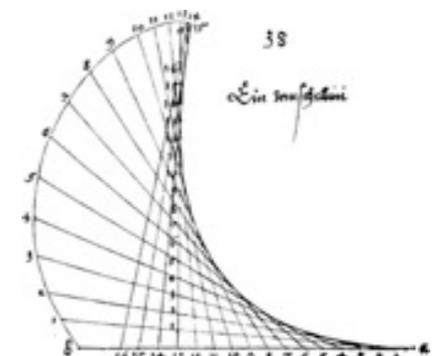
Wirbel $\epsilon = 0.024$



$$\nabla \times \mathbf{q}$$



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

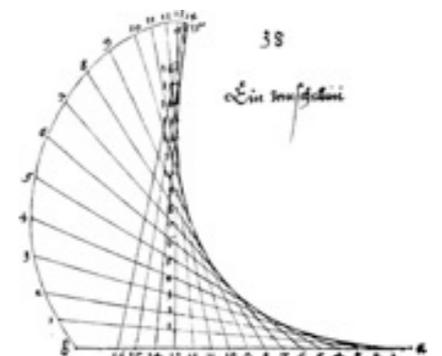


Beobachtungen

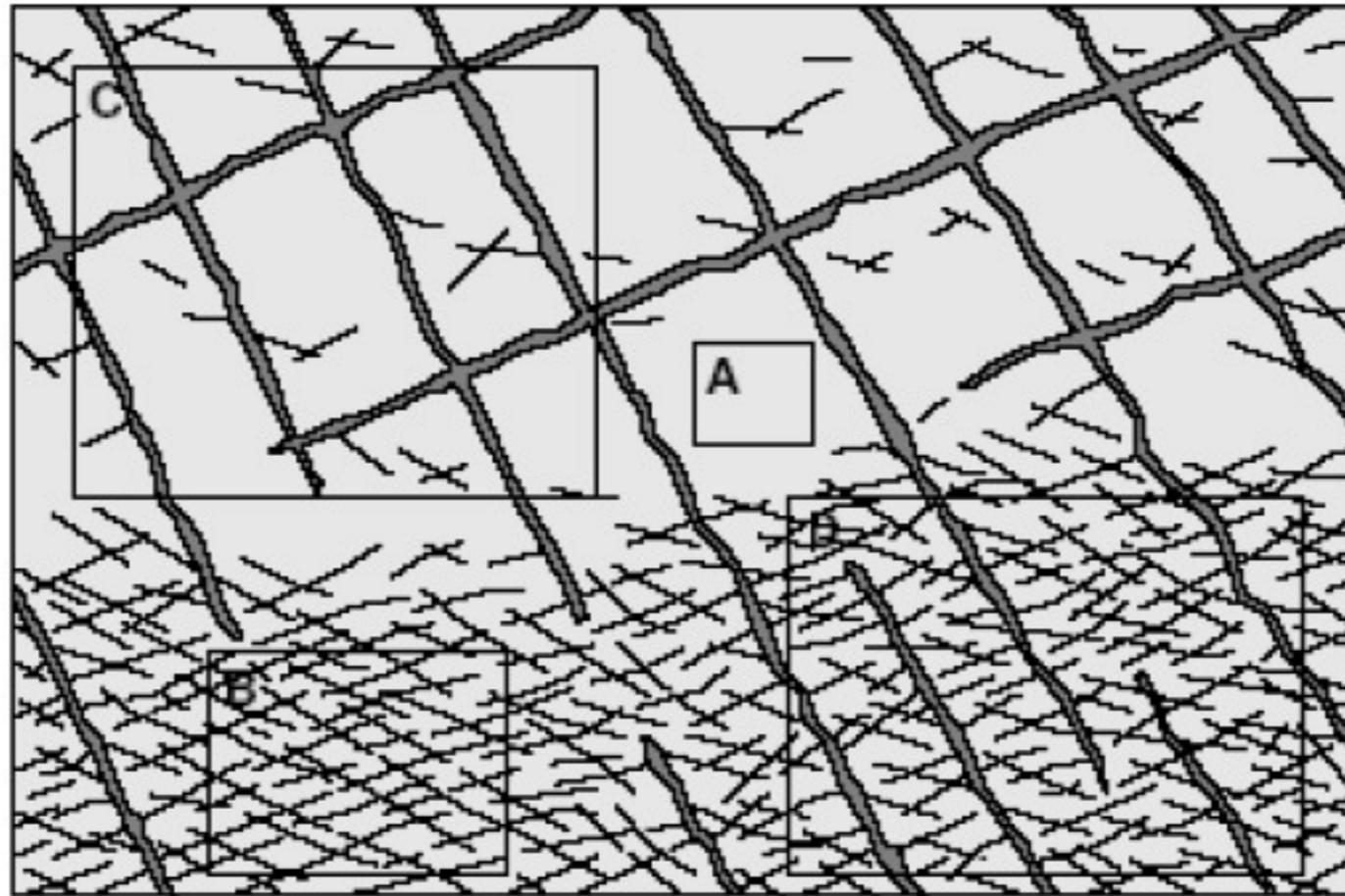
- Für sehr dünne Klüfte (d-1)-dim. Modell ausreichend
- In dickeren Klüften Wirbel möglich



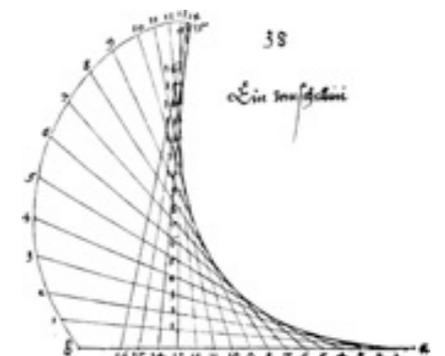
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Kluft-Netzwerke



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

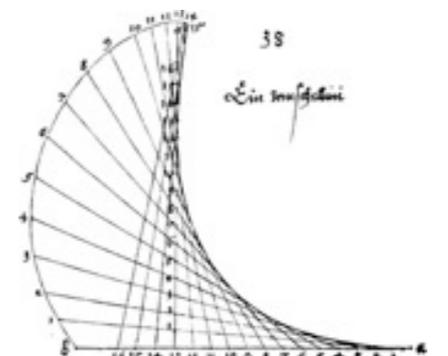


Dimensions-Adaptivität

- Während der Rechnung wird die Darstellung der Kluft gewechselt
- Die d -dimensionale Auflösung wird nur benutzt, wenn es erforderlich ist
- Wir brauchen:
 - 2 Rechengitter (d - und $(d-1)$ -dim.)
 - Transfer-Operatoren zwischen den Gittern
 - Bedingung, wann der Wechsel stattfindet



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Kriterium f. Dimension

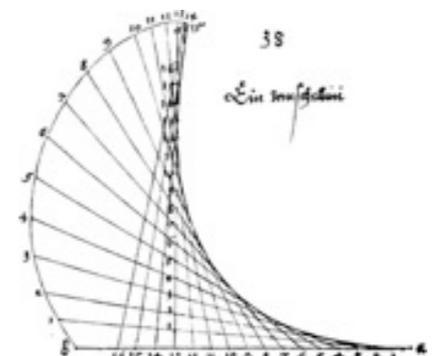
$$C := \epsilon \frac{K_f}{K_m} \max_F \{ |\omega_f| \} \frac{\partial_x \omega}{\partial_z \omega}$$

$C > C_0$ d -dimensional

$C < C_1$ $(d - 1)$ -dimensional

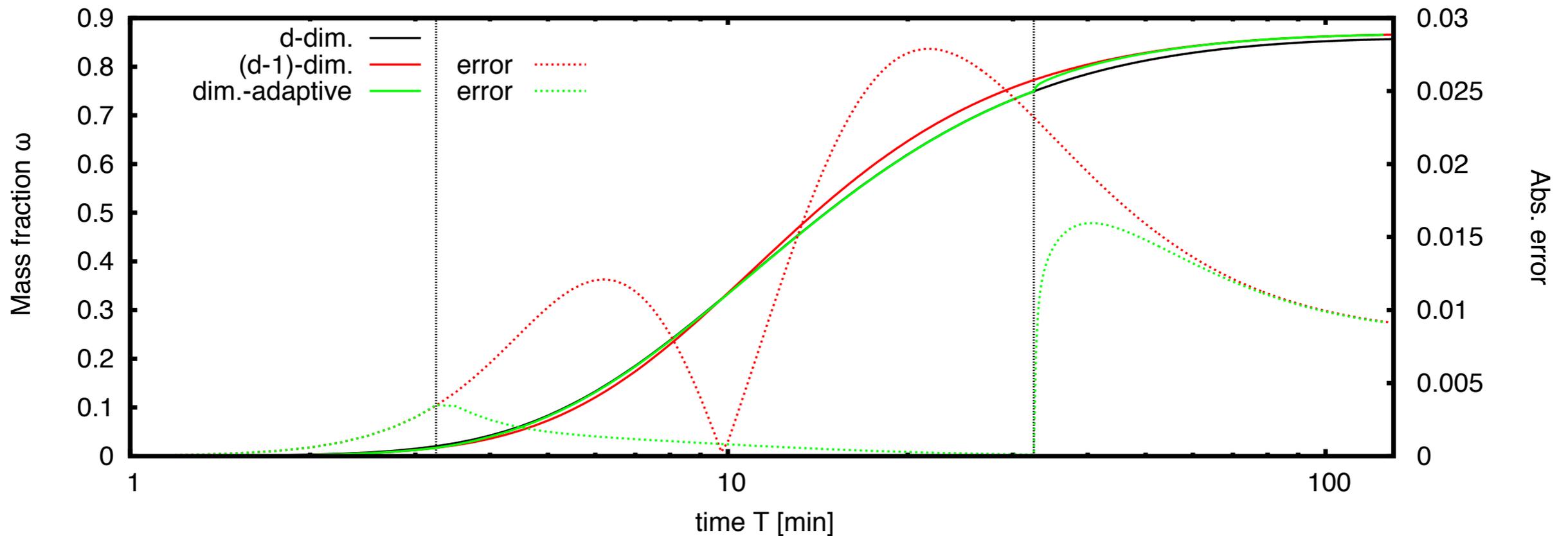


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

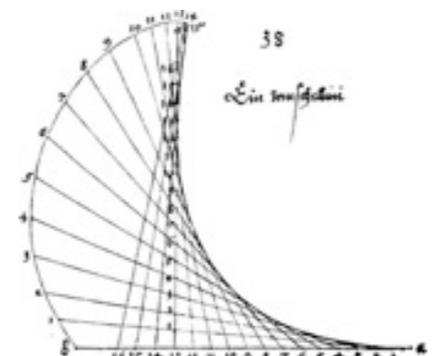


Dimensionsadaptivität

$$\epsilon = 0.024$$

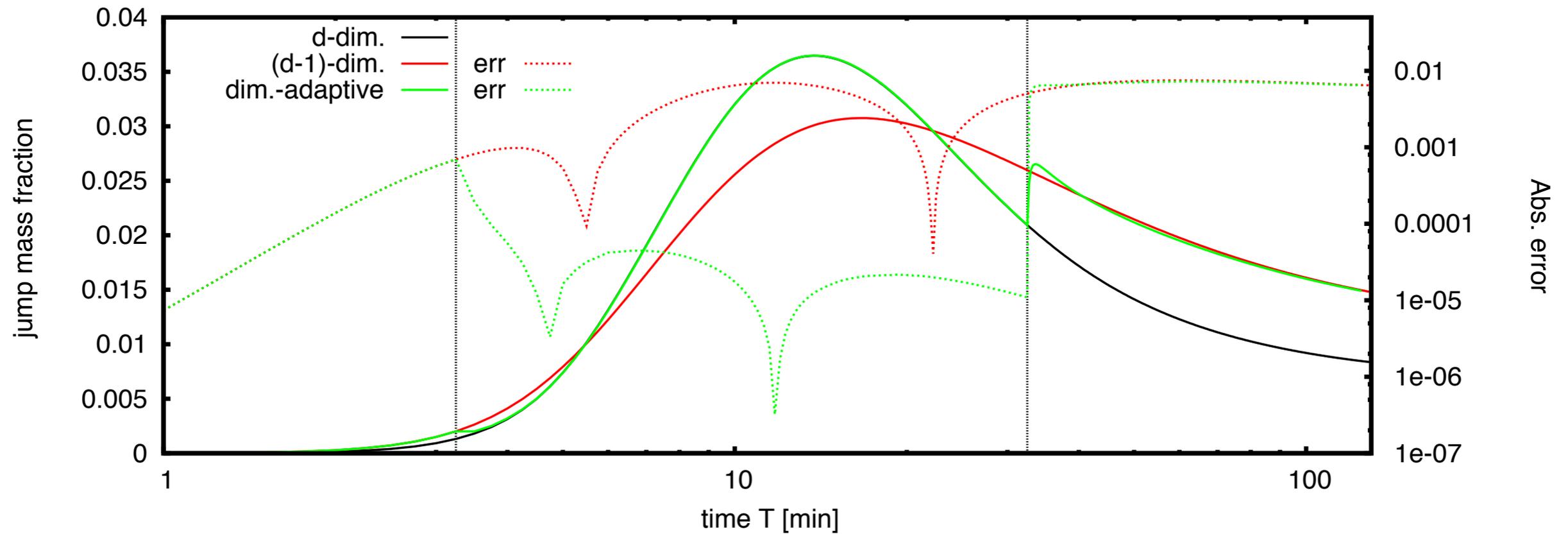


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

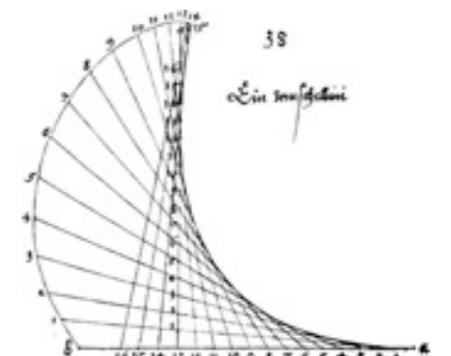


Dimensionsadaptivität

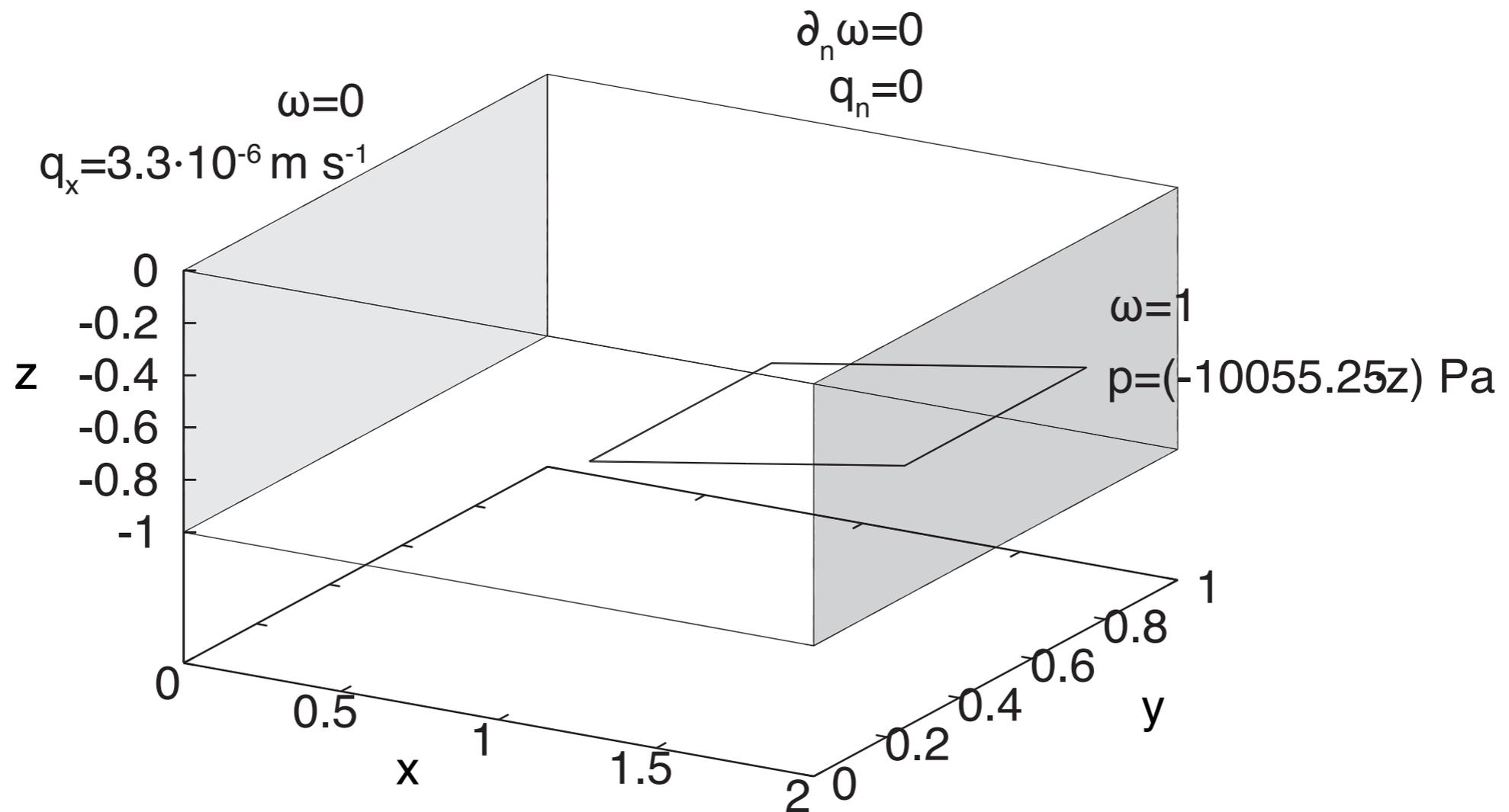
$$\epsilon = 0.024$$



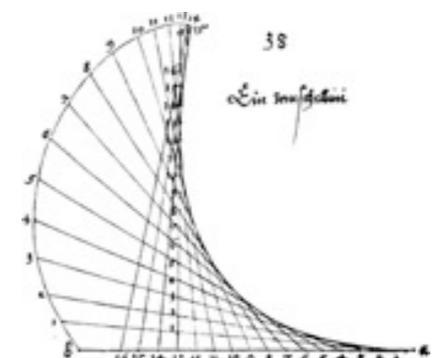
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



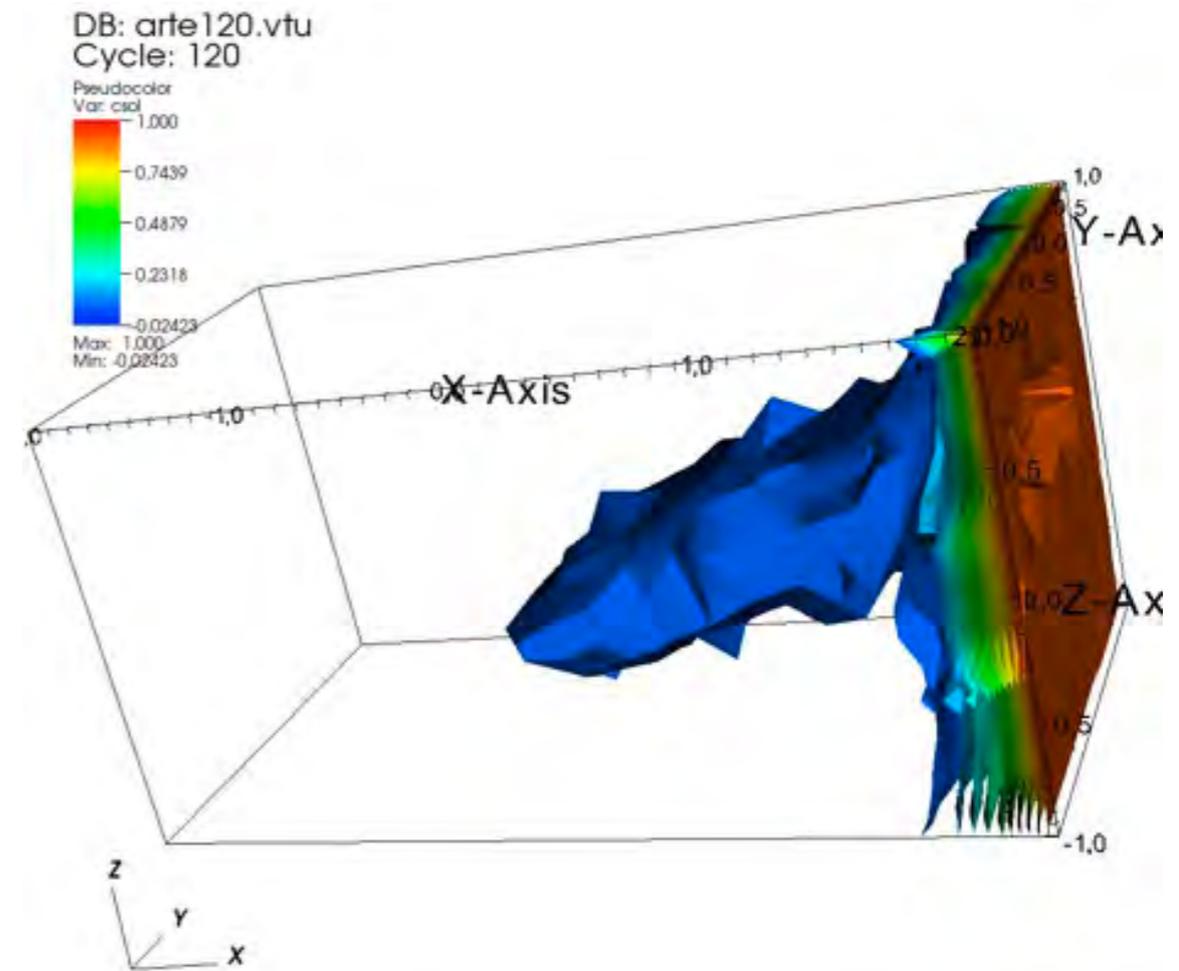
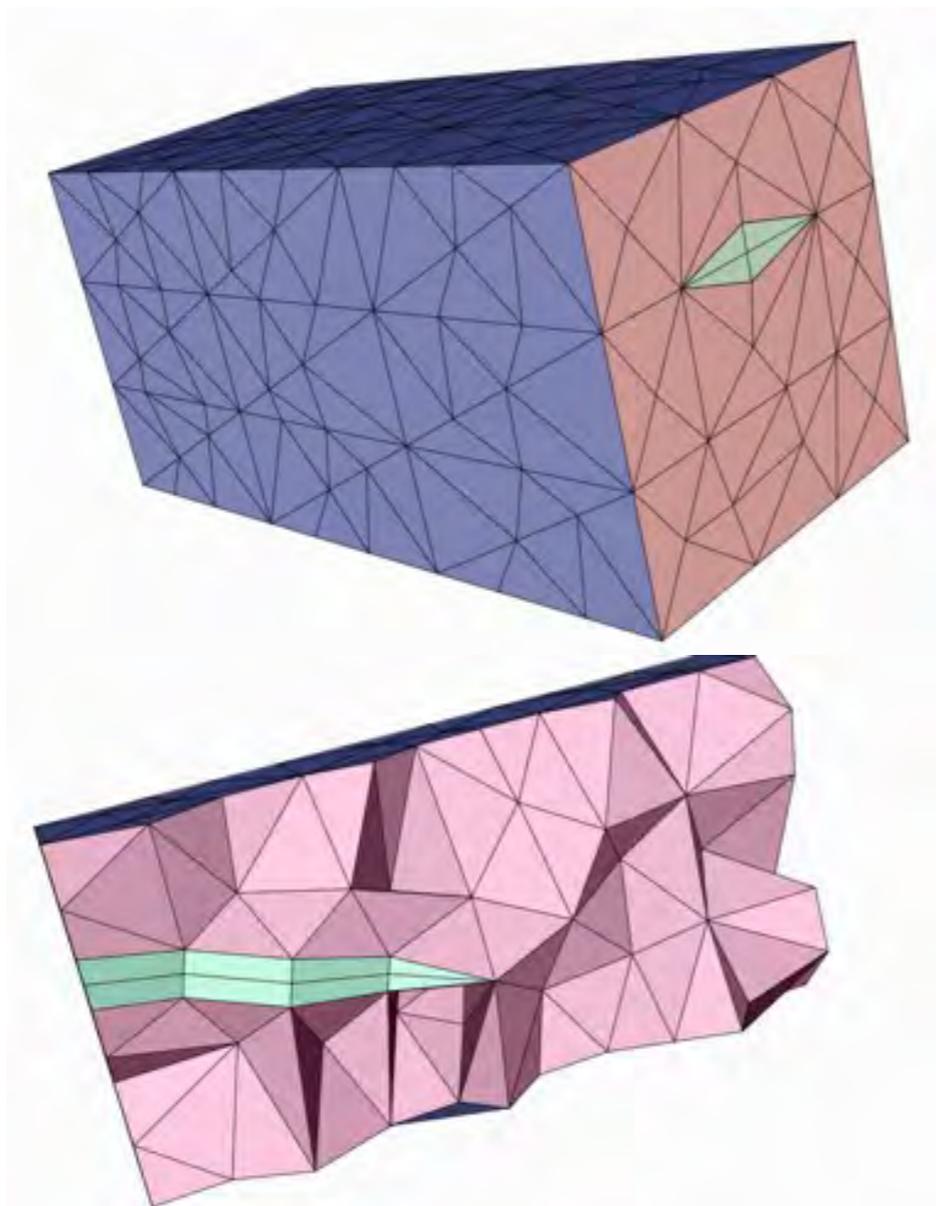
Henry in 3D



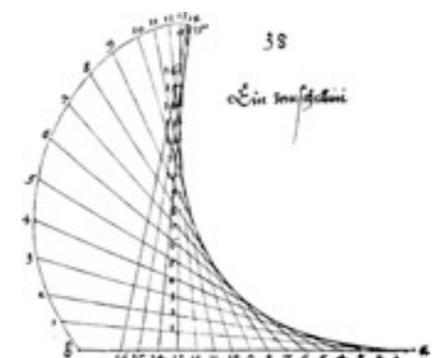
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



3d

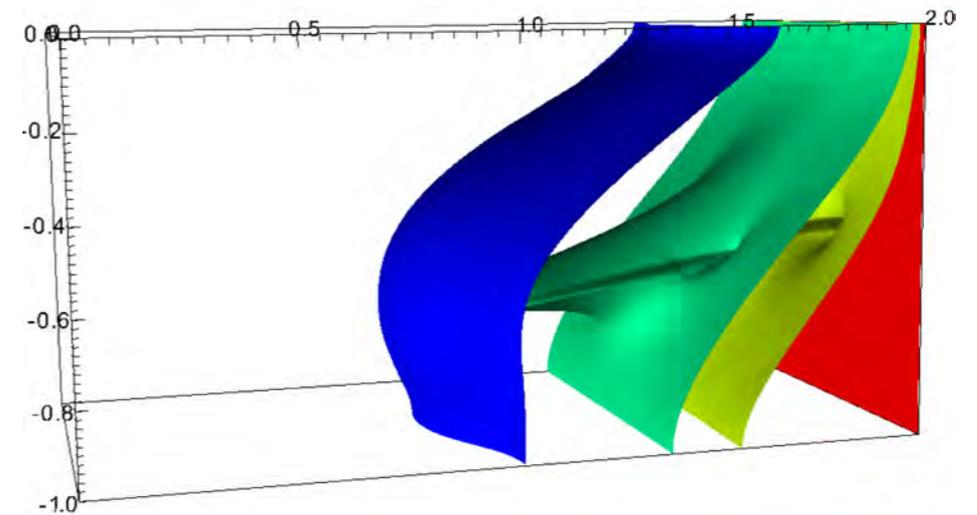
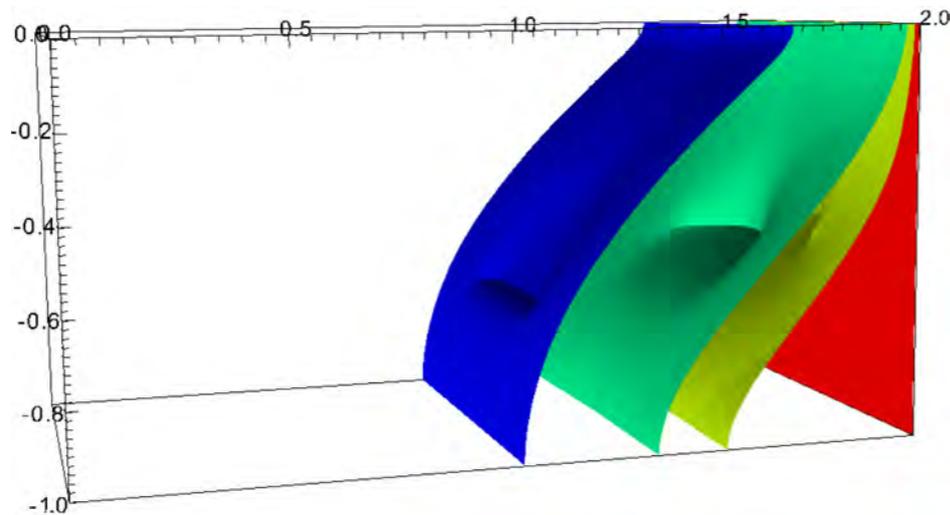


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

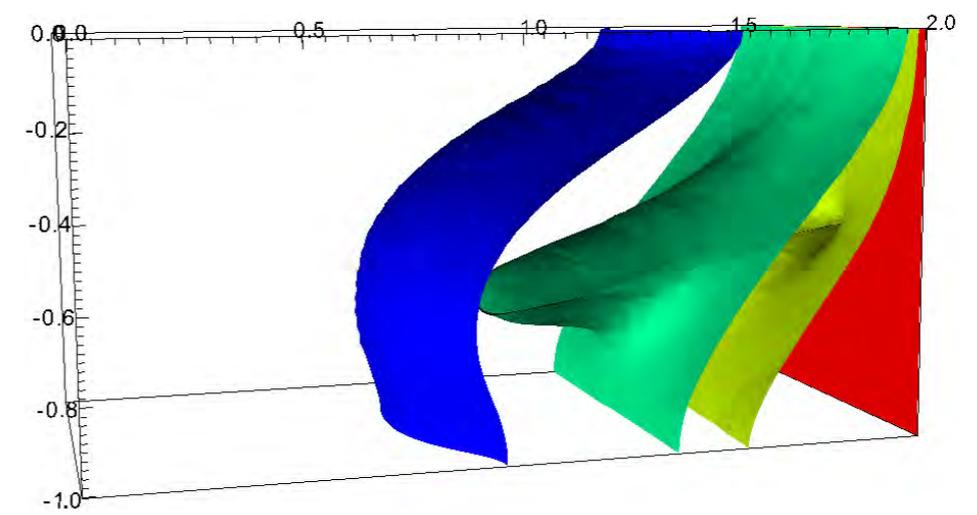
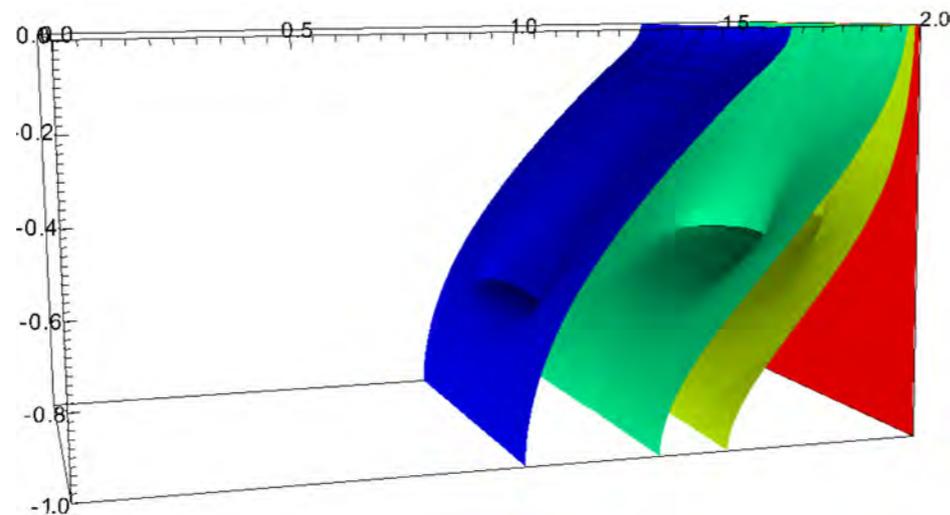


Vergleich 3d

d-dim.



(d-1)
-dim.

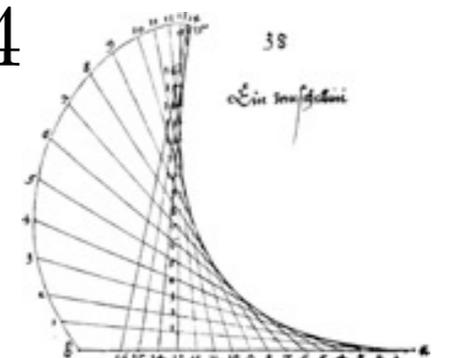


$$\epsilon = 0.003$$

$$\epsilon = 0.024$$

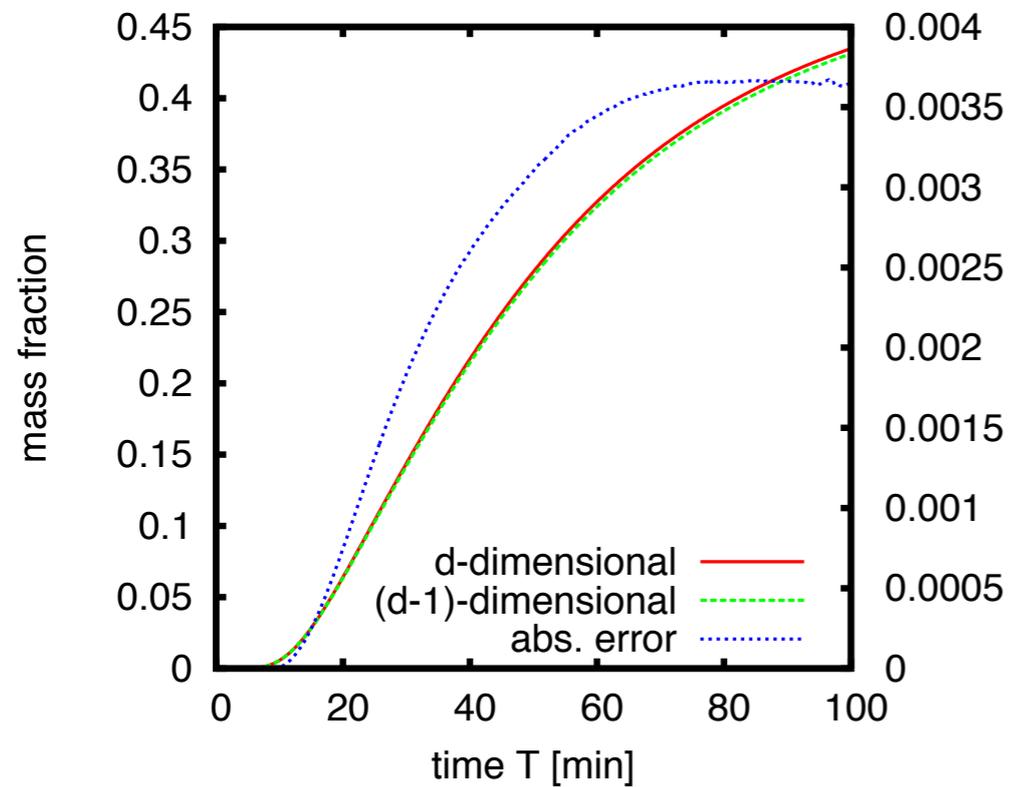


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

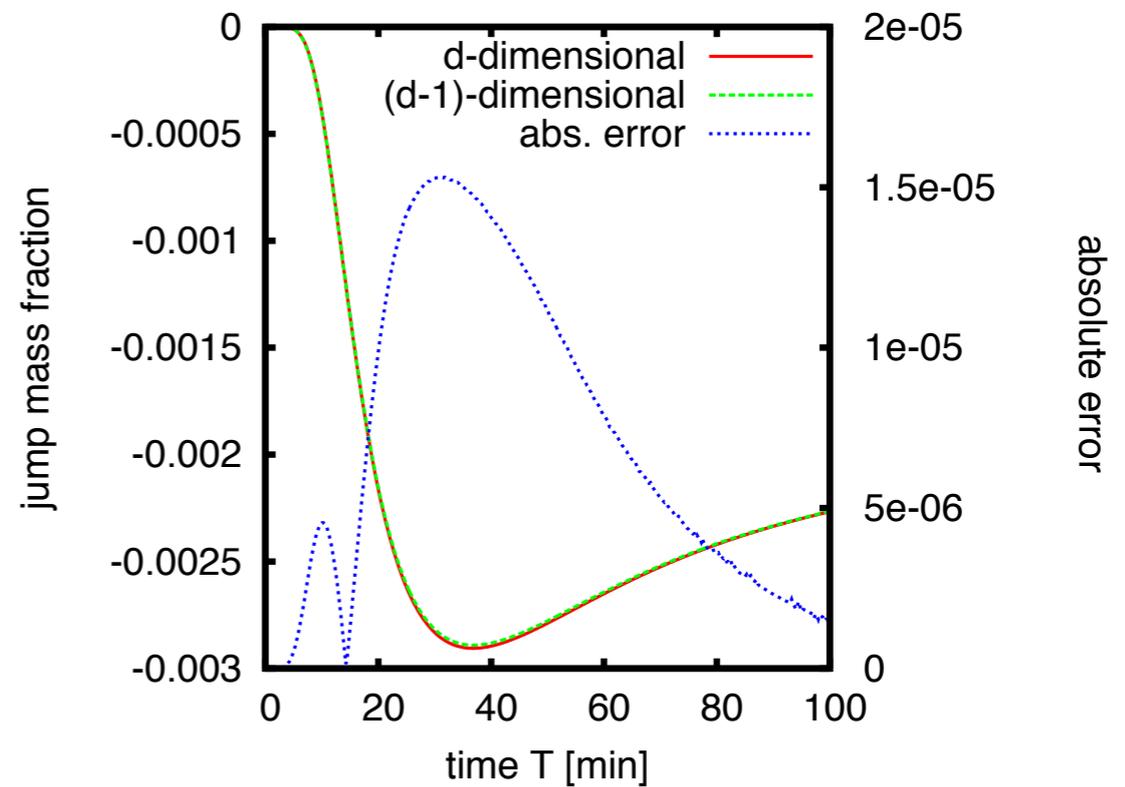


Vergleich in 3d

$$\epsilon = 0.003$$



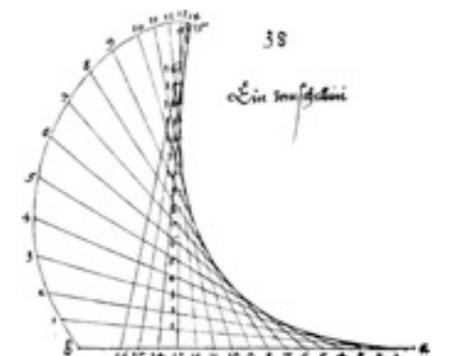
$$\omega$$



$$(\omega_b - \omega_a)$$

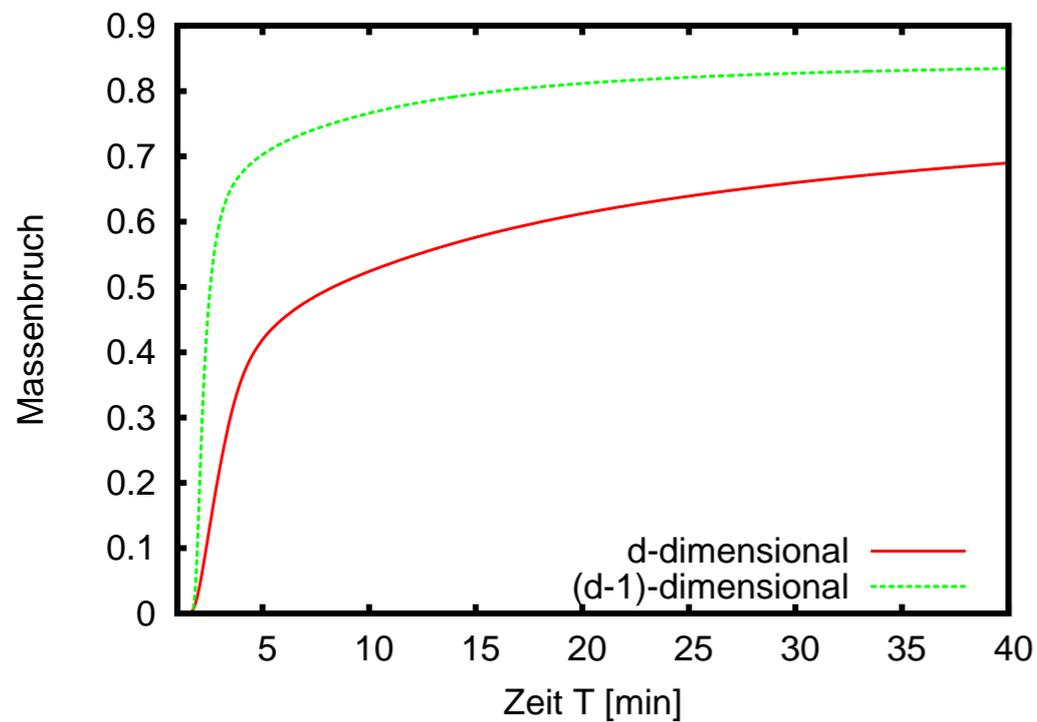


Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt

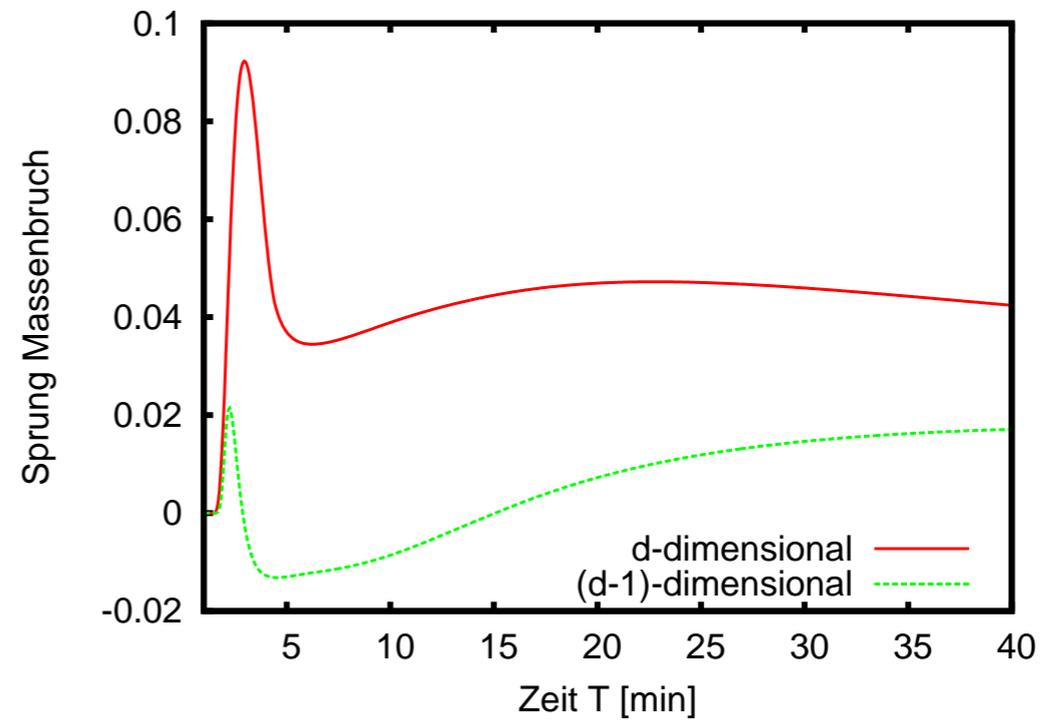


Vergleich in 3d

$$\epsilon = 0.024$$



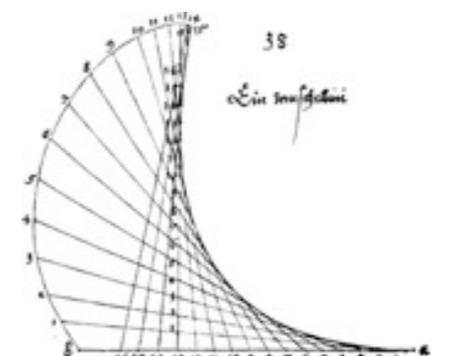
$$\omega$$



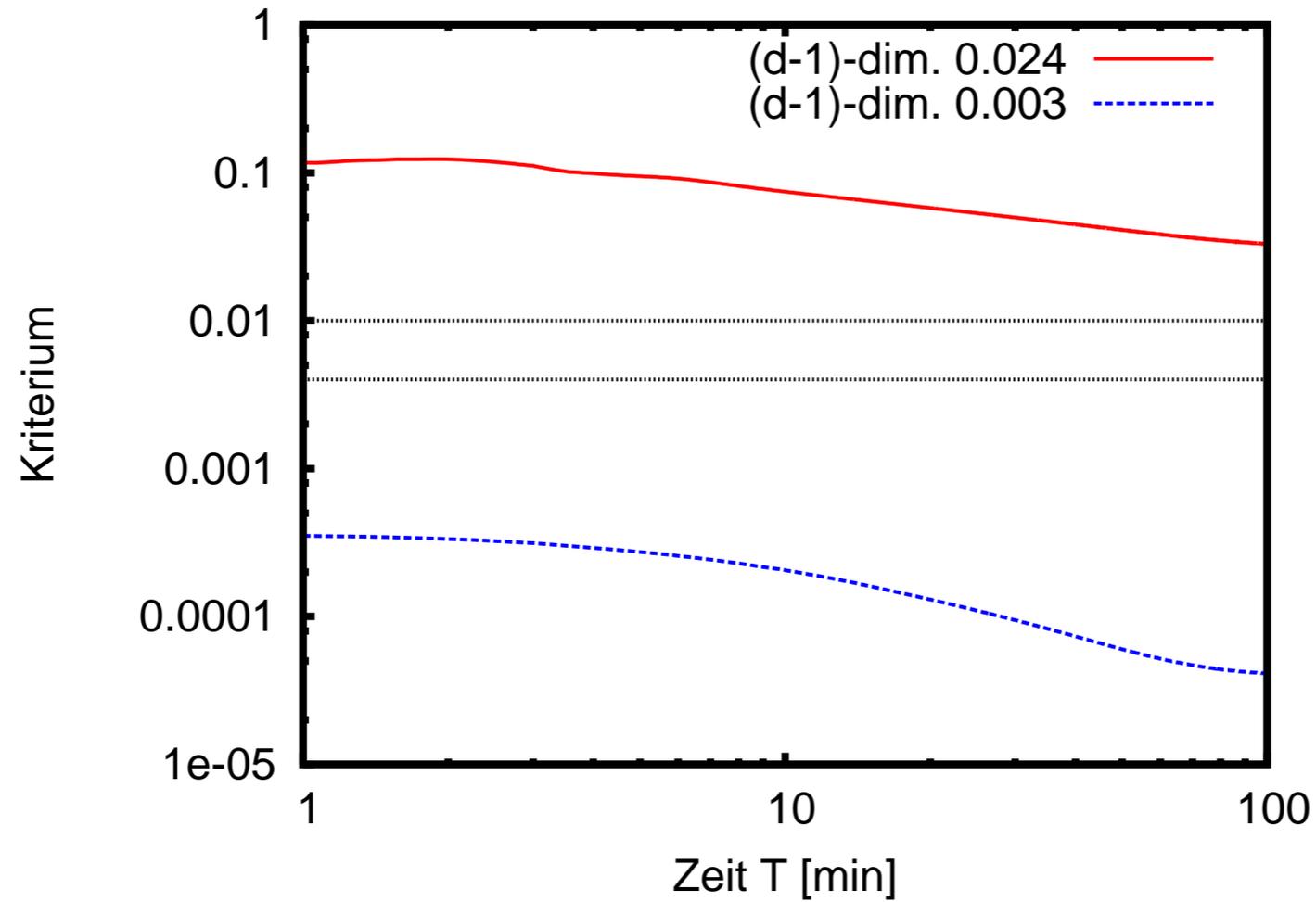
$$(\omega_b - \omega_a)$$



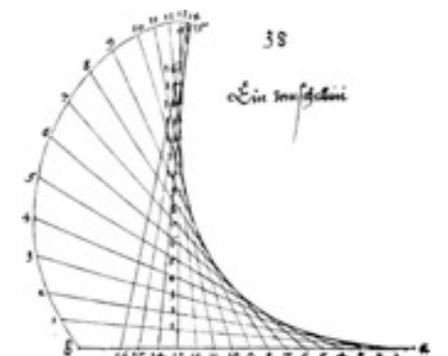
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Ergebnisse Kriterium



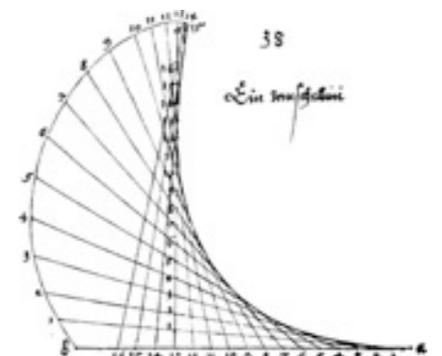
Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Vielen Dank!



Gabriel Wittum
G-CSC
University of Frankfurt



Verbundprojekt: Vergleich aktueller Stoffgesetze anhand von Modellberechnungen zum thermo-mechanischen Verhalten und zur Verheilung von Steinsalz

Andreas Hampel, Wissenschaftlicher Berater, Mainz

Abstract

Since 2004, three Joint Projects on the Comparison of Constitutive Models for the Thermo-Mechanical Behavior of Rock Salt have been funded by two German Federal Ministries: the Ministry of Education and Research (BMBF), and the Ministry of Economics and Technology (BMWi). The general objectives have been to document, check, and compare with benchmark calculations current constitutive models and modeling procedures, to validate their suitability and reliability, to increase confidence in the results of numerical simulations performed with the models, and to enhance the acceptance of the results and conclusions. The projects have also indicated possibilities for the further development and improvement of the models.

The first project phase (2004-2006) aimed at the demonstration, check, and comparison of the capabilities of the considered models to describe reliably the basic relevant deformation phenomena in rock salt: transient and steady-state creep, evolution of damage and dilatancy, failure, post-failure behavior and residual strength. In the second phase (2007-2010), the suitability of the models to perform 3-D simulations, predictions of the future behavior, and calculations of the permeability in damaged salt was investigated.

The third project phase started in October 2010. Here, the focus is on the modeling of the temperature influence on deformation and the modeling of sealing and healing of damaged rock salt. This third study is carried out by the following project partners:

- Dr. Andreas Hampel, Scientific Consultant, Mainz, Germany
- Institut für Gebirgsmechanik GmbH (IfG), Leipzig, Germany
- Technische Universität Clausthal (TUC), Clausthal-Zellerfeld, Germany
- Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Germany
- Leibniz Universität Hannover (LUH), Germany
- Technische Universität Braunschweig (TUBS), Germany
- Sandia National Laboratories (SNL), Albuquerque, NM, USA (associated partner).

This project phase comprises the performance and back-calculations of specific laboratory tests as well as simulations of the following in-situ structures: The modeling of temperature influence in situ is demonstrated by means of benchmark calculations of a heated borehole in the Asse II salt mine in Germany; the results are compared with each other and with in-situ measurements of the Netherlands Energy Research Foundation ECN. The modeling of sealing/healing of pre-damaged rock salt in the underground are studied with simulations of a drift in the Asse II salt mine. The drift was excavated in 1911, and a 25 m long section was lined after 3 years with a cast-steel tube and concrete. The simulation results will be compared with each other and with data from in-situ permeability measurements of the GRS within the ALOHA2 project. The measurements were performed 85 years after the installation of the liner in the rock salt behind the bulkhead.

The partners intend to extend the project by 2 ½ more years (until 2016) in order to perform benchmark simulations with the considered models of an isothermal and a heated drift at the Waste Isolation Pilot Plant (WIPP) in New Mexico. The study is planned to be accompanied by an extensive laboratory test program with different types of WIPP salt to generate data for the parameter determination for this salt type. The extended work will deepen the US-German collaboration in Joint Project III.

10. Projektstatusgespräch zu BMWi- und BMBF-geförderten FuE-Projekten der
Endlagerforschung und der Nuklearen Sicherheitsforschung

Projektträger Karlsruhe, Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)

Karlsruhe, 13.-14. November 2012

**Verbundprojekt III:
Vergleich aktueller Stoffgesetze anhand von Modellberechnungen
zum thermo-mechanischen Verhalten und zur Verheilung von Steinsalz**



Dr. Andreas Hampel

Gefördert durch



Bundesministerium
für Wirtschaft
und Technologie

Verbundprojekt III zum Stoffgesetzvergleich für Steinsalz



Dr. Andreas Hampel
Scientific Consultant



Institut für
Gebirgsmechanik GmbH
Leipzig



Technische
Universität
Braunschweig



Leibniz
Universität
Hannover



Betreut durch



PTKA
Projektträger Karlsruhe
im Karlsruher Institut für Technologie



Joint Project III on the Comparison of Constitutive Models for Rock Salt

BMW Grant No.	Project Partners	
02E10810	Hampel Consulting, Mainz	A. Hampel
02E10820	Technische Universität Clausthal (TUC)	K. Herchen, R. Wolters, K.-H. Lux
02E10830	Institut für Gebirgsmechanik (IfG), Leipzig	R.-M. Günther, K. Salzer, W. Minkley
02E10840	Karlsruher Institut für Technologie (KIT)	A. Pudewills
02E10850	Leibniz Universität Hannover (LUH-IUB)	S. Yildirim, B. Leuger, D. Zapf, K. Staudtmeister, R. Rokahr
02E10860	Technische Universität Braunschweig (TUBS)	A. Gährken, C. Missal, J. Stahlmann
associated	Sandia National Laboratories (SNL)	J.G. Arguëllo, J. Bean, J. Holland, F. Hansen





Three Joint Projects on the Comparison of Constitutive Models for Rock Salt

Project	Period	Title	Main Objectives: Document, check and compare
I	04/2004 – 11/2006	The Modeling of the Mechanical Behavior of Rock Salt: Comparison of Current Constitutive Models and Modeling Procedures	<ul style="list-style-type: none"> capabilities of the models to describe reliably the basic relevant deformation phenomena in rock salt
II	08/2007 – 07/2010	Comparison of Current Constitutive Models and Modeling Procedures with 3-D Calculations of the Mechan. Long-term Behavior of an Underground Structure in Rock Salt	suitability of the models to perform <ul style="list-style-type: none"> 3-D simulations, predictions of the future behavior, calculation of permeability
III extens. (intent)	10/2010 – (01/2014) 09/2016	Comparison of Current Constitutive Models and Modeling Procedures with Calculations of the Thermo-mechanical Behavior and Healing of Rock Salt	<ul style="list-style-type: none"> modeling of the temperature influence on the deformation behavior modeling of sealing/healing of damaged rock salt with the models simulations of Rooms B & D at WIPP (WIPP benchmark on T influence)





Partner	Constitutive Model	Numerical Code
Hampel	CCDM	FLAC3D (finite difference code)
IfG Leipzig	Günther/Salzer	FLAC3D (finite difference code)
IfG Leipzig	Minkley	FLAC3D (finite difference code)
KIT	KIT model	ADINA (finite element code)
TUC	Lux/Wolters	FLAC3D (finite difference code)
LUH-IUB	Lubby - MDCF	FLAC3D (finite difference code)
TUBS	Döring	FLAC3D (finite difference code) ANSYS (finite element code)
Sandia	MD	SIERRA Mechanics Code Suite (various coupled codes)





Work packages:

- Document the current status of considered constitutive models
- Plan and perform specific laboratory tests: T influence, healing
- Determine salt type-specific model parameter values based on results of laboratory tests
- Select and define in-situ structures for benchmark simulations
- Perform simulations of selected in-situ structures
- Compare the simulation results with each other and with experimental results
- Document models, parameter determinations, procedures, simulation results, comparisons, conclusions





General Procedure for Parameter Determination

1. At first, all salt type-specific parameter values of a constitutive model are determined with back-calculations of laboratory tests.
=> In lab tests, the various deformation phenomena are investigated under precisely defined conditions and partially independently of each other.
2. Then, a fine-tuning of parameter values is performed with an adjustment of the constitutive model to experimental data from in-situ measurements.
=> Take specific location into account and reduce effects of simplifications.

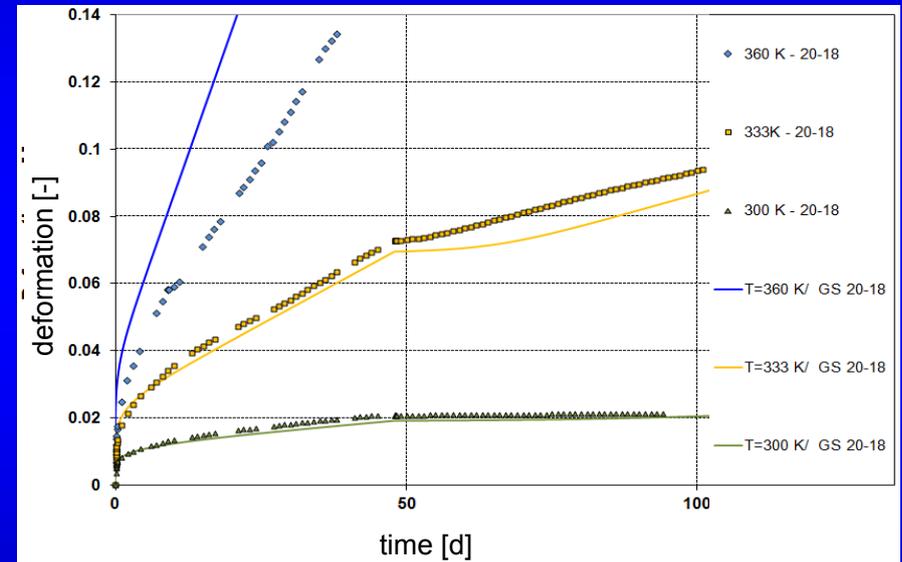
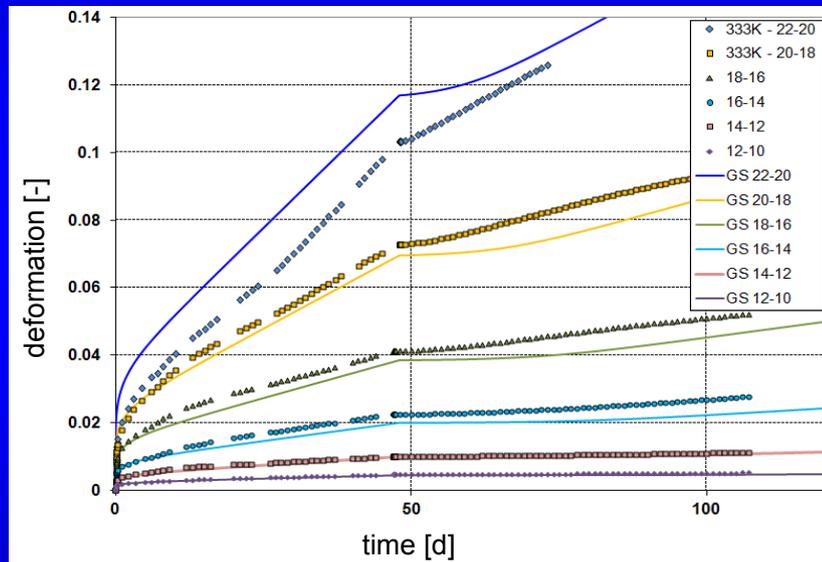




I. Modeling of the in-situ thermo-mechanical behavior of rock salt

Determine salt type-specific parameter values (1)

Back-calculations of creep tests (different σ_{eff} , different T)
with one unique salt type-dependent set of parameter values



T = 60 °C
 σ_{min} = 20 MPa
 σ_{eff} = 22-20, 20-18, 18-16,
 16-14, 14-12, 12-10 MPa

(examples: IfG-G/S)
 Asse-Speisesalz

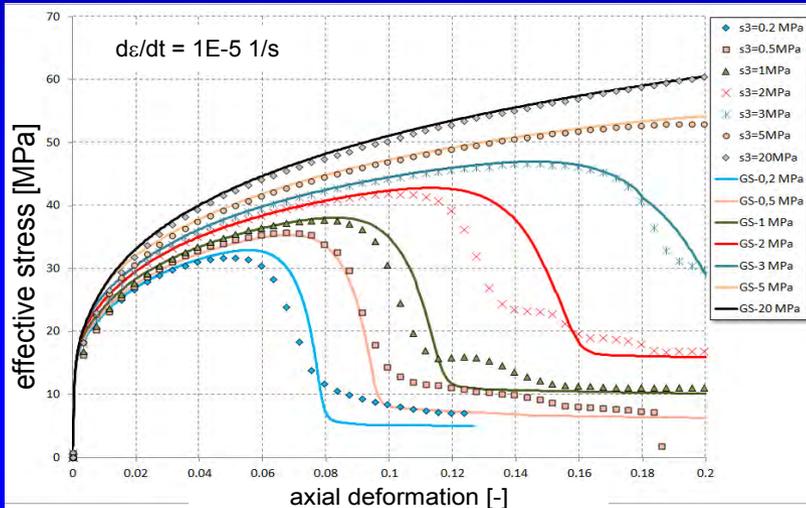
T = 27, 60, 87 °C
 σ_{min} = 20 MPa
 σ_{eff} = 20-18 MPa



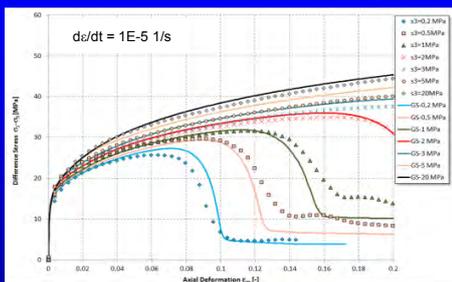
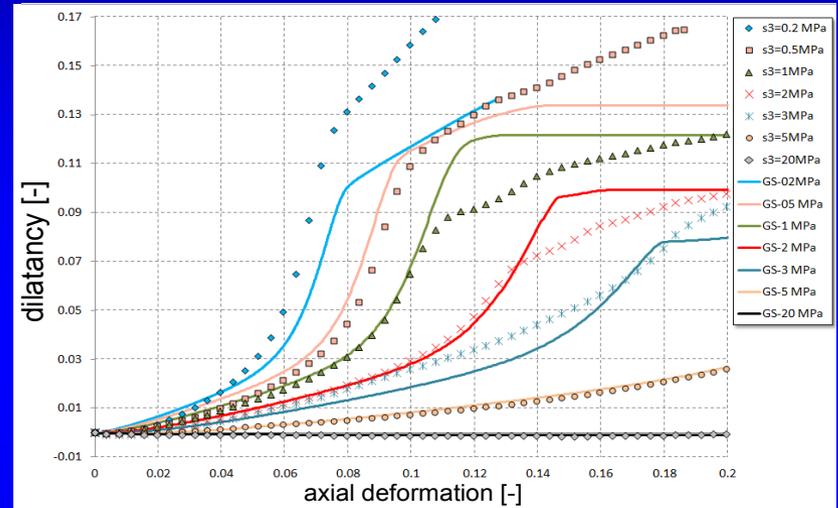


Determine salt type-specific parameter values (2)

Back-calculations of strength tests (different σ_{min} , different T) with the same unique salt type-dependent set of parameter values



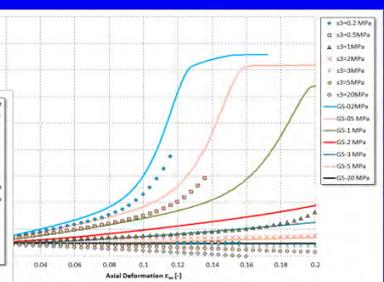
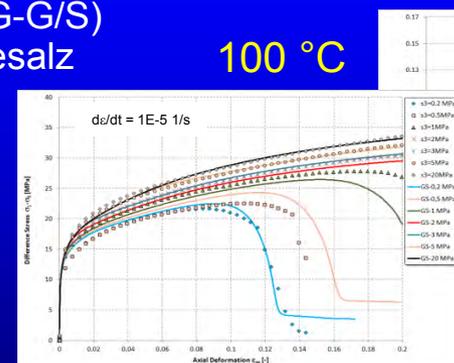
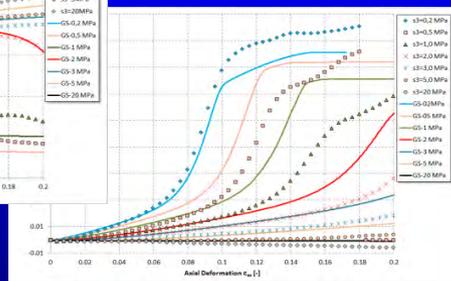
27 °C



60 °C

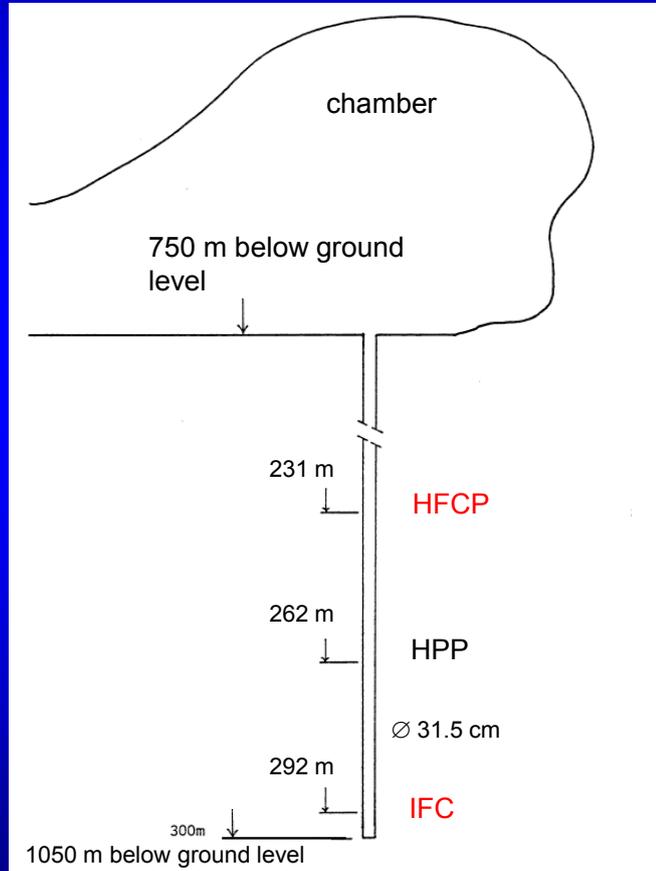
(examples: IfG-G/S)
Asse-Speisesalz

100 °C



I. Modeling of the in-situ thermo-mechanical behavior of rock salt

Simulations of ECN in-situ experiments in a deep 300 m long borehole in the Asse II salt mine



1) Isothermal Free Convergence (IFC)

borehole depth: 292 m

simulation: 1200 days: $T = 42$ °C

2) Heated Free Convergence Probe (HFCP)

borehole depth: 231 m

simulation: 1309 days: $T = 40.8$ °C

19 days: $T = 40.8 \rightarrow 229$ °C

3 days: free cooling down

L.H. Vons, 1984: report ECN-84-35

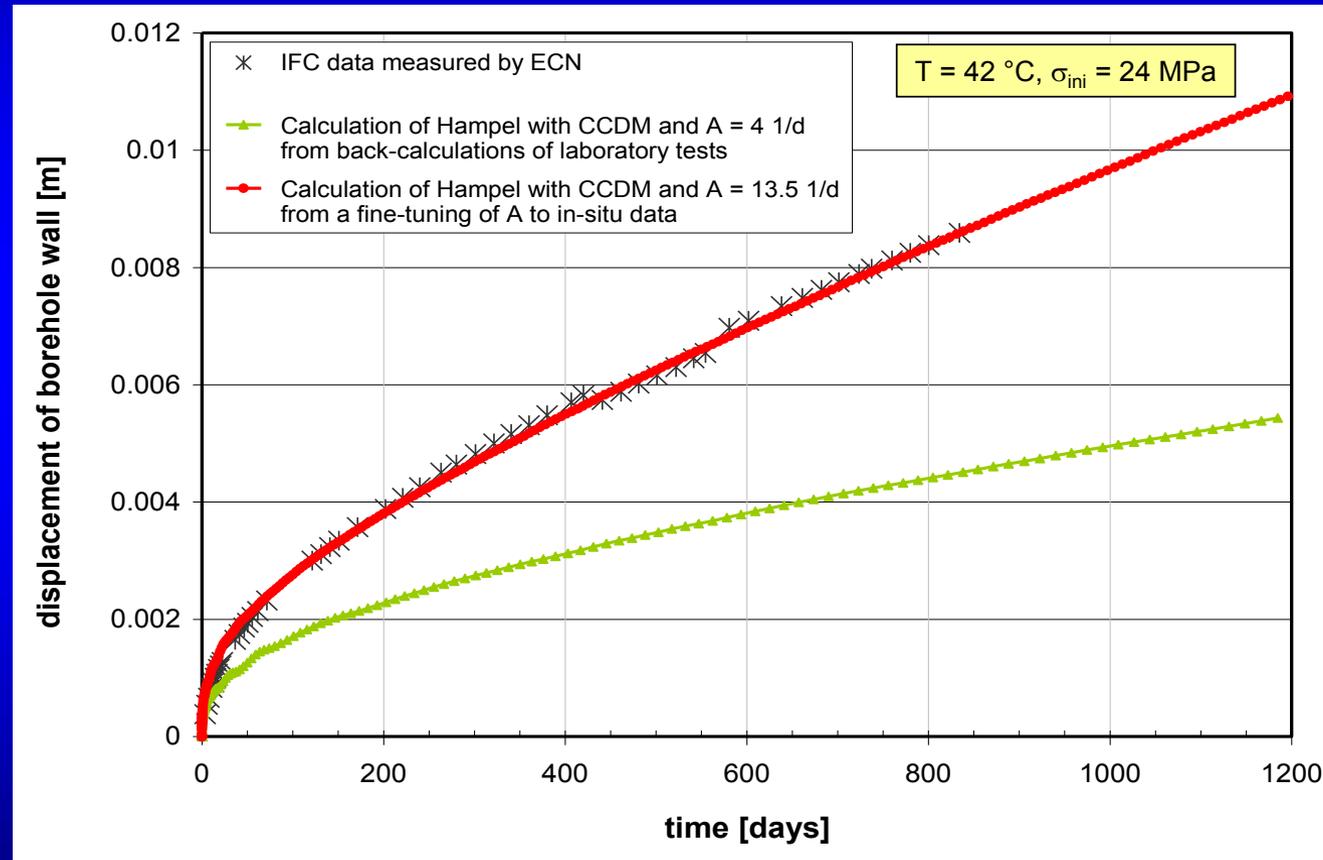
J. Prij & A. de Ruiter, 1985: report ECN-85-31

M.J.S. Lowe & N.C. Knowles, 1989: *Final report of COSA II project*



1) Simulation of Isothermal Free Convergence (IFC)

Fine-tuning of parameter value(s) with adjustments of model curve(s) to in-situ data
(location-related adjustment)



Origin of difference:

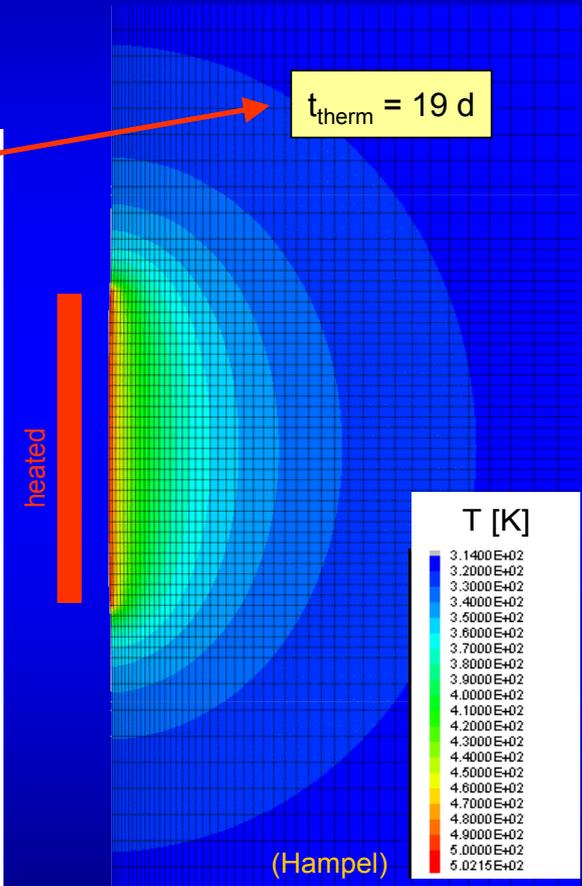
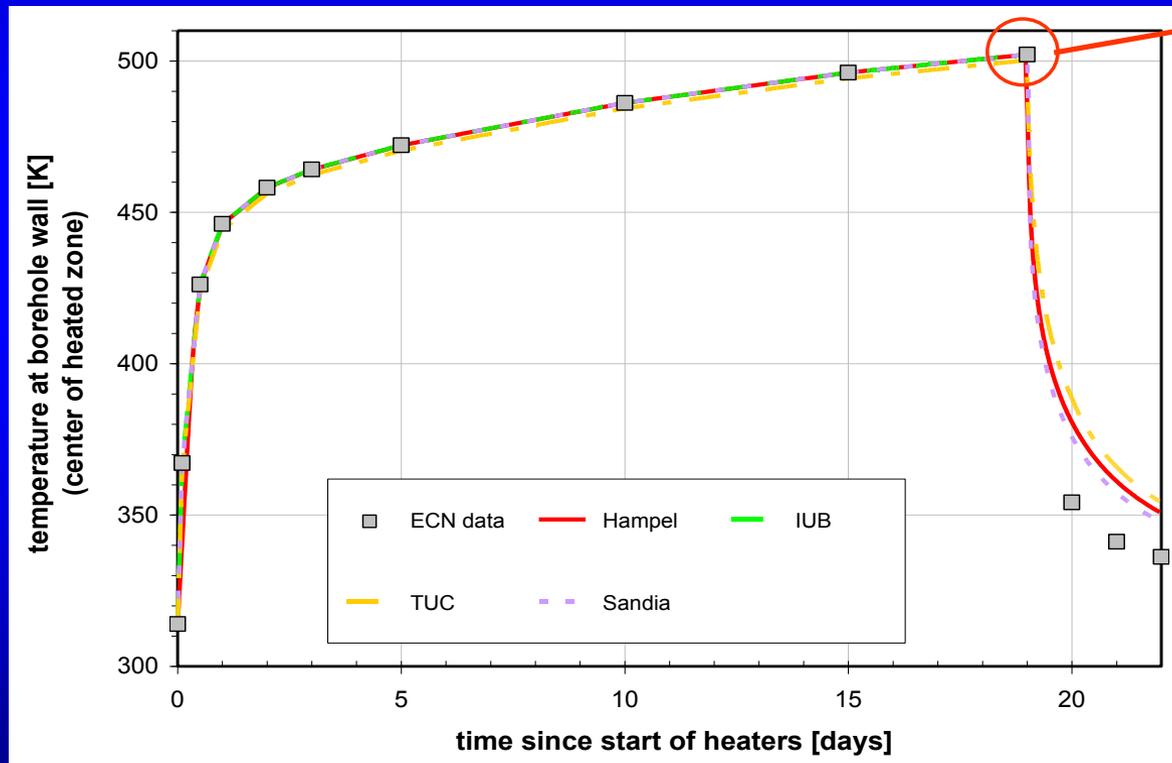
- ECN reports on humidity in borehole (=> higher def. rate)
- laboratory specimens were not taken from borehole location
- not exactly same salt types:
lab: Asse-Speisesalz,
borehole: Hauptsalz
- exact in-situ primary stress state is unknown (24 MPa is an assumption)





2) Simulation of Heated Free Convergence Probe (HFCEP)

Temperature profile: $t_{\text{therm}} = 0 \dots 19$ d: heating phase
 $t_{\text{therm}} = 19 \dots 22$ d: free cooling down
 -> input for simulations

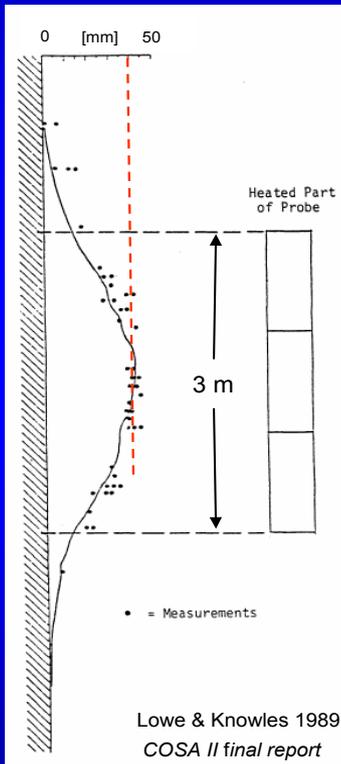




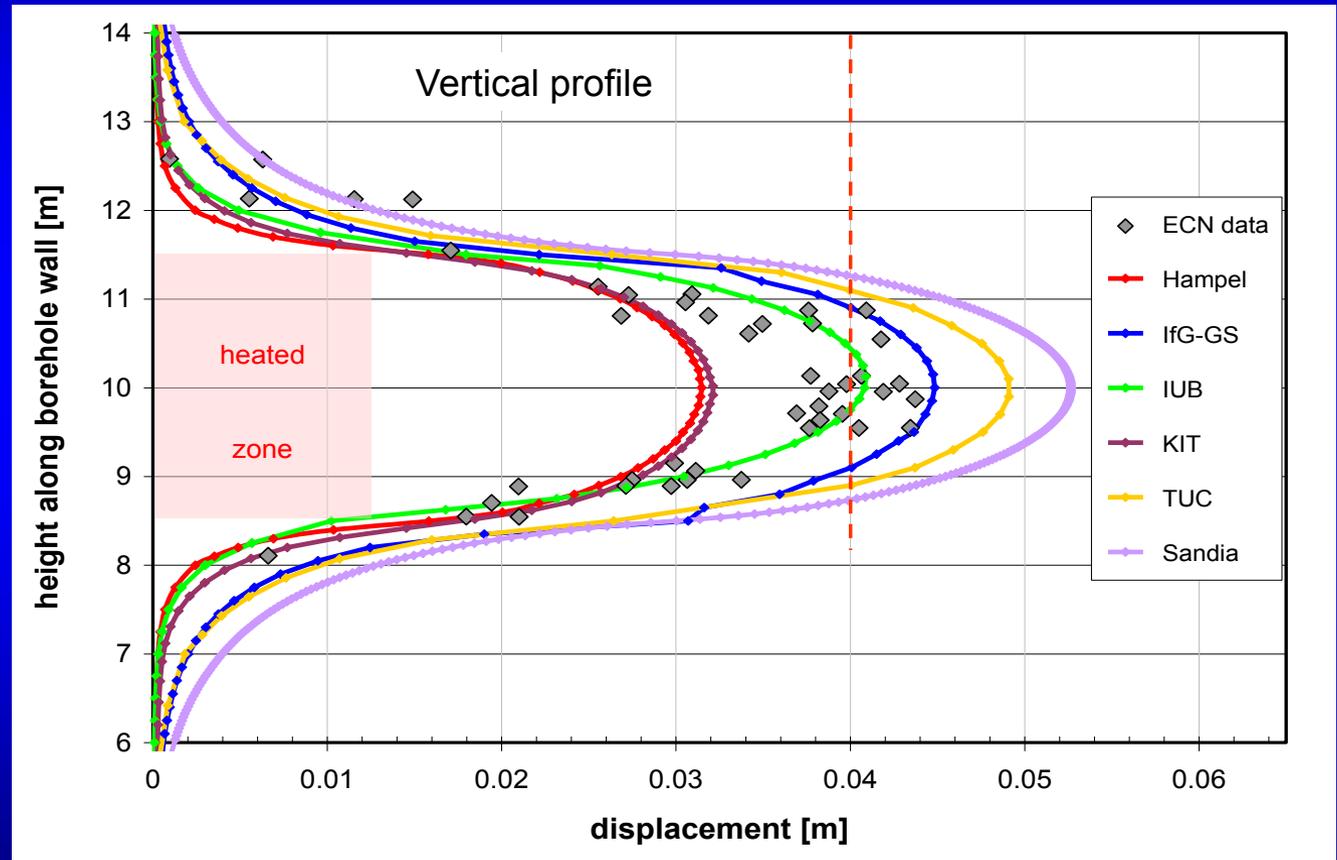
2) Simulation of Heated Free Convergence Probe (HFCEP)

with parameter values from adjustments to lab. tests and fine-tuning to in-situ data

displacement of borehole wall at the end of the simulation



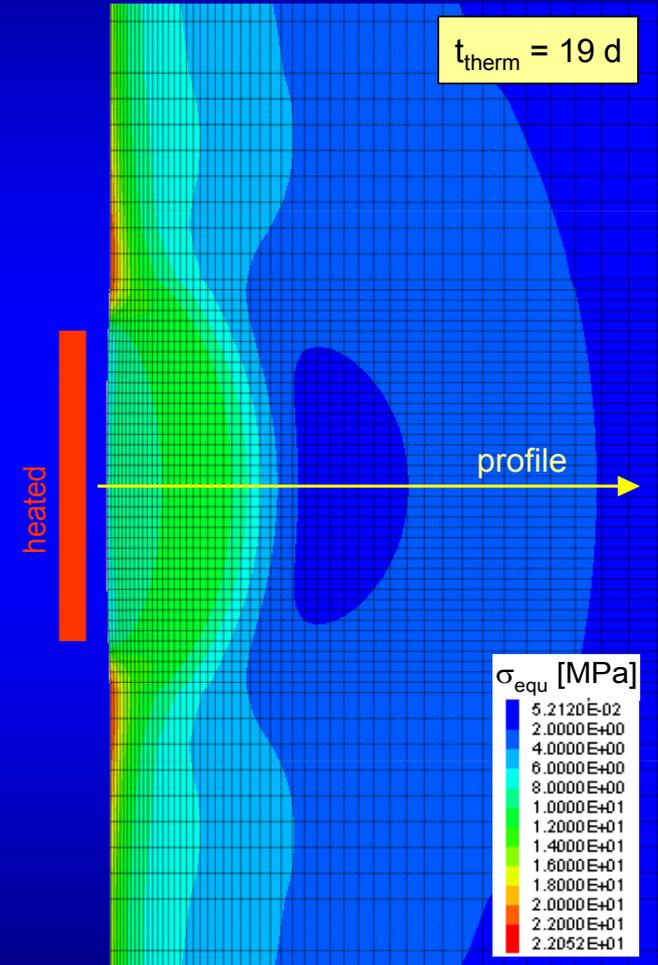
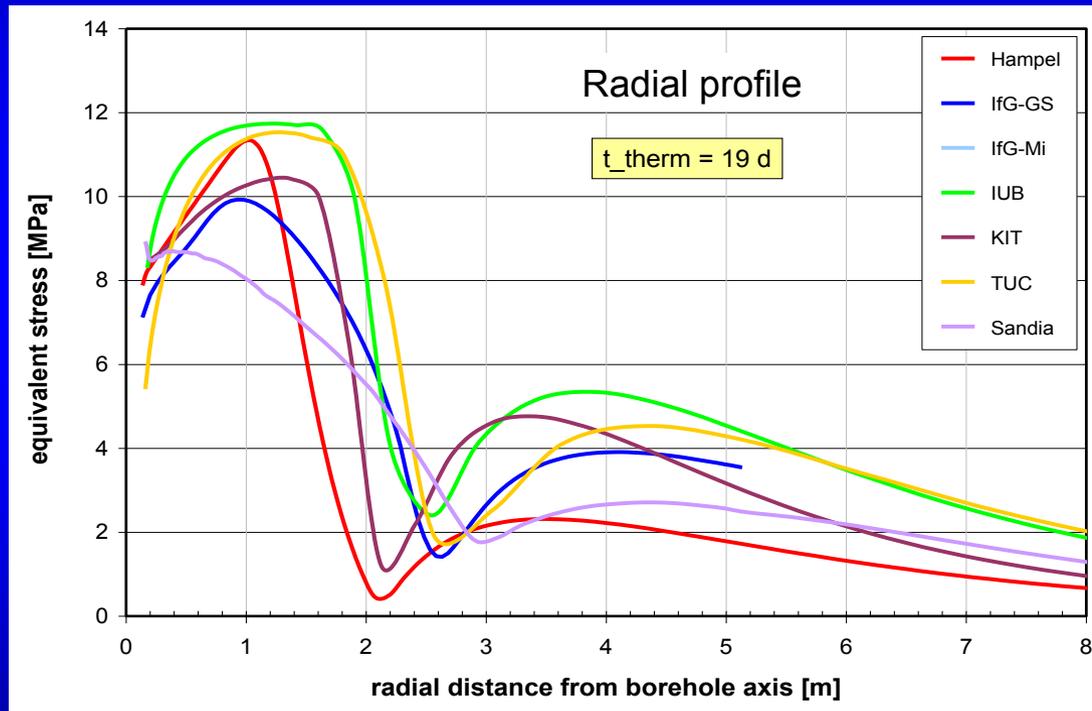
ECN measurement after HFCEP





2) Simulation of Heated Free Convergence Probe (HFCP)

equivalent stress at the end of heating ($t_{\text{therm}} = 19 \text{ d}$)





II. Modeling of Sealing/Healing of Rock Salt

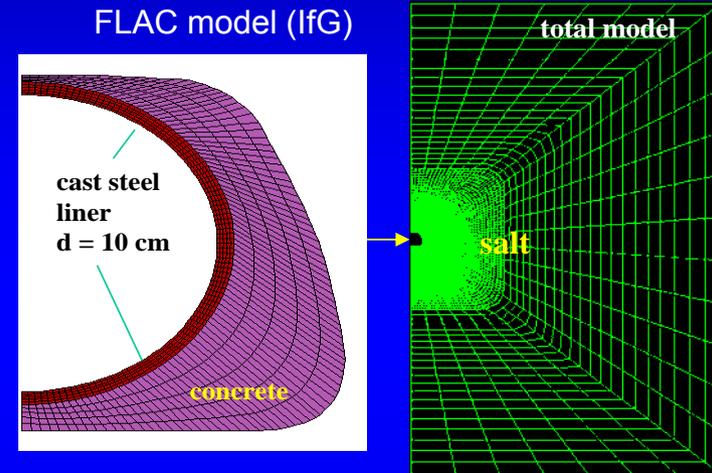
2. Simulations of rock salt around a bulkhead at 700 m level in the Asse II salt mine

1911: drift excavated

1914: a 25 m long section lined
with a cast steel tube,
residual gap filled with concrete

1998-2003: ALOHA2 project (GRS):
EDZ permeability measurements
in salt behind the liner (gas injection)

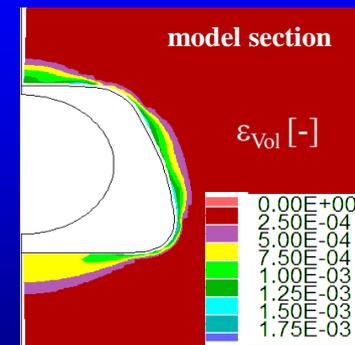
=> partial healing around the lined section



first result (IfG-GS):

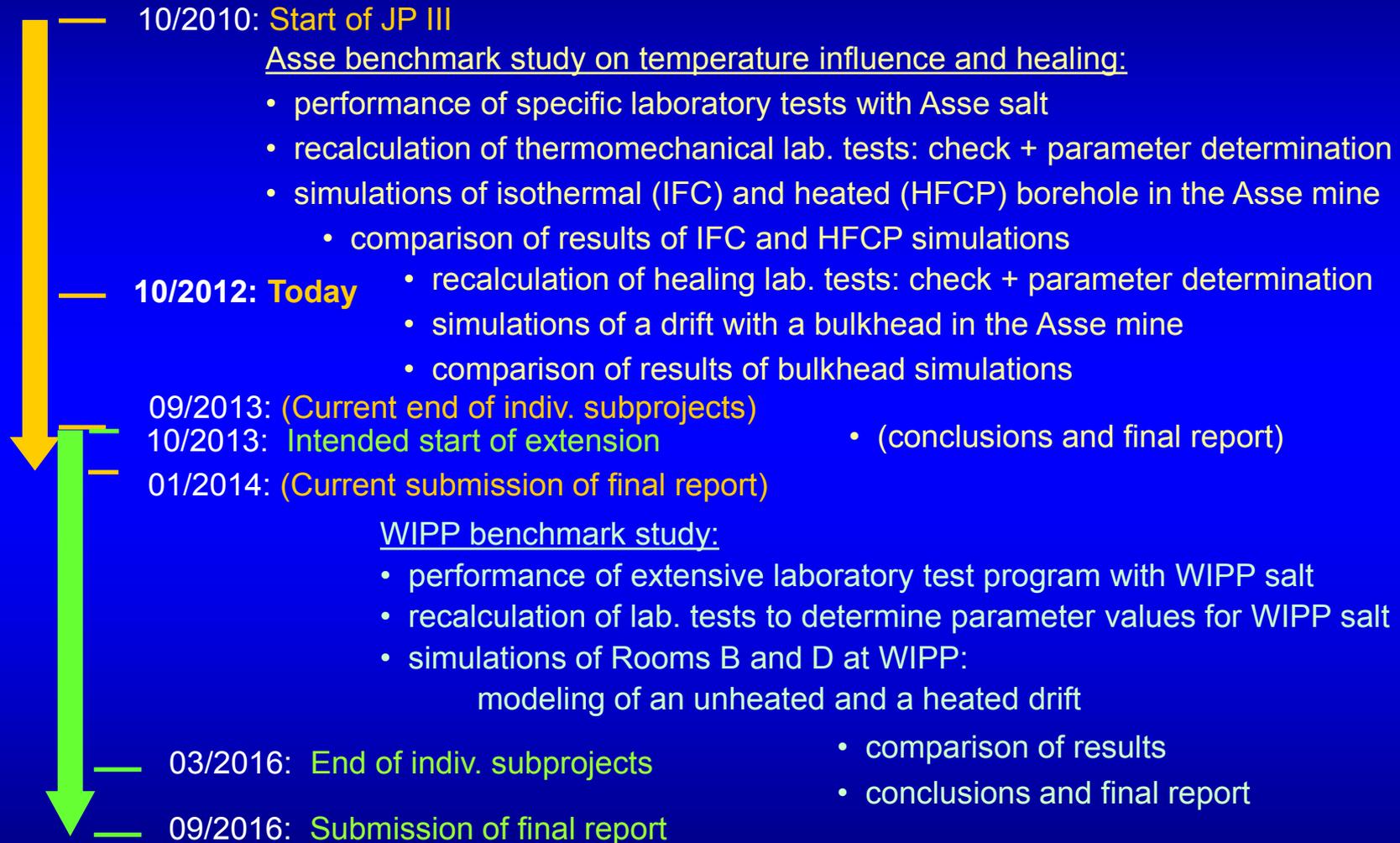
dilatancy after 89 years
of convergence

(calc. without healing)





Conclusion: **Current Status of Joint Project III** & **Intended Extension**



Projekt VIRTUS

-Virtuelles Untertagelabor im Salz

Tilmann Rothfuchs (GRS), Steffen Masik (IFF),
Joachim Behlau (BGR), Michael Jobmann (DBETEC)

1 Ausgangssituation und Zielsetzung

Alle Länder, in denen Kernkraftwerke zur Stromproduktion betrieben werden, verfolgen zur Entsorgung von dabei entstehenden hochradioaktiven Abfällen gemäß internationalem Konsens [1] Konzepte der Endlagerung in tiefen geologischen Formationen. Als mögliche Wirtsgesteine, die zur Aufnahme eines Endlagers geeignet sind, werden in Deutschland in erster Linie Salz und Tonformationen betrachtet.

Um für die Errichtung eines Endlagers in tiefen geologischen Formationen notwendige Erfahrungen zu erlangen, bzw. um hinreichende Kenntnisse über das Verhalten des Wirtsgesteins zu erwerben, werden in einigen Ländern nach Empfehlungen der OECD-Nuclear Energy Agency (NEA) [2] Untertagelabors (engl. Underground Research Laboratory (URL)) betrieben. Deutschland betreibt derzeit kein eigenes Untertagelabor und im Wirtsgestein Salz wird derzeit auch andernorts kein Untertagelabor betrieben. Um dem forschenden Wissenschaftler und dem Endlagerbetreiber dennoch ein leistungsfähiges Instrument zur Bewertung der in einem Endlager ablaufenden Prozesse und zur Erprobung von Endlagerkonzepten bereit zu stellen, wurde die Idee eines virtuellen Untertagelabors entwickelt.

Mit einer entsprechenden Software soll den an Endlagerprojekten beteiligten Institutionen ein Instrument an die Hand gegeben werden, mit welchem einerseits die in einem Untertagelabor bzw. Endlager ablaufenden sehr komplexen sicherheitsrelevanten Prozesse in den geologischen Strukturen analysiert und anschaulich visualisiert werden können und andererseits eine schnelle und effektive Planung und Prüfung von Endlagerauslegungen in den (ggf. komplizierten) geologischen Strukturen möglich ist.

Die anschauliche Visualisierung der Ergebnisse numerischer Simulationen in den dreidimensionalen geologischen Strukturen eines Endlagers soll sowohl dem forschenden Wissenschaftler als auch der interessierten Öffentlichkeit helfen, die komplexen Prozessabläufe in einem Endlager besser verstehen und bewerten zu können.

Nach über dreißig Jahren Endlagerforschung liegt zudem ein umfangreiches Know-How der Untertageforschung im Steinsalz vor, das aufgrund des altersbedingten Ausscheidens vieler beteiligter Wissenschaftler verloren zu gehen droht. Das Projekt VIRTUS soll deshalb auch dazu beitragen, die wichtigsten Ergebnisse aus 30 Jahren Untertageforschung aufzuarbeiten, zu konsolidieren und in einer Datenbank zu dokumentieren. Die für numerische Simulationen des virtuellen Untertagelabors benötigten thermisch-hydraulisch-mechanischen (THM) Parameterdaten sollen in Form einer qualitätsgesicherten Datenbasis bereit gestellt werden.

Kurzgefasst lauten die Projektziele:

- Entwicklung der Komponenten/Instrumente eines Virtuellen Untertagelabors/Endlagersystems im Steinsalz zur Visualisierung und Interpretation der Ergebnisse numerischer Simulationen ,

- Bereitstellung einer konsolidierten qualitätsgesicherten THM-Datenbasis für numerische URL- und Endlagersimulationen,
- Prototypische Modellierung ausgewählter URL- und Endlagerkonfigurationen mit bestimmten, zum Einsatz kommenden Process-Level-Codes (PLC),
- Ableitung filmischer Darstellungen für die Öffentlichkeitsarbeit.

Die grundsätzliche Entscheidung zur Durchführung des Projektes wurde nach einem Vorprojekt [3] und eingehender Erörterung der Projektziele im Oktober 2010 vom "Projektträger Karlsruhe für Entsorgung und Wassertechnologie (PTKA-WTE)" des Bundesministeriums für Wirtschaft und Technologie (BMWi) mit dem Projektstart am 1. November 2010 getroffen.

2 Partnerschaft und Aufgabenverteilung

Zur Durchführung des Projekts war ein Konsortium zusammenzuführen, das in der Lage sein sollte, die anspruchsvollen Projektziele in angemessener Zeit zu realisieren und das angestrebte Instrument VIRTUS den an der Endlagerforschung in Deutschland beteiligten Institutionen als modernes Analyse- und Planungsinstrument zeitnah zur Verfügung zu stellen.

Neben dem GRS-Bereich Endlagersicherheitsforschung mit langjährigen Kompetenzen im Bereich der Prozess- und Sicherheitsanalyse wurden auf Wunsch des BMWi die Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR) für die geologischen Kompetenzen und die DBE Technology GmbH (DBE TEC) für die endlagerbautechnischen Kompetenzen als Projektpartner gewonnen.

Auf der Grundlage einer umfangreichen Marktanalyse im Hinblick auf eine zügige Realisierung der verschiedenen softwaretechnischen Aspekte, insbesondere der anspruchsvollen Visualisierungssoftware, wurde das Fraunhofer Institut für Fabrikbetrieb und -automatisierung (IFF) als kompetenter Software-Entwickler über einen Unterauftrag der GRS hinzugezogen.

Mitglieder des Projektteams sind somit die GRS, die BGR, die DBE TEC und das Fraunhofer IFF mit nachfolgender Aufgabenverteilung:

- Projektleitung und Einbindung des kompetenten Software-Entwicklers IFF im Unterauftragsverfahren (GRS)
- Projektkonzipierung und Erstellung eines Pflichtenheftes (GRS/IFF, BGR, DBE TEC)
- Bereitstellung der erforderlichen geologischen Modelle (BGR)
- Bereitstellung der erforderlichen Daten für URL- und Endlagergrubengebäude (DBE TEC)
- Dokumentation der Ergebnisse der mehr als dreißigjährigen Forschung in Untertagelabors mit Bereitstellung einer qualitätsgesicherten Datenbasis (GRS, BGR, DBE TEC)
- Entwicklung der zugehörigen Datenbanken (GRS, IFF)

- Bereitstellung der VIRTUS-Software (IFF) und Betrieb des Servers für internetbasierten Zugriff auf die VIRTUS-Datenbanken (GRS)
- Process-Level-Modellierung von Leitexperimenten (BGR, DBE TEC, GRS)

3 Die zwei Säulen des Projekts VIRTUS

Die wesentlichen Säulen des Projekts bestehen also in der

- Erstellung der Software-Plattform VIRTUS für die anschauliche Visualisierung von Endlager-relevanten Prozessen

und in der

- Durchführung numerischer Simulationen von Experimenten in einem Untertagelabor und/oder von Prozessabläufen in einem Endlager auf Grundlage eines hochauflösenden geologischen Lagerstättenmodells sowie eines komplexen 3D-Grubengebäudes.

Da das Projekt im Juni 2012 erst die Hälfte seiner Laufzeit erreicht hat, kann im Nachfolgenden nur der bisher erzielte Stand hinsichtlich Planung und Entwicklung der VIRTUS-Software-Plattform dargelegt werden. Ergebnisse zur numerischen Simulationen von Leitexperimenten werden erst zu einem späteren Zeitpunkt verfügbar sein, wenn die Bereitstellung der konsolidierten Datenbasis abgeschlossen ist. Die im Rahmen einer Vorstudie vorgenommenen Visualisierungen eines virtuellen Fluges durch ein Untertagelabor sowie die Ergebnisse der Modellierung eines zeitlich und räumlich veränderlichen Temperaturfeldes um eine Einlagerungsstrecke mit Wärme freisetzenden hochradioaktiven Abfällen werden allerdings während des Vortrages in einem Video zur Verdeutlichung der Projektziele dargestellt werden.

4 Anforderungen bzw. Features der Software-Plattform

Die Software-Plattform VIRTUS soll nach der zu Projektbeginn durchgeführten Anforderungsanalyse in der Endversion die nachfolgenden Features aufweisen:

- Import komplexer geologischer 3D-Modelle (siehe Abb. 1) aus der von BGR verwendeten Software openGEO [3] und von Grubengebäuden sowie Speicherung des 3D-Gesamtmodells des Untertagelabors.
- Interaktive Visualisierung des Untertagelabors und seines Umfelds wie
 Virtuelle Rundflüge, freie Navigation, Betrachtung aus unterschiedlichen Blickwinkeln, Einblenden/Ausblenden von Objekten (Transparenzen), Legen/Betrachten von Schnittebenen (siehe Abb. 2)
- Editieren des 3D-Modells des Untertagelabors, wie
 Hinzufügen/Entfernen/Verschieben von Endlagerhohlräumen (Kammern, Strecken, Bohrlöcher), Zuordnung von Materialien zu Strukturen wie z. B. geotechnische Barrieren, Abfallbehälter etc., Zuordnung von Materialindizes

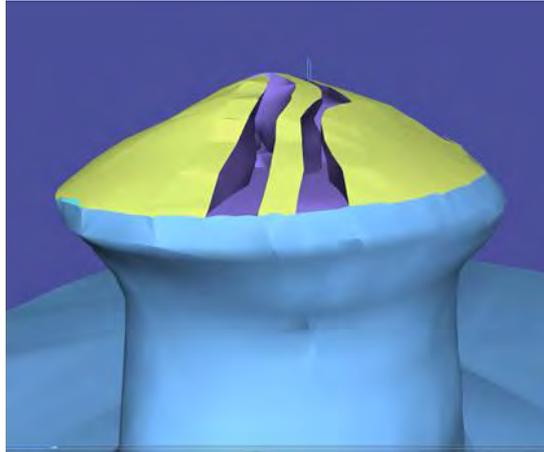


Abbildung 1: Importierte 3D-Geologie (siehe auch Abb. 8) mit Grubengebäude

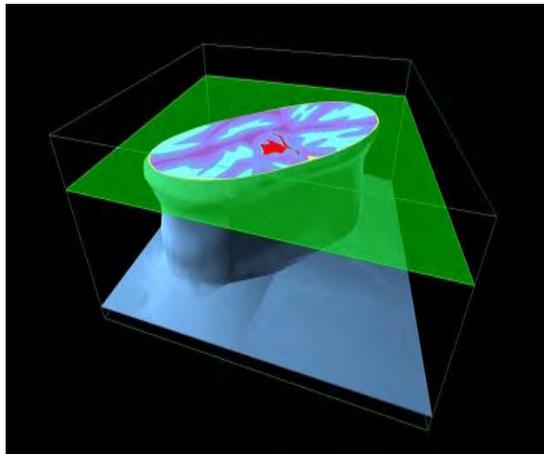


Abbildung 2: Geologisches 3D-Modell eines virtuellen Salzstocks (horizontal angeschnitten)

- Extraktion von Materialparametern aus der Datenbank und Generierung der Eingabedaten für die zum Einsatz kommenden PLCs, wie z. B. Code_Bright, Jife, FLAC. Ausgabe der Eingabedaten über eine geeignete Schnittstelle zu den PLCs.
- Auswahl des zu simulierenden Bereichs aus dem Gesamtmodell des Untertagelabors, (siehe Abb. 3 Quaderselektion)
- Starten der virtuellen URL-Experimente über die simulierenden PLCs
- Import von Simulationsergebnissen aus den PLCs und Post-processing
- Auswahl, welche der Simulationsergebnisse dargestellt werden sollen, z.B. Temperaturen, Spannungen, Drücke, Veränderungen der Hohlräume, Ausbreitung von Schadstoffen
- Visualisierung von Simulationsergebnissen (siehe Abbildungen 5 und 6).

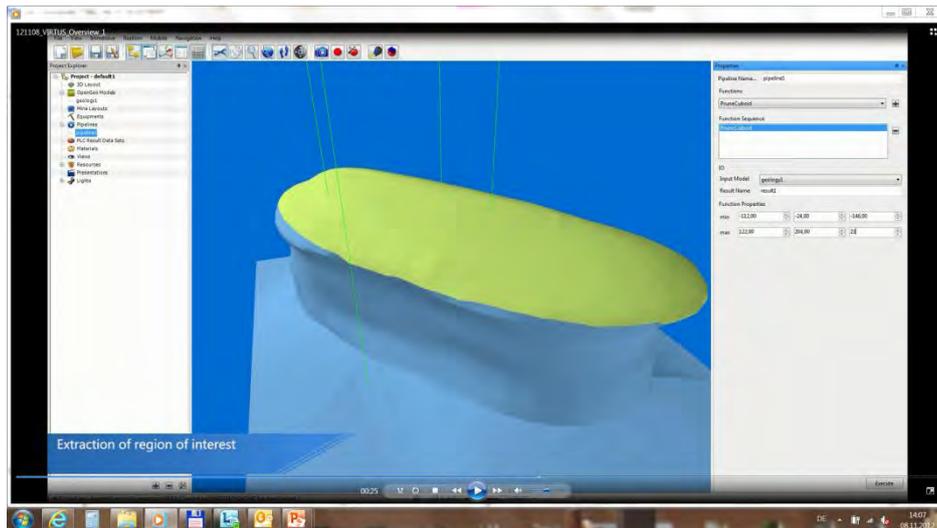


Abbildung 3: Selektion eines Ausschnittes (grünes Rechteck)

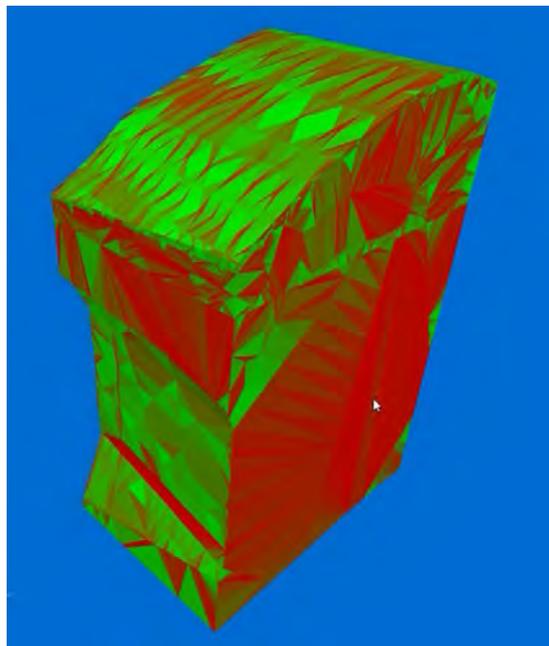


Abbildung 4: Ausgeschnittener Bereich als trianguliertes Modell

- Einblenden zugehöriger Dokumente zu aktuellen URL-Experimenten sowie wahlweise zu früheren URL-Experimenten
- Bereitstellung einer Schnittstelle zur Ausgabe von Daten für die Erstellung ansprechender filmischer Darstellungen für die Öffentlichkeitsarbeit
- Weitere Aspekte
Entwicklung eines User Interfaces, Integration eines Rechtesystems, um Zugriffe auf das virtuelle Untertagelabor einschränken zu können (Betrachter, Administrator), Betriebssystemunabhängigkeit

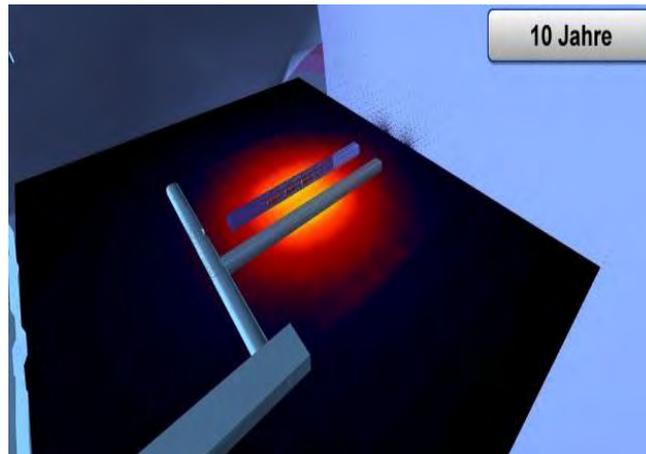


Abbildung 5: Temperaturverteilung; dargestellt als Schnitt

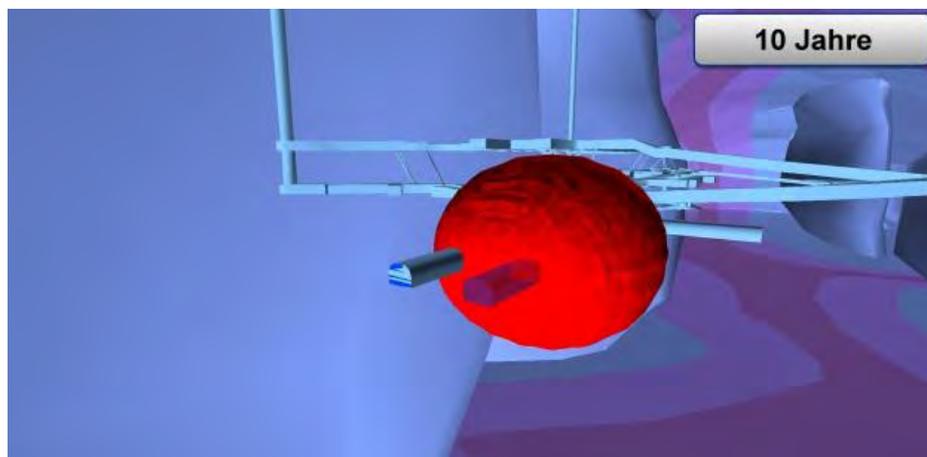


Abbildung 6: Temperaturverteilung, dargestellt als Iso-Fläche

5 Geologische Modelle

Von BGR werden stationäre geologisch-tektonische 3D-Lagerstättenmodelle verwendet, um Ergebnisse der geologischen Erkundung integral auszuwerten [4]. Dazu dient das Programm openGEO. Die BGR ist einer der Hauptnutzer von openGEO und hat einen maßgeblichen Einfluss auf die Weiterentwicklung des Programms. Durch spezielle Rechte ist die nachhaltige Nutzung, auch über viele Jahre, wie in der Endlagerung notwendig, gesichert.

Auf Grund der Arbeitsweise auf horizontalen und vertikalen Konstruktionsebenen, die vergleichbar mit geologischen Karten und Profilen sind, und der speziell entwickelten liniengeführten Triangulation werden komplexe Modelle erstellt (Abb. 7). Sie können die in der Salzgeologie vorkommenden komplexen Strukturen wie polyphase überkippte Fließfaltungen auf engstem Raum, komplizierte Tektonik und Bruchstrukturen (z. B. Scheitelgrabensysteme über Salzstöcken, komplizierte Störungssysteme in Magmatiten) sowie quartärgeologische Besonderheiten, wie z.B. Rinnen exakt und aufschlussreu abbilden.

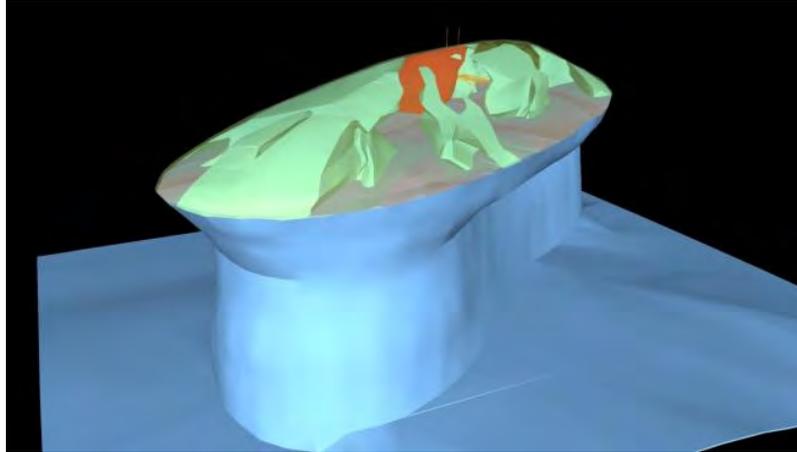


Abbildung 7: Mit openGEO erstelltes geologisches 3D-Modell eines virtuellen Salzstocks

openGEO erlaubt auch eine Koppelung von Strukturmodellen unterschiedlichster Auflösung und thematischen Inhalts, z. B. ein regionaltektonisches Tiefenmodell mit mehreren salzstockinternen geologischen Modellen. Diese können wieder mit hydrogeologischen Modellen und Referenzmodellen wie die Süßwasser/Salzwasser-Grenzfläche zu einem Gesamtmodell gekoppelt werden. Die Bearbeitung in openGEO ist völlig gesteins- und themenunabhängig. In openGEO können beliebige Grunddaten wie Kartierungen, Karten, Geländemodelle, Bohrkernaufnahmen, geophysikalische Logs, Seismik, Grids eingelesen und auf Konsistenz geprüft werden.

Das mit openGEO verbundene Programm GEOravis dient der Koppelung von externen Datenbanken mit dem 3D-Modell. Die dann möglichen SQL-Abfragen können eine Verknüpfung von beliebigen Sachverhalten aus dem 3D-Modell und den Datenbankinhalten herstellen. So können z. B. chemische Analysen oder mikroakustische Ereignisse im 3D-Modell nach Herkunft oder zeitlicher Entwicklung ausgewertet werden.

Zurzeit wird openGEO in der BGR für endlagerrelevante Arbeiten, für hydrogeologische Arbeiten im Rahmen der Endlagerung, im Rahmen von Forschungsverbundaufgaben für Altbergbau oder Energiespeicher und in der Zusammenarbeit mit der Kavernenindustrie verwendet. Die mit openGEO erstellten 3D-Modelle dienen im Zuge von Standorterkundungen zur Auswertung der Erkundungsdaten und als Planungsinstrument z. B. für bergbauliche Maßnahmen sowie als Grundlage für numerische Modellberechnungen und für Arbeiten im Rahmen von Planfeststellungsverfahren.

6 VIRTUS-Architektur

Das VIRTUS-Architekturkonzept sieht vor, das VIRTUS-Gesamtsystem in zwei wesentliche Komponenten zu unterteilen, ein lokales Softwaresystem und einen zentralen Server. Abbildung 8 gibt einen Überblick über das Konzept. Die Aufgabe des Servers ist die Bereitstellung aller VIRTUS

relevanten Daten. Hierzu zählen die konsolidierte Datenbasis (geologische Modelle, THM-Daten) und die Sammlung relevanter Literatur, aber auch die unter Verwendung der VIRTUS-Benutzeroberfläche erstellten Projekte. Weiterhin wird eine Nutzerverwaltung realisiert, um ausschließlich berechtigten Personen und Institutionen Zugang zur VIRTUS-Datenbasis zu gewähren.

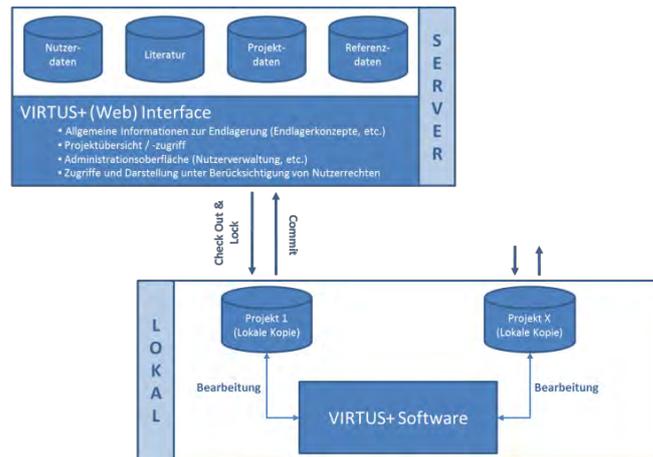


Abbildung 8: VIRTUS-Architekturkonzept.

Neben dem zentralen Server wurde die eigentliche VIRTUS-Benutzeroberfläche als lokale Anwendung konzipiert. Sie ermöglicht es den Nutzern, Projekte erstellen sowie Projektdaten betrachten, hinzufügen und bearbeiten zu können.

7 VIRTUS-Datenhaltung

Die VIRTUS-Nutzerverwaltung erlaubt die Konfiguration von Zugriffsrechten unterschiedlicher Nutzer und Nutzergruppen auf zentrale Ressourcen wie z. B. die Referenzdatenbank sowie auf lokale Anwendungen wie die VIRTUS-Benutzeroberfläche und die VIRTUS-Administrationswerkzeuge.

Wie Abbildung 9 entnommen werden kann, unterscheidet die VIRTUS-Datenverwaltung zwischen Referenzdaten (konsolidierte THM-Datenbasis und geologische Modelle) und individuellen Projekt- bzw. Experimentdaten.

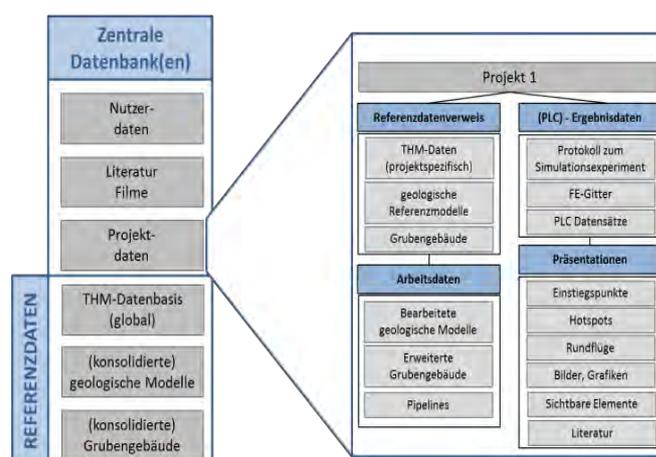


Abbildung 9: Konzept der VIRTUS-Datenhaltung

Die Referenzdaten sind nur über die VIRTUS-Administrationswerkzeuge mit entsprechenden Nutzerrechten veränderbar. Sie können aber von jedem VIRTUS Nutzer instanziiert und einem Projekt zugewiesen werden. Eine Änderung der Referenzdaten ändert nicht die bereits existierenden Instanzen, sondern legt eine neue Instanz an. Da die Referenzdaten zentral

abgelegt sind, können sie nur über eine aktive Netzwerkverbindung abgerufen werden. Nach ihrer Instanziierung sind sie im Rahmen der Projektdaten auch lokal verfügbar.

Auch Projektdaten werden zentral gespeichert, müssen aber, um ein VIRTUS-Projekt verändern bzw. nutzen zu können, vollständig oder teilweise ausgecheckt, also heruntergeladen und lokal verfügbar gemacht werden. Ein- bzw. Auschecken unterliegt dem VIRTUS-Nutzer- und Versionsmanagement.

8 Zusammenfassung

Die Software-Plattform VIRTUS (Virtuelles Untertagelabor im Salz) wird gegenwärtig im Rahmen eines vom Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie (BMWi) geförderten Verbundprojektes entwickelt. Mit VIRTUS soll den an der Endlagerforschung beteiligten Institutionen ein leistungsstarkes Instrument an die Hand gegeben werden, mit dem die in einem Endlager bzw. Untertagelabor ablaufenden Prozesse unter Einbindung speziell entwickelter Prozess-Level-Codes numerisch simuliert und anschaulich visualisiert werden können. Die Visualisierung soll sowohl dem forschenden Wissenschaftler als auch der interessierten Öffentlichkeit helfen besser zu verstehen, in welcher Wechselwirkung die Prozessabläufe mit den komplexen geologischen Strukturen stehen und welche Auswirkungen ihrerseits auf die Integrität des sogenannten "einschlusswirksamen Gebirgsbereiches (ewG) zu erwarten sind.

Im Rahmen des Projektes werden auch die für die numerischen Simulationen erforderlichen thermisch-hydraulisch-mechanischen Materialdaten der geologischen Formationen von den beteiligten Projektpartnern über eine Auswertung relevanter Forschungsliteratur aus den zurück liegenden 30 Jahre zusammengetragen und über eine speziell konfigurierte Datenbank qualitätsgesichert bereit gestellt.

Während der seit November 2010 laufenden 3-jährigen Projektlaufzeit werden auf der Basis dieser Daten auch ausgewählte Experimente im virtuellen Untertagelabor bzw. besonders interessierende Endlagerprozesse mit Process-Level-Codes numerisch simuliert und visualisiert, um die Leistungsfähigkeit der VIRTUS Software-Plattform zu demonstrieren.

Im Nachgang der aktuellen Projektphase ist beabsichtigt VIRTUS so auszubauen, dass den zukünftig an der Endlagerplanung beteiligten Institutionen ein leistungsfähiges Instrument zur schnellen virtuellen Erprobung von Endlagerkonzepten zur Verfügung steht .

9 Literatur

OECD-NEA: Moving Forward with Geological Disposal of Radioactive waste – a collective Statement by the OECD/NEA Radioactive Waste Management Committee (RWMC), NEA No. 6433, Paris, (2008) [1]

OECD-NEA: The role of Underground Laboratories in Nuclear Waste Disposal Programmes. - OECD-Nuclear Energy Agency, Paris, France, (2001) [2]

H.-J. Herbert, H. Moog, T. Rothfuchs, K. Wieczorek, M. Xie: VIRTUS - Virtuelles Untertagelabor im Steinsalz, Vorprojekt, GRS-257, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Köln, (2009) [3]

J. Hammer, C. Dresbach, J. Behlau, G. Mingerzahn, S. Fleig, T. Kühnlenz, M. Pusch, S. Heusermann, S. Fahland, P. Vogel, R. Eickemeier: Geologische 3D-Modelle für UTD-Standorte - Generierung, Visualisierung, Nutzung. In: Abschlussveranstaltung Förderschwerpunkt Chemo-toxische Abfälle, Februar 2012. Wissensch. Berichte FZKA-PTE, Karlsruhe, (2012) [4]

10 Danksagung

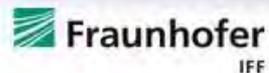
Das Projekt VIRTUS wird vom Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie (BMWi) unter dem Förderkennzeichen 02E10890 finanziert. Die Autoren sagen hierfür herzlichen Dank.

Projekt VIRTUS

Virtuelles Untertagelabor im Salz

Tilman Rothfuchs, Steffen Masik, Joachim Behlau, Michael Jobmann

Ein gemeinsames Projekt von



Vortragsübersicht

- **Einführung**
 - Zielsetzung, Partnerschaft, Kompetenzen

- **Anforderungen und Features der VIRTUS Software-Plattform**

- **Video Präsentation**

Ziele des Projekts VIRTUS

1. Bereitstellung einer Software-Plattform für die

- Schnelle und effektive Planung und Prüfung von Endlagerkonzepten mit Hilfe eines virtuellen Untertagelabors/Endlagers in repräsentativen geologischen Formationen
- Anschauliche 3D-Visualisierung der Ergebnisse numerischer Analysen komplexer sicherheitsrelevanter Prozesse im Untertagelabor/Endlager
- Bereitstellung filmischer Darstellungen für die Öffentlichkeitsarbeit

2. Bereitstellung der für die numerische Simulationen benötigten thermisch-hydraulisch-mechanischen (THM) Parameterdaten über eine qualitätsgesicherte Datenbasis/Datenbank

Partnerschaft im Projekt VIRTUS

Neben dem

- **GRS-Bereich Endlagersicherheitsforschung** mit langjährigen Kompetenzen im Bereich der Prozess- und Sicherheitsanalyse

wurden die

- **Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe (BGR)** für die geologischen Kompetenzen

und die

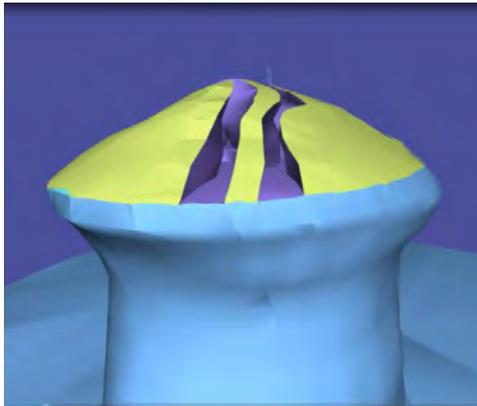
- **DBE Technology GmbH (DBE TEC)** für die endlagerbautechnischen Kompetenzen

als Projektpartner gewonnen.

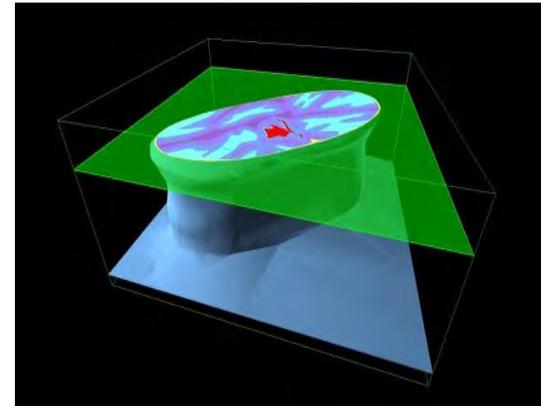
- **Das Fraunhofer Institut für Fabrikbetrieb und -automatisierung (IFF)** wurde im Hinblick auf eine zügige Realisierung der verschiedenen softwaretechnischen Aspekte, insbesondere der anspruchsvollen Visualisierungssoftware, als kompetenter Software-Entwickler über einen Unterauftrag der GRS hinzugezogen.

Anforderungen bzw. Features der Software-Plattform

- **Import geologischer 3D-Modelle** aus der von der BGR verwendeten Software openGEO und von Grubengebäuden sowie Speicherung des 3D-Gesamtmodells des Untertagebaus
- **Virtuelle Rundflüge**, freie Navigation, Betrachtung aus unterschiedlichen Blickwinkeln, Einblenden/Ausblenden von Objekten (Transparenzen)
- **Legen/Betrachten von Schnittebenen**



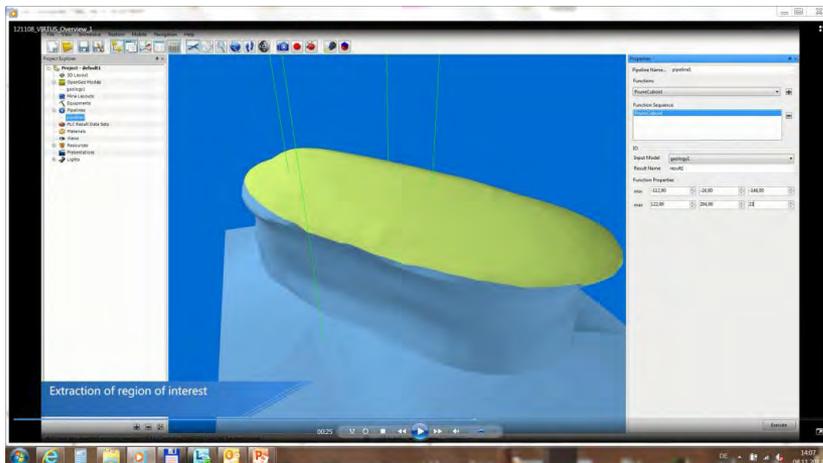
Importiertes geologisches Modell



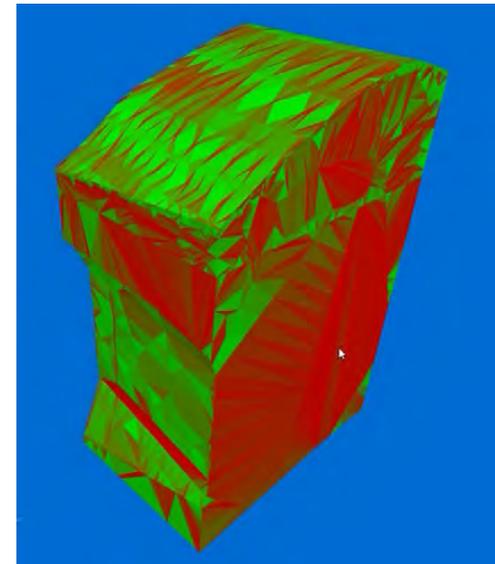
horizontal angeschnittenes Modell

Anforderungen bzw. Features der Software-Plattform (2)

- **Auswahl des zu simulierenden Bereichs** aus dem gesamtgeologischen Modell des Endlagers/Untertagelabors (Quaderselektion)



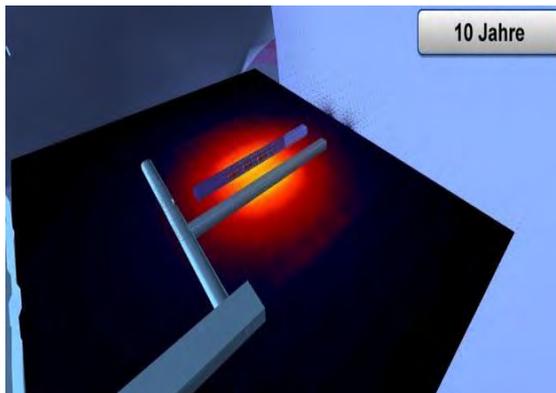
Selektion eines Ausschnittes
für die Erstellung des FE-Modells



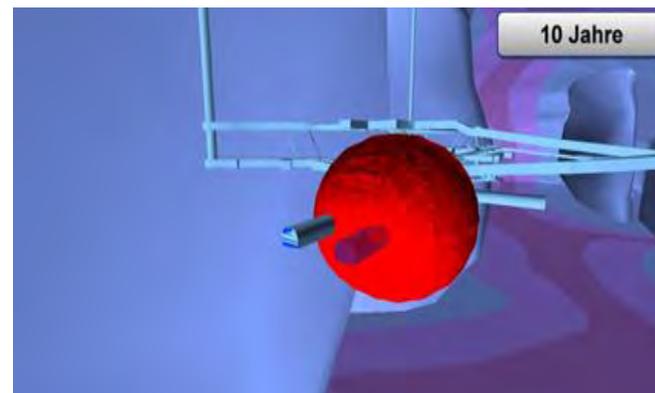
FE-Modell

Anforderungen bzw. Features der Software-Plattform (3)

- Extraktion von Materialparametern aus der Datenbank und **Generierung der Eingabe-datensätze für die zum Einsatz kommenden PLCs**, wie z. B. Code_Bright, Jife, FLAC.
- **Visualisierung von Simulationsergebnissen**, z.B. Temperaturen, Spannungen, Drücke, Veränderungen der Hohlräume, Ausbreitung von Schadstoffen



Temperaturverteilung
dargestellt als Schnitt

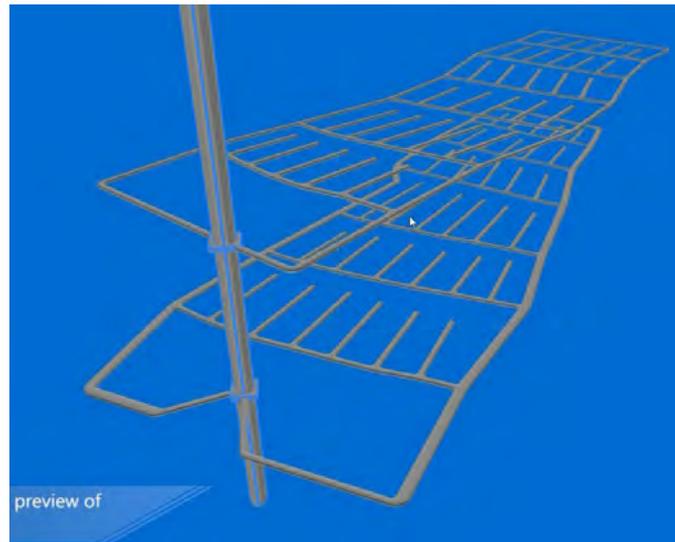


Temperaturverteilung
dargestellt als Iso-Fläche

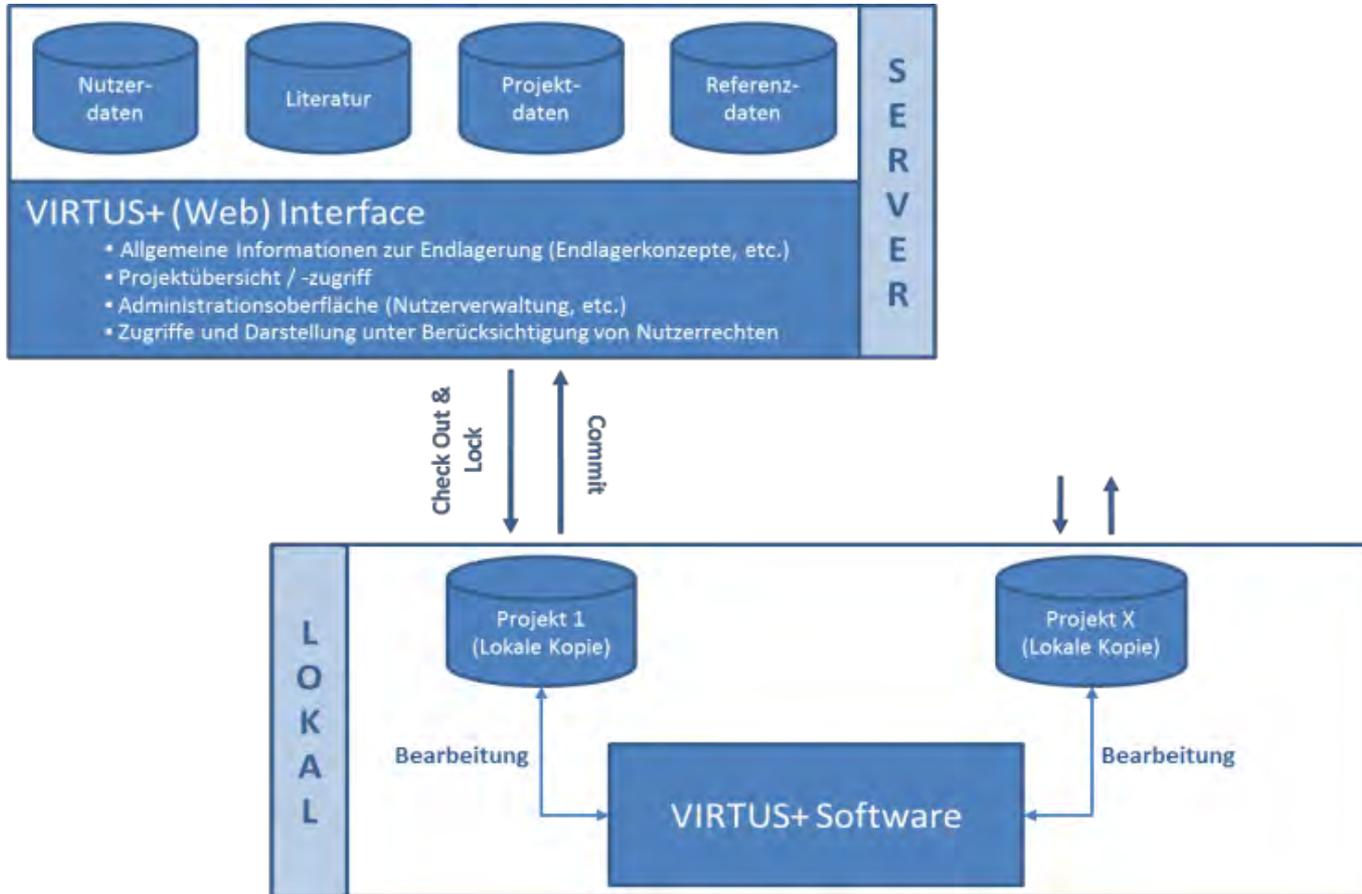
- **Einblenden zugehöriger Dokumente** zu aktuellen Untertagelabor-Experimenten sowie wahlweise zu früheren Experimenten

Anforderungen bzw. Features der Software-Plattform (4)

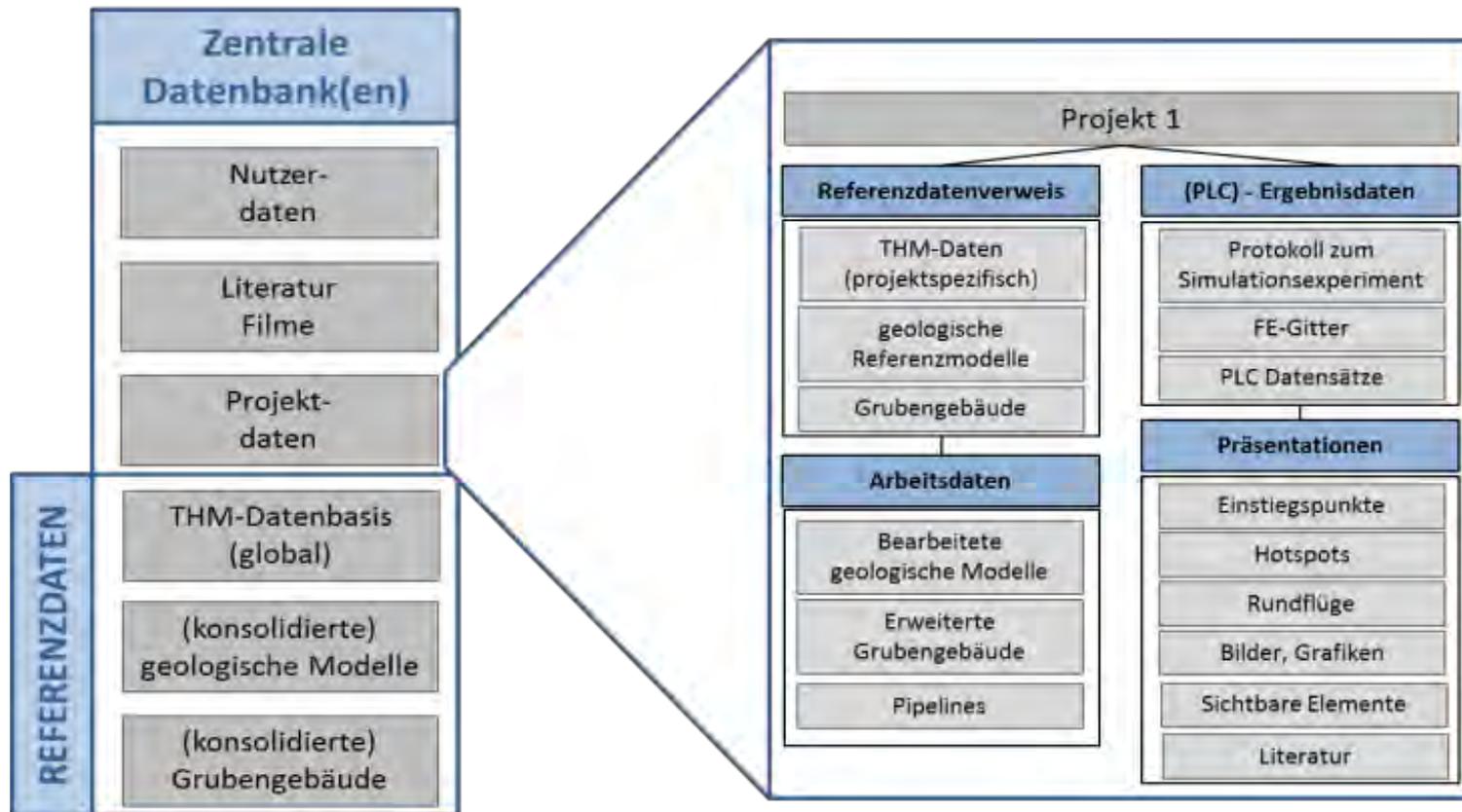
- **Editieren des 3D-Modells des Endlagers/Untertage-lagers**, wie z. B. Hinzufügen/Entfernen/Verschieben von Endlagerhohlräumen (Kammern, Strecken, Bohrlöcher), Zuordnung von Materialien zu Strukturen wie z. B. geotechnische Barrieren, Abfallbehälter etc.

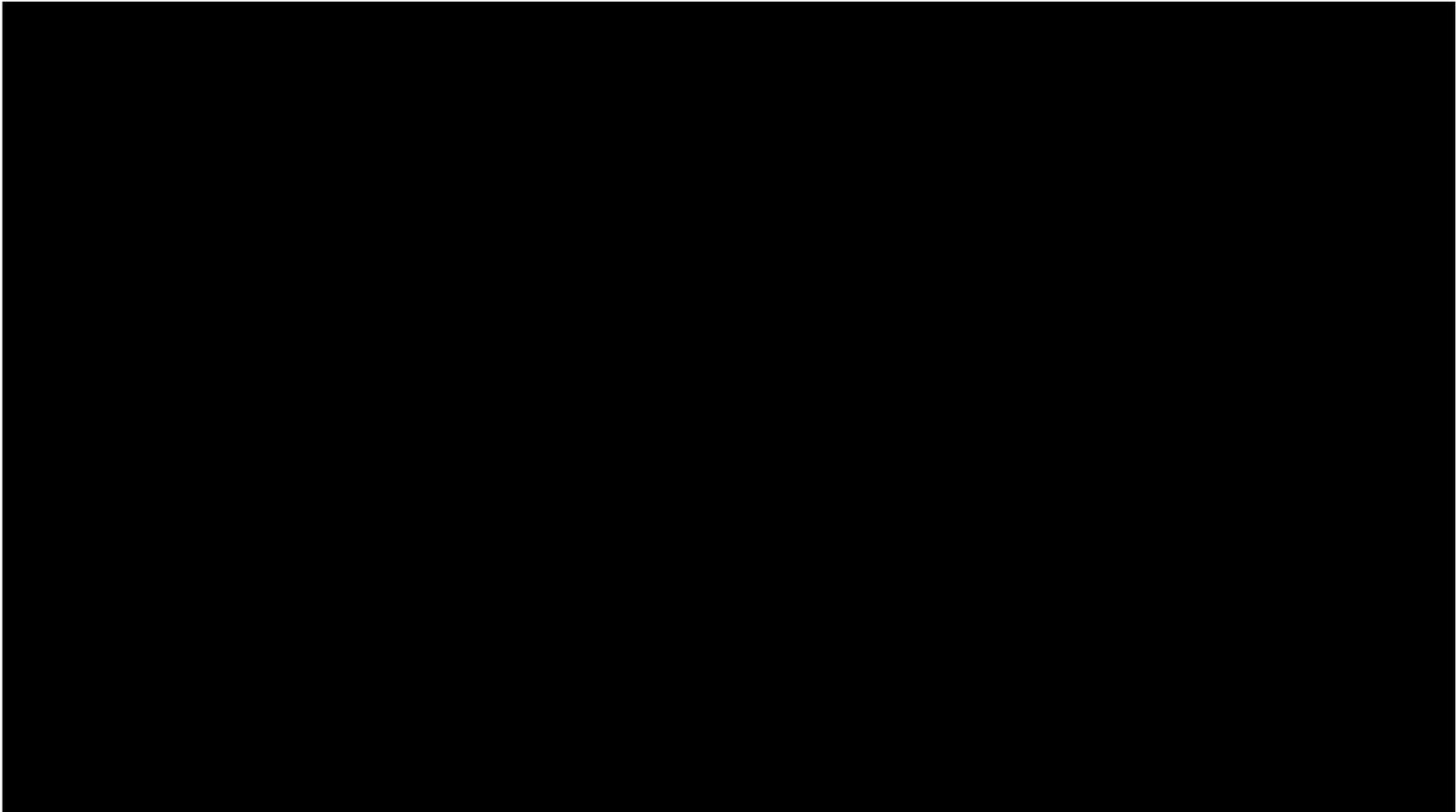
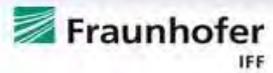


VIRTUS Architektur



VIRTUS Datenhaltung





Danksagung an zwei herausragende Begleiter des Projekts VIRTUS

- **Prof. Wernt Brewitz**

(ehemals GRS-Bereichsleiter Endlagersicherheitsforschung), der bereits im Jahr 2006 die zündende Idee zur Entwicklung eines Virtuellen Untertagelabors hatte

sowie

- **Dr. Siegfried Köster** (ehemals BMWi), der diese Idee stets unterstützt hat und maßgeblich zur Realisierung dieses Projekts beigetragen hat.

Mikrobielle Diversität im Tongestein (Opalinus-Ton) und Wechselwirkung dominanter Mikroorganismen mit Actiniden

Förderkennzeichen: BMWi 02E10618

H. Moll, L. Lütke, V. Bachvarova, A. Geißler, E. Krawczyk-Bärsch, S. Selenska-Pobell,
G. Bernhard

Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf e.V., Institut für Ressourcenökologie, Postfach
510119, 01314 Dresden

Projekt:

Dieses vom Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie (BMWi) geförderte Vorhaben ist Teil der deutsch-schweizerischen Kooperation im Untertagelabor Mont Terri und der deutsch-schwedischen Kooperation des BMWi mit dem Äspö Hard Rock Laboratory (Äspö HRL). Innerhalb des Projektes arbeiten wir eng mit der Universität Granada (Department of Microbiology) und der Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe Hannover zusammen. Das Vorhaben hat am 01.01.2009 begonnen und wird am 31.12.2012 enden.

Einleitung

Für den Langzeitsicherheitsnachweis eines nuklearen Endlagers ist die Kenntnis der Wechselwirkung und des Transportes von langlebigen Radionukliden, insbesondere Actiniden/An innerhalb der technischen, geotechnischen und geologischen Barrieren von entscheidender Bedeutung. Die Migration der An in der für ein Endlager potentiellen Wirtsgesteine und das Transportverhalten nach einer möglichen Freisetzung aus dem Endlager in den Aquifer müssen bekannt sein, um die Eignung der möglichen Wirtsgesteine (Salz, Ton, Granit) vergleichen zu können und den erforderlichen Sicherheitsnachweis zu erbringen. Dies ist notwendig, um letztlich eine Wirtsgesteine vor dem Hintergrund der günstigsten geologischen Gesamtsituation für ein Endlager auswählen zu können.

Ziel des Vorhabens ist es, Kenntnisse zur mikrobiellen Diversität im natürlichen Tongestein (Mont Terri Opalinus-Ton) mittels direkter molekular-biologischer Methoden zu erhalten und den Einfluss identifizierter dominierender Bakterienpopulationen auf das geo-chemische Verhalten der An (Uran, Plutonium, Curium) in diesem Tongestein zu untersuchen. Weiterhin soll dieses Vorhaben helfen, den Einfluss von Biofilmen Endlager-relevanter Bakterien auf die An-Speziation aufzuklären.

Bakterien sind wahre Überlebenskünstler. Bei Vorhandensein einer Kohlenstoff- und Energiequelle ist bekannt, dass unterschiedliche Populationen bei extremen Temperaturen, hohen Strahlendosen, hohen Drücken, hohen Salzgehalten und Kombinationen davon überleben können /1/. Es ist unbestritten, dass Bakterien auch in den Wirtsgesteinsformationen für nukleare Endlager in Deutschland auftreten /2, 3/. National und international wird den geo-chemischen Forschungen zum Einfluss von Mikroorganismen auf die Probleme bei der Langzeitsicherheit von nuklearen Endlagern bisher nur punktuell Aufmerksamkeit geschenkt. Grundsätzlich sind aber die Werkzeuge und das Wissen bereitzustellen, um nach den noch ausstehenden generischen Untersuchungen, die Voraussetzungen geschaffen zu haben, „Site-spezifisch“ konkrete Untersuchungen zur mikrobiellen Diversität in der ausgewählten anfangs unberührten Wirtsfornation, im offenen Endlager, einschließlich der Auflockerungszone, durchzuführen und dann die sich wieder einstellende Mikroorganismendiversität nach Schließung des Endlagers abzuschätzen. Gleichzeitig sind die erkannten Defizite in den Kenntnissen der Wechselwirkung von An und anderer relevanter langlebiger Radionuklide mit den erkannten dominierenden Bakterienpopulationen (planktonisch und in Biofilmen) zu überwinden.

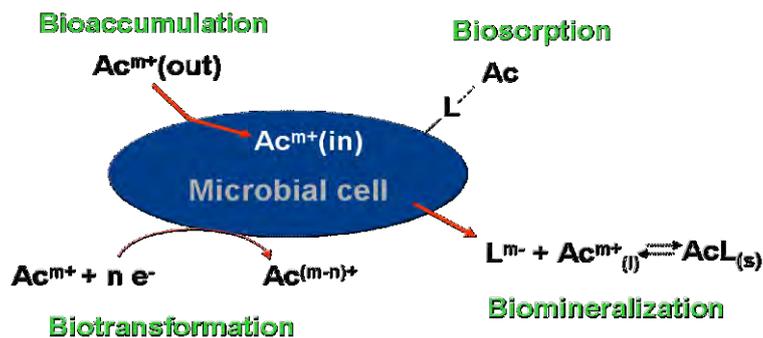


Abb. 1 Schematische Darstellung von Wechselwirkungsprozessen der An mit Mikroben.

Bakterien können in Abhängigkeit der Art der Population, des jeweiligen An und den anliegenden geo-chemischen Bedingungen in unterschiedlicher Weise wechselwirken. Bedeutende Wechselwirkungsprozesse (siehe Abb. 1) sind Biosorption, Bioakkumulation, Biotransformation, Biomineralisation und eine mikrobiell beschleunigte Chemisorption /4/. Außerdem können Bakterienzellen selbst als Kolloide betrachtet werden und unter bestimmten Bedingungen zur Gasproduktion beitragen /5/. Umfangreiche generische Untersuchungen zur mikrobiellen Diversität in potenziellen deutschen Ton- und Salzgesteinsformationen zur Lagerung von nuklearem Abfall sind nicht bekannt.

Ausgangspunkt der Projektarbeiten ist der Nachweis von Bakterien und Organika in tiefen Tongesteinsschichten /2/ und auch im Opalinus-Ton des Mont Terri Untertagelabors /3, 6/. Durch eine neue optimierte Vorgehensweise zur Isolierung der Gesamt-DNA /7/ auf Opalinus-Ton soll die bakterielle Diversität untersucht werden. Die identifizierten bakteriellen Gemeinschaften sind zu kultivieren, in Reinkultur zu überführen und deren Respons auf die Wechselwirkung mit An aufzuklären.

Ziele der Untersuchungen

Ziel des Projektes ist es, Kenntnisse zur mikrobiellen Diversität im natürlichen Tongestein (Tongesteinproben aus dem Mont Terri Untertagelabor; Probenahme in Zusammenarbeit mit der BGR Hannover) durch direkte molekular-biologische Methoden zu erhalten und den Einfluss identifizierter dominierender Bakterienpopulationen auf das geo-chemische Verhalten der An (Uran, Plutonium, Curium) in diesem Tongestein zu untersuchen. Die Wechselwirkungsprozesse ausgewählter An mit Biofilmen des Äspö-Stamms *Pseudomonas fluorescens* sollen aufgeklärt werden. Es werden Aussagen erstens zur Biodiversität, den dominierenden bakteriellen Populationen, und zweitens zu deren Wechselwirkungsprozessen mit den ausgewählten An erwartet. Innerhalb dieses Vorhabens soll das vorhandene biologische Know-how mit dem geo-chemischen Know-how zusammengeführt werden, um es effektiv hinsichtlich der Endlagerforschung zu nutzen. Dadurch wird ein weiterer Beitrag zum Kompetenzerhalt auf den Gebieten der Kern- und Radiochemie sowie der kerntechnischen Sicherheit geleistet.

Im Folgenden werden ausgewählte Ergebnisse, die im Vortrag erläutert wurden, zusammenfassend dargestellt.

Durchgeführte Untersuchungen und Ergebnisse

1. Bestimmung der bakteriellen Diversität in Opalinus-Tonproben des Mont Terri Untertagelabors

Innerhalb des Projektes verfolgen wir zwei Ansätze zur Bestimmung der bakteriellen Gemeinschaften in Opalinus-Tonproben:

- I. Direkter molekularer kultivierungsunabhängiger Ansatz mit den Teilschritten Isolierung der Gesamt-DNA unbehandelter Opalinus-Tonproben, PCR-Amplifizierung der 16S rRNA Gene, Konstruktion von 16S rDNA Klon-Bibliotheken und phylogenetische Analyse,

II. Kultivierungsansatz mit den Teilschritten Kultivierung/Aktivierung natürlich vorkommender Mikroorganismen sowie phylogenetische, physiologische und morphologische Charakterisierung der kultivierbaren Isolate.

Die in /7/ entwickelte Vorgehensweise zur Isolierung der Gesamt-DNA für Umweltproben wurde erfolgreich für Opalinus-Ton optimiert. So wurde erstmalig aus 50 g Opalinus-Ton Gesamt-DNA isoliert. Für den im R2A-Medium behandelten Opalinus-Ton gelang eine Quantifizierung der Gesamt-DNA, aus 5.6 g Opalinus-Ton wurden circa 150 ng Gesamt-DNA isoliert. Auf der Basis der Gesamt-DNA konnte die bakterielle Diversität im Opalinus-Ton bestimmt werden (Abb. 2 A).

Mont Terri Opalinus-Ton

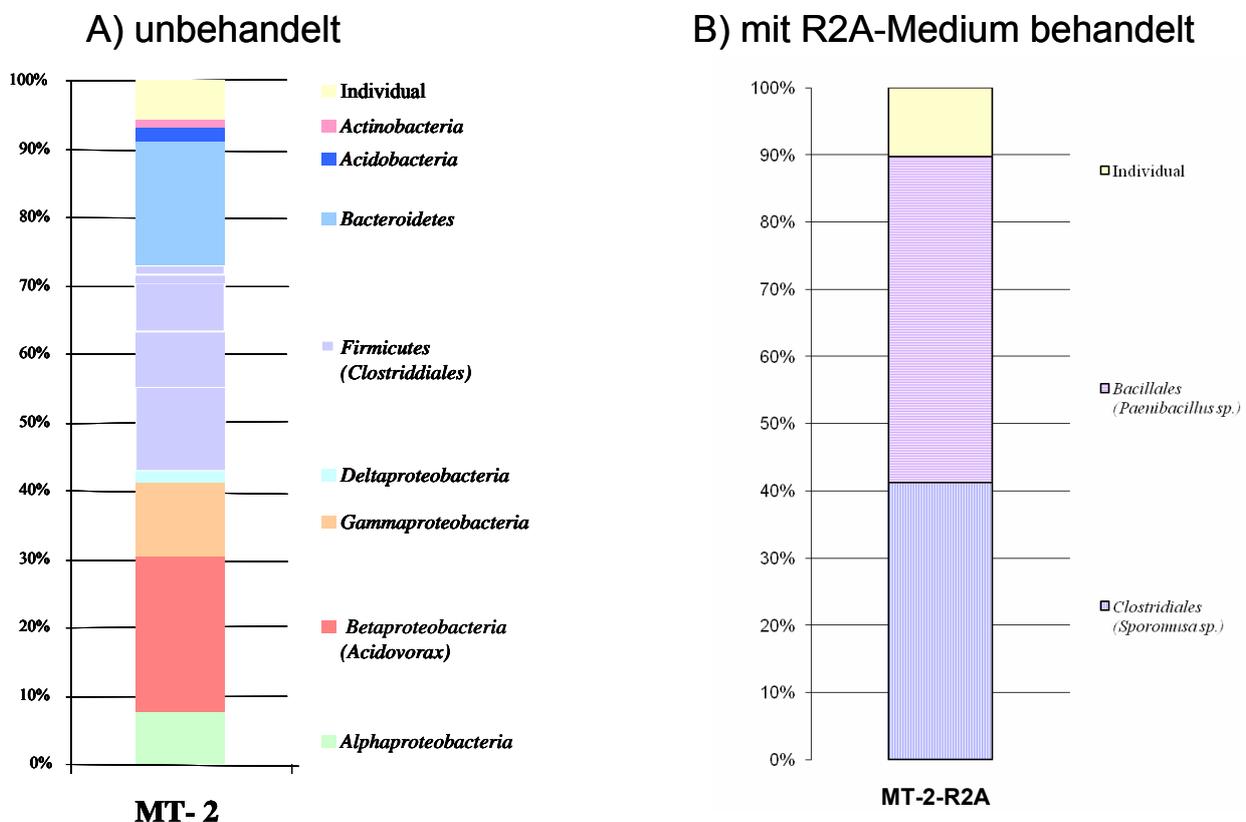


Abb. 2 Wesentliche Ergebnisse der Diversitätsuntersuchungen an Mont Terri Opalinus-Tonproben: A) unbehandelt und B) mit R2A-Medium behandelt.

Die Auswertung der bakteriellen 16S rRNA Gendiversität in der unbehandelten Opalinus-Tonprobe ergab eine überraschend hohe Diversität mit Vertretern von Alpha-, Beta-, und Gamma-Proteobakterien, sowie Vertretern von Firmicutes, Bacteroidetes, Acidobakterien und Actinobakterien (Abb. 2A). Als dominierend können Beta-Proteobakterien, Firmicutes und Bacteroidetes angesehen werden. Die Analyse der mit R2A-Medium behandelten Opalinus-

Tonprobe (Abb. 2B) zeigte eine Verschiebung der bakteriellen Diversität zu Firmicutes- Populationen. Diese wurden also durch die Bestandteile des R2A-Mediums am meisten stimuliert. Vier bakterielle Isolate, die dem Phylum Firmicutes zuzuordnen sind, konnten aus Mont Terri Opalinus-Ton nach einer Inkubation in R2A-Medium, kultiviert werden: *Sporomusa* sp. (2), *Paenibacillus* sp. (1) und *Clostridium* sp. (1) (siehe Abb. 3).

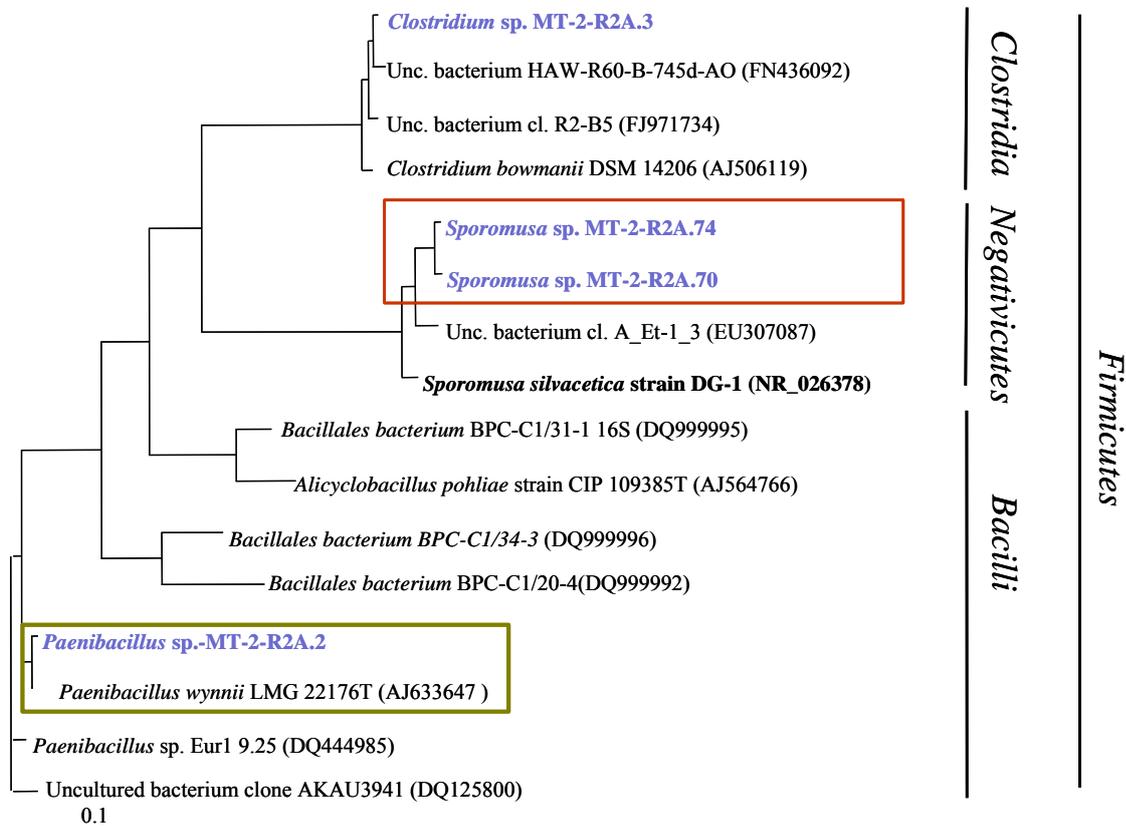


Abb. 3 Phylogenetisches Dendrogramm der 16S rRNA Gene der bakteriellen Isolate aus Mont Terri Opalinus-Ton nach der Behandlung mit R2A-Medium.

Die hier dargestellten Untersuchungsergebnisse sind Grundlage der Experimente mit den ausgewählten An. Diese konzentrieren sich auf die Opalinus-Ton Isolate *Sporomusa* sp. und *Paenibacillus* sp.. Beides sind Sporen bildende Bakterien, die so im Opalinus-Ton überlebensfähig sind.

2. Kultivierung und Charakterisierung der Opalinus-Ton Isolate

Die Zellen der Opalinus-Ton Isolate *Sporomusa* sp. und *Paenibacillus* sp. wurden unter anaeroben Bedingungen (N_2 -Atmosphäre) im R2A Medium (DSMZ Medium 830) bei 30°C kultiviert. Diese neuen Isolate wurden im Hinblick auf das Wachstum, die Zellwandstruktur, die Morphologie, die funktionellen Gruppen der Zellmembran und die Verstoffwechselung

organischer Komponenten untersucht. Eine Zusammenstellung der wesentlichen Ergebnisse am Beispiel von *Sporomusa* sp. sind in Abb. 4 gezeigt.

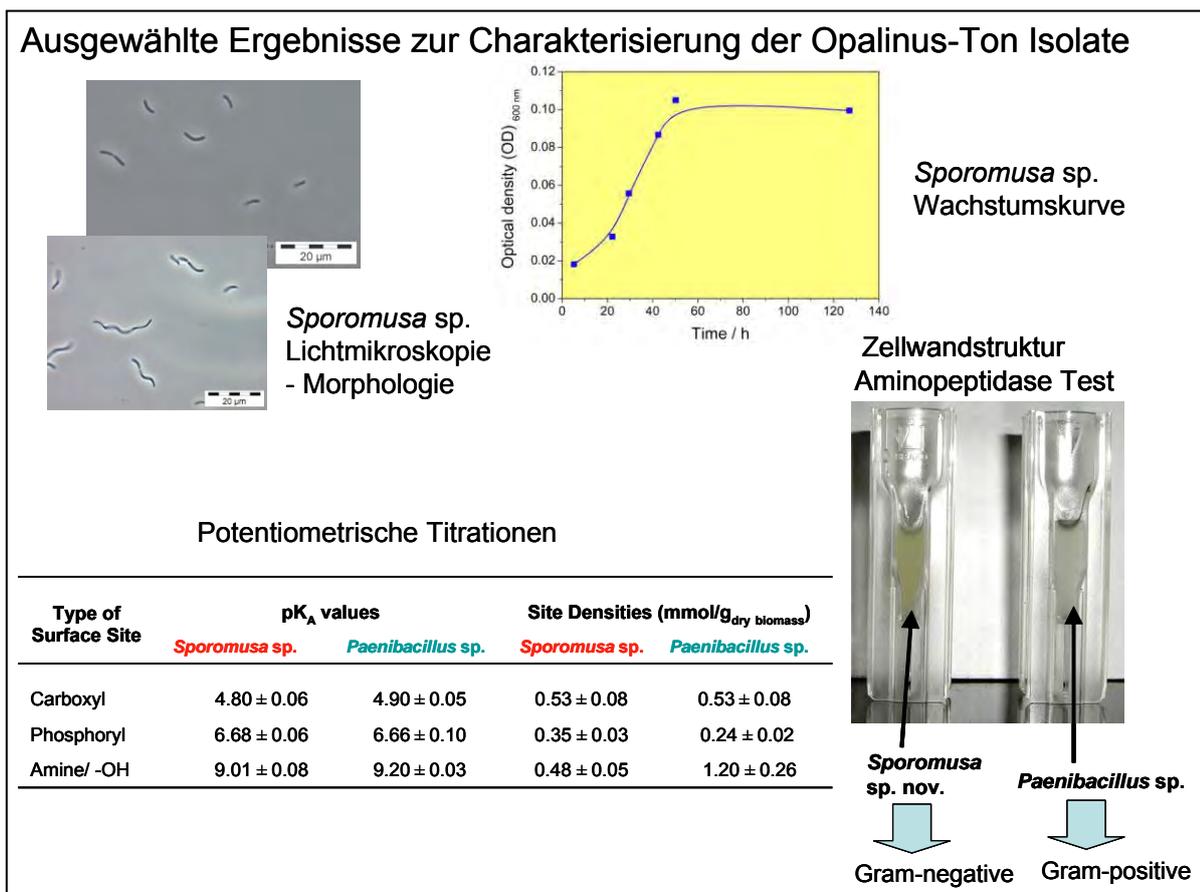


Abb. 4 Ausgewählte Ergebnisse zur Charakterisierung der Opalinus-Ton Isolate.

In den Lichtmikroskopieaufnahmen ist die typische Form der *Sporomusa* sp. Zellen zu sehen. Anhand der Wachstumskurve erkennt man, dass es sich bei *Sporomusa* sp. um ein relativ langsam wachsendes Bakterium handelt. Erst nach rund 60 Stunden Inkubationszeit wird die stationäre Wachstumsphase erreicht. Die Tests zur Struktur der Zellmembran ergaben, dass *Sporomusa* sp. zu den Gram-negativen und *Paenibacillus* sp. zu den Gram-positiven Bakterien gehören. Daraus resultieren unterschiedliche Eigenschaften und Aufbau der jeweiligen Zellmembran. Gezeigt ist das Ergebnis des Aminopeptidase Tests. Die Aminopeptidase ist nur bei Gram-negativen Bakterien vorhanden, folglich bedeutet die Färbung bei *Sporomusa* sp., dass dieses Bakterium zu den Gram-negativen Bakterien gehört. Mittels potentiometrischer Titrations konnten die funktionellen Gruppen (Carboxyl-, Phosphoryl- und Amin-Gruppen) der Zellmembranen und deren Konzentration, die dann für die Anbindung der Metalle (An/Ln) verantwortlich sind, bestimmt werden. Alle Details zu den potentiometrischen Titrations und zur generellen Vorgehensweise bei den An/Ln Wechselwirkungsversuchen sind in den Manuskripten /8/ und /9/ zusammengefasst. So

wurden die Zellen in der späten exponentiellen Wachstumsphase (optische Dichte bei 600 nm (OD_{600}) zwischen 0.08 und 0.1) durch Zentrifugation (8000 g) vom Medium getrennt. Für die An/Ln Experimente wurden die Zellen anaerob drei Mal gewaschen und in 0.1 M $NaClO_4$ suspendiert.

3. Bestimmung des Wechselwirkungsverhaltens der *Opalinus-Ton Isolate* mit ausgewählten An am Beispiel von *Sporomusa sp.*

Die wesentlichen Ergebnisse der U(VI) Wechselwirkungsuntersuchungen mit *Sporomusa sp.* Zellen sollen hier zusammengefasst werden. Die Cm- und Pu-Ergebnisse mit den Ton-Isolaten und *P. fluorescens* werden in der Zusammenfassung vergleichend betrachtet.

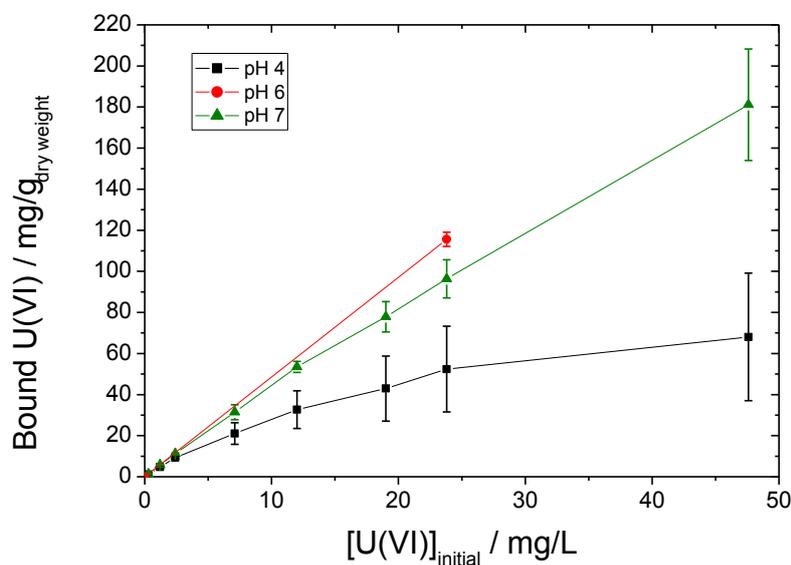


Abb. 5 U(VI)-Bindung an *Sporomusa sp.* als Funktion von $[U(VI)]_{initial}$ und pH in 0.1 M $NaClO_4$, [Biotrockenmasse, BTM] = 0.2 g/L.

Sporomusa Zellen zeigen eine starke Affinität gegenüber U(VI) (siehe Abb. 5). Es konnte gezeigt werden, dass die U(VI)-Bindung an *Sporomusa* Zellen vom pH-Wert der umgebenden Lösung abhängt. Bei pH 6 akkumulieren die Zellen zwei Mal mehr U(VI) als bei pH 4 bei $[U(VI)]_{initial}$ von 23.8 mg/L. Bei pH 7 nimmt die U(VI)-Bindung dann wieder ab. Diese pH-abhängige U(VI)-Akkumulation wurde auch bei *P. fluorescens* und *Paenibacillus sp.* gefunden /8/.

Abbildung 6 illustriert die Anwendung potentiometrischer Titrations zur Bestimmung der U(VI) Komplexe mit funktionellen Gruppen der bakteriellen Zellmembran. Mit Hilfe dieser Methode erhält man thermodynamische Oberflächenstabilitätskonstanten mit deren Hilfe die

Speziation des U(VI) in diesem biologischen System beschrieben werden kann. Die Titrationskurve konnte am Besten angepasst werden, wenn die Komplexe $R-COO-UO_2^+$, $R-O-PO_3H-UO_2^+$, $R-O-PO_3-UO_2$, und $(R-O-PO_3)_2-UO_2^{2-}$ einbezogen werden. Die Experimente zeigten moderate bis starke Wechselwirkungen des U(VI) mit den funktionellen Gruppen der *Sporomusa*-Zellmembran über einen breiten pH-Bereich.

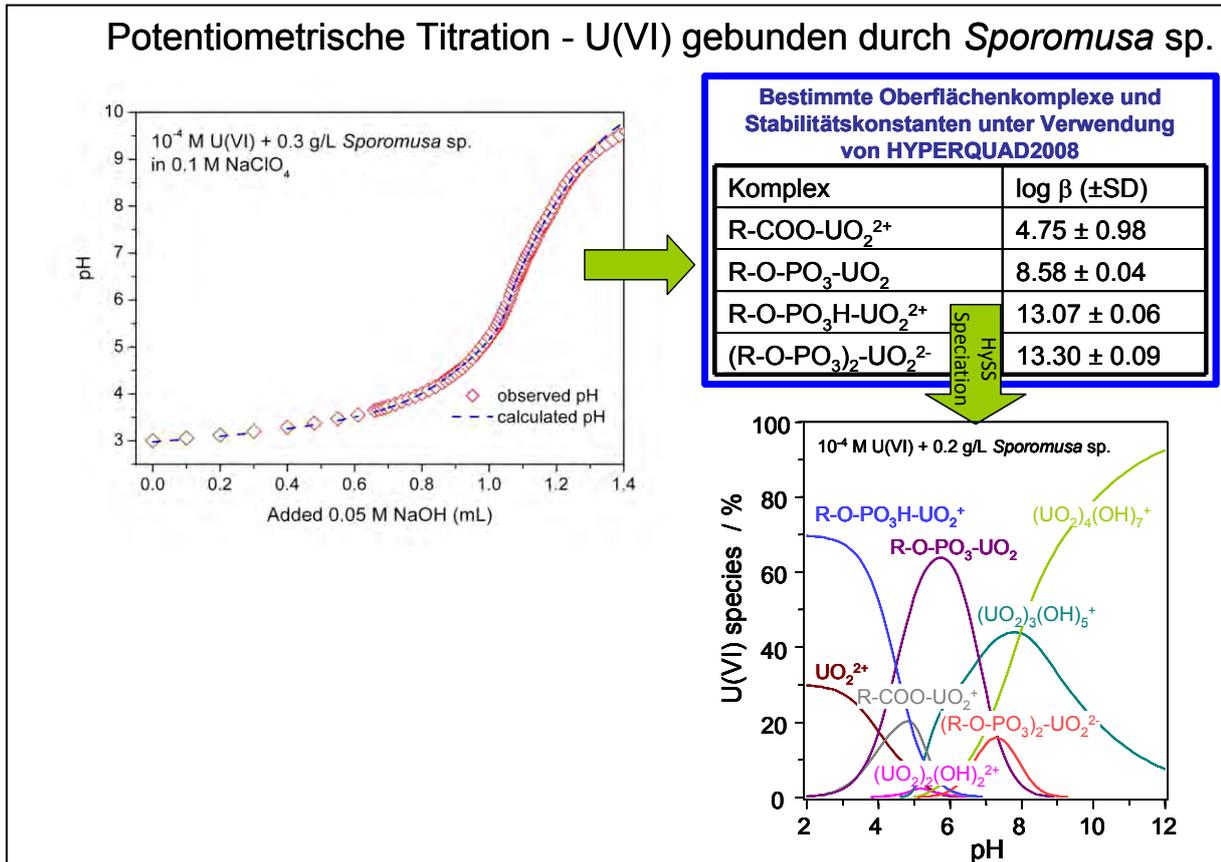


Abb. 6 U(VI)-Speziation im *Sporomusa* sp. System.

Die Affinität des U(VI) zu Phosphoryl-Gruppen ist wesentlich stärker als zu Carboxyl-Gruppen. Dies kann man durch einen höheren Gehalt an Phosphoryl-Gruppen (z.B. durch Lipopolysaccharide, LPS) in äußeren Bereichen der Zellmembran, wie er bei Gram-negativen Bakterien typisch ist, erklären. Hauptbestandteile der Zellwand von Gram-negativen Bakterien, die bei der Metallanbindung eine Rolle spielen, sind LPS und Peptidoglykan (PG). Die bakteriellen U(VI)-Stabilitätskonstanten sind vergleichbar mit denen des U(VI) an LPS und PG /10, 11/. Die so bestimmten U(VI) Komplexe mit funktionellen Gruppen der Zelloberfläche konnten erfolgreich mit der direkten Speziationsmethode zeitaufgelöste laserinduzierte Fluoreszenzspektroskopie (TRLFS) validiert werden.

Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassend werden die durchgeführten Speziationsuntersuchungen auf der Basis der bestimmten bakteriellen Stabilitätskonstanten dargestellt (Tabelle 1). Diese sind ein Maß für die Stärke der gebildeten Komplexe. Diese Konstanten sind ein wichtiges Ergebnis des Vorhabens, denn sie können direkt bei Modellierungen in Langzeitsicherheitsbetrachtungen für ein Endlager für radioaktive Abfälle sowohl im Ton als auch in anderen Endlagerformationen (Granit, Salz) eingesetzt werden.

Tabelle 1 Zusammenfassung der bakteriellen Stabilitätskonstanten.

Komplex	xyz	log β (\pm SD)		
		<i>P. fluorescens</i>	<i>Sporomusa</i> sp.	<i>Paenibacillus</i> sp.
R-COOH	011	4.65 \pm 0.13	4.80 \pm 0.06	4.90 \pm 0.05
R-O-PO ₃ H ⁻	011	6.62 \pm 0.13	6.68 \pm 0.06	6.66 \pm 0.10
R-NH ₃ ⁺ /R-OH	011	9.18 \pm 0.02	9.01 \pm 0.08	9.20 \pm 0.03
R-COO-UO ₂ ⁺	110	6.66 \pm 0.05	4.75 \pm 0.98	5.33 \pm 0.08
R-O-PO ₃ -UO ₂	110	7.54 \pm 0.18	8.58 \pm 0.04	8.89 \pm 0.04
R-O-PO ₃ H-UO ₂ ⁺	111	12.73 \pm 0.06	13.07 \pm 0.06	12.92 \pm 0.05
(R-O-PO ₃) ₂ -UO ₂ ²⁻	120	12.97 \pm 0.07	13.30 \pm 0.09	13.62 \pm 0.08
R-COO-Cm ²⁺	110	6.1 \pm 0.5 ^{TRLFS}	8.1 \pm 0.6 ^{TRLFS}	
R-O-PO ₃ -Cm ⁺	110			
R-O-PO ₃ H-Cm ²⁺	111	12.7 \pm 0.6 ^{TRLFS}	13.9 \pm 0.9 ^{TRLFS}	
(R-O-PO ₃) ₂ -Cm ⁻	120			
R-COO-Eu ²⁺	110	7.26 \pm 0.08	6.89 \pm 0.62	
		6.1 \pm 0.6 ^{TRLFS}	6.7 \pm 0.5 ^{TRLFS}	
R-O-PO ₃ -Eu ⁺	110		7.71 \pm 0.33	
R-O-PO ₃ H-Eu ²⁺	111	14.95 \pm 0.12	15.49 \pm 0.19	
		13.1 \pm 0.5 ^{TRLFS}	13.38 \pm 0.48 ^{TRLFS}	
(R-O-PO ₃) ₂ -Eu ⁻	120			

Generell kann festgestellt werden, dass starke Wechselwirkungen des U und Cm/Eu mit den Opalinus-Ton Isolaten und dem Äspö-Bakterium *P. fluorescens* innerhalb eines breiten pH-Bereichs (2-8) nachgewiesen werden konnten. In Abhängigkeit des pH-Wertes binden diese Metalle an Phosphoryl- und Carboxylgruppen der Zellmembran. Die Ergebnisse mit ²⁴²Pu

sollen hier kurz zusammengefasst werden, denn diese Untersuchungen laufen noch. Es konnten ebenfalls starke Wechselwirkungen von ^{242}Pu mit dem Opalinus-Ton Isolat *Sporomusa* sp. bei pH 6 ($\sim 78 \text{ mg Pu/g}_{\text{Trockenmasse}}$) nachgewiesen werden. Es zeigte sich, dass die abgestorbene Biomasse eine höhere ^{242}Pu -Bindungskapazität besitzt. Die Effizienz der ^{242}Pu -Entfernung aus der die Zellen umgebenden Lösung hängt von $[\text{}^{242}\text{Pu}]_{\text{initial}}$ ab. Wahrscheinlich in Folge der höheren Radiotoxizität wird weniger ^{242}Pu akkumuliert als ^{238}U . Rund 57 % des anfangs vorhandenen Pu(VI) wurde infolge der Aktivität der Zellen innerhalb der ersten 24 h zu Pu(V) reduziert (nach 72 h 95 %). Es bestehen gute Bindungseigenschaften von Pu(IV)-Polymeren an funktionellen Gruppen der Zellmembran (Immobilisierungseffekt). Es konnten Pu(III) und Pu(IV) an der Biomasse nachgewiesen werden. Aus den dargestellten Ergebnissen ergibt sich ein starker Einfluss der *Sporomusa* sp. Zellen auf die Pu-Speziation. Für die unterschiedlichen An konnten verschiedene Wechselwirkungsmechanismen nachgewiesen werden: a) U(VI) Biosorption mit teilweiser Biomineralisation, b) Cm(III) Biosorption mit Tendenzen für eingelagertes Cm(III), und c) Pu komplexer Mechanismus bestehend aus Biosorption, Bioreduktion und Tendenzen für eingelagertes Pu. Fazit: Der Mont Terri Opalinus-Ton enthält bakterielle Gemeinschaften. Die Mont Terri Opalinus-Ton Isolate können die Speziation und somit auch das Ausbreitungsverhalten ausgewählter An/Ln beeinflussen.

In der verbleibenden Projektlaufzeit liegt der Schwerpunkt auf den folgenden wissenschaftlichen Aufgaben:

- Abschluss der Pu Wechselwirkungsuntersuchungen mit den Mont Terri Opalinus-Ton Isolat *Sporomusa* sp.
- Auswertung der TEM/EDX-Untersuchungen zur Lokalisation von U(VI)/Eu(III) an den Isolaten.

Literatur

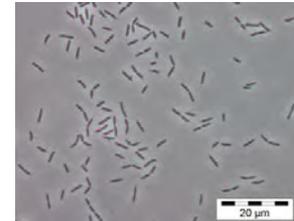
- /1/ Li, Li-Hung, et al.: Long-term sustainability of a high-energy, low-diversity crustal biome. *Science* 314, 479-482 (2006).
- /2/ Boivin-Jahns, V., et al.: Bacterial diversity in a deep-subsurface clay environment. *Appl. Environ. Microbiol.* 62, 3405-3412 (1996).

- /3/ Stroes-Gascoyne, S., et al.: Microbial community analysis of opalinus clay drill core samples from the Mont Terri Underground Research Laboratory, Switzerland. *Geomicrobiol. J.* 24, 1-17 (2007).
- /4/ Selenska-Pobell, S.: Diversity and activity of bacteria in uranium waste piles. *Interactions of Microorganisms with Radionuclides*, Elsevier Science Ltd. (2002).
- /5/ Pedersen, K.: Subterranean microorganisms and radioactive waste disposal in Sweden. *Eng. Geol.* 52, 163-176 (1999).
- /6/ Stroes-Gascoyne, S., et al.: Microbial analysis of PC water and overcore samples; synthesis of BGR, CNAB and AECL results. Presented at Mont Terri PC, PC-C and MA Meeting, BGR Hannover, Germany, 26./27.02.2008.
- /7/ Selenska-Pobell, S., et al.: Bacterial diversity in soil samples from two uranium waste piles as determined by rep-APD, RISA and 16S rDNA retrieval. *Anton Leeuw. Int. J.* 79, 149-161 (2001).
- /8/ Lütke, L., et al.: Insights on the Uranium(VI) Speciation with *Pseudomonas fluorescens* on a Molecular Level. *Dalton Trans.* 41, 13370-13378 (2012).
- /9/ Moll, H., et al.: Curium(III) speciation studies with cells of a groundwater strain of *Pseudomonas fluorescens*. *Geomicrobiol. J.* 30, 337-346 (2013).
- /10/ Barkleit, A., et al.: Interaction of uranium(VI) with lipopolysaccharide. *Dalton Trans.*, 2879-2886 (2008).
- /11/ Barkleit, A., et al.: Complexation of uranium(VI) with peptidoglycan. *Dalton Trans.*, 5379–5385 (2009).

Mikrobielle Diversität im Tongestein (Opalinus-Ton) und Wechselwirkung dominanter Mikroorganismen mit Actiniden

Vorhaben: 02E10618

Henry Moll, Laura Lütke, Velina Bachvarova, Andrea Geißler, Evelyn Krawczyk-Bärsch, Sonja Selenska-Pobell, Gert Bernhard



10. Projektstatusgespräch zu BMWi- und BMBF-geförderten FuE-Projekten der Endlagerforschung und der Nuklearen Sicherheitsforschung

Karlsruhe, 14.11.2012



HZDR



HELMHOLTZ
ZENTRUM DRESDEN
ROSSENDORF



Gliederung

1. Vorstellung des Vorhabens
2. Darstellung ausgewählter Ergebnisse
 1. Bakterielle Diversität im Mont Terri Opalinus-Ton
 2. Wechselwirkungen ausgewählter Actiniden (An) mit dem Ton-Isolat *Sporomusa* sp.
 3. Zusammenfassung/Ausblick
3. Ausblick auf zukünftige Forschungsvorhaben
 - Mikrobielle Wechselwirkungen mit An/Ln in der Endlagerformation Salz?

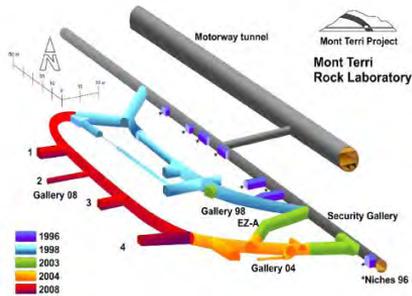
→ Forschungsbedarf

1. Das Vorhaben (1)

Laufzeit: 01.01.2009 bis 31.12.2012

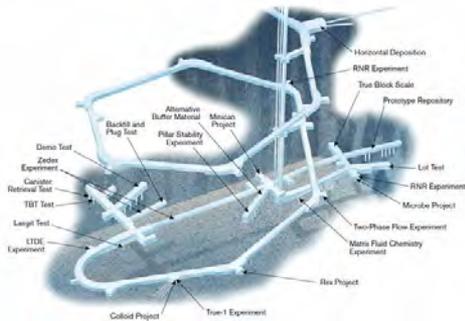
Arbeiten sind eingebunden in:

→ Deutsch-Schweizerische Kooperation im Untertagelabor Mont Terri



Mont Terri Experiment: microbial analyses (MA)

→ Deutsch-Schwedische Kooperation des BMWi im Äspö Hard Rock Laboratory



Source: www.skb.se

International cooperations: microbe project



Member of the Helmholtz Association

Henry Moll | Institute of Resource Ecology | <http://www.hzdr.de>

1. Das Vorhaben (2) - Kooperationen



Bundesanstalt für Geowissenschaften und Rohstoffe Hannover
(Dr. Gäbler)



UGR | Universidad
de Granada

University of Granada, Department of Microbiology, Spain
(Prof. Dr. M.L. Merroun)

Zusammenarbeit mit dem Verbundprojekt: Actinidenmigration im natürlichen Tongestein –
Charakterisierung und Quantifizierung des Einflusses von Tonorganika auf die
Wechselwirkung von U und Am im Ton
Vorhaben: BMWi 02E10156 (Dr. K. Schmeide)

1. Das Vorhaben - Ziele

Mikroben beeinflussen
signifikant das
Umweltverhalten von
Radionukliden



Begrenztes Wissen über die
mikrobielle Diversität in
geologischen Formationen die zur
Lagerung von nuklearem Abfall
vorgesehen sind, wie z.B. Ton

Eine potentielle Tonformation zur Lagerung von nuklearem Abfall in Europa:
Opalinus-Ton des Mont Terri Untertagelabors, Schweiz



**Charakterisierung der Bakterien im Mont Terri
Opalinus-Ton
und
Untersuchung des Wechselwirkungsverhaltens der
isolierten/dominierenden Bakterien mit Actiniden**



1. Das Vorhaben - Arbeitspakete

AP 1: Direkte Untersuchung bakterieller Diversität in Opalinus-Ton- und Porenwasserproben

AP 2: Kultivierung Opalinus-Ton spezifischer Bakterien

AP 3: Untersuchung der Wechselwirkungen der Ton spezifischen Bakterien mit ausgewählten Actiniden (U, Pu, Cm)

AP 4: Untersuchung der Wechselwirkungen von Biofilmen Äspö-relevanter Bakterien mit Actiniden (U, Pu, Cm)



2. Darstellung ausgewählter Ergebnisse

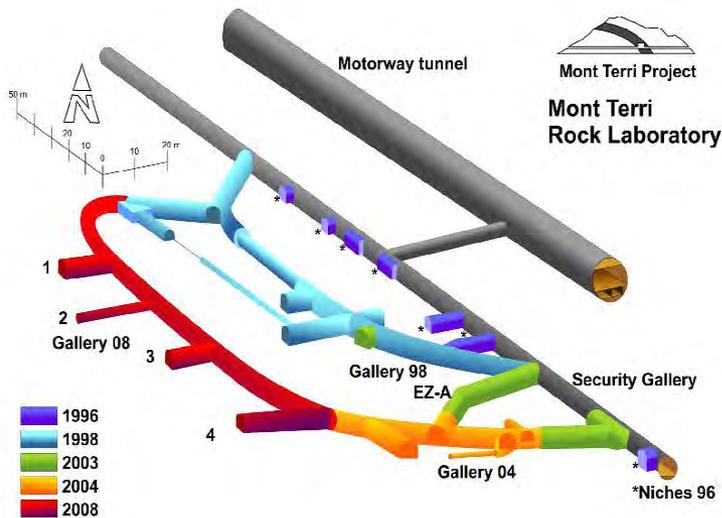
- 2.1 Probenahme und bakterielle Diversitätsuntersuchungen
- 2.2 Kultivierung und Charakterisierung der Isolate
- 2.3 Änderung der Actiniden-Speziation durch Ton-Isolate
 - 2.3.1 *Sporomusa* sp. + U(VI)
 - 2.3.2 *Sporomusa* sp. + Cm(III)/Eu(III)
 - 2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu
- 2.4 Zusammenfassung

2.1 Probenahme

Zwei Proben MT-1 und MT-2 entnommen unter Ar-Atmosphäre

Datum: 21.04.2009

Ort: Gallery 08



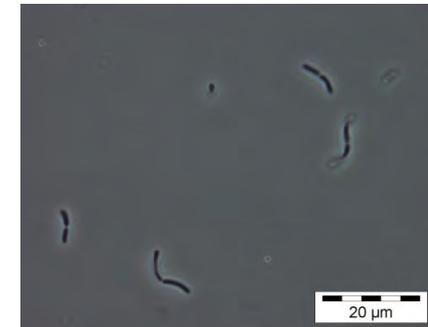
Sample	Depth (m)	Storage
MT-1	9,5 - 11	RT, anaerobic conditions
MT-2	13,6 - 14,5	RT, anaerobic conditions at -70°C for direct analysis

2.1 Bakterielle Diversitätsuntersuchungen

Bestimmung der bakteriellen Gemeinschaften in Opalinus-Tonproben

I. Direkte molekulare kultur-unabhängige Methoden

- Isolierung der Gesamt-DNA un behandelter Opalinus-Tonproben
- PCR-Amplifizierung der 16S rRNA Gene
- Konstruktion von 16S rDNA Klon-Bibliotheken
- Phylogenetische Analyse

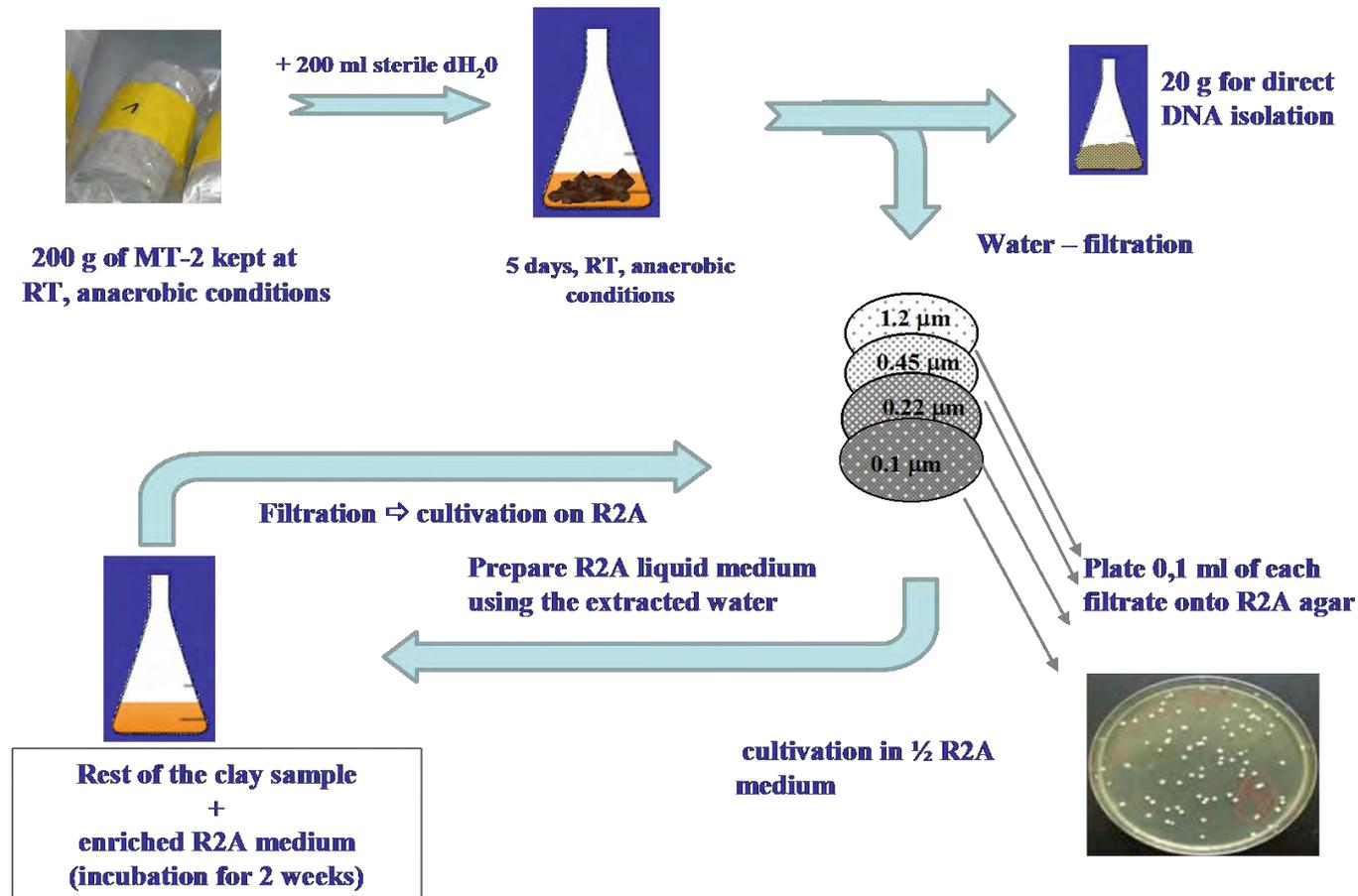


II. Kultivierungsmethoden

- Kultivierung natürlich vorkommender Bakterien
- Phylogenetische, physiologische und morphologische Charakterisierung der kultivierten Isolate
- Medium: R2A (0.5 g/L Pepton, 0.5 g/L Hefeextrakt, 0.5 g/L Caseinhydrolysat, 0.5 g/L Glucose, 0.5 g/L Stärke, 0.3 g/L K_2HPO_4 , 0.3 g/L Natriumpyruvat, 0.05 g/L $MgSO_4 \cdot 7H_2O$ in 1 L H_2O) Stimulierung heterotropher Bakterien

2.1 Bakterielle Diversitätsuntersuchungen

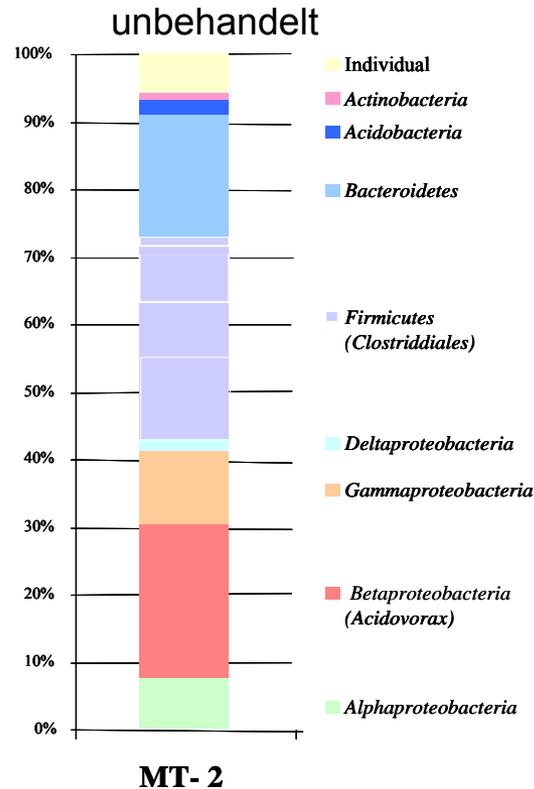
Experimentelle Durchführung



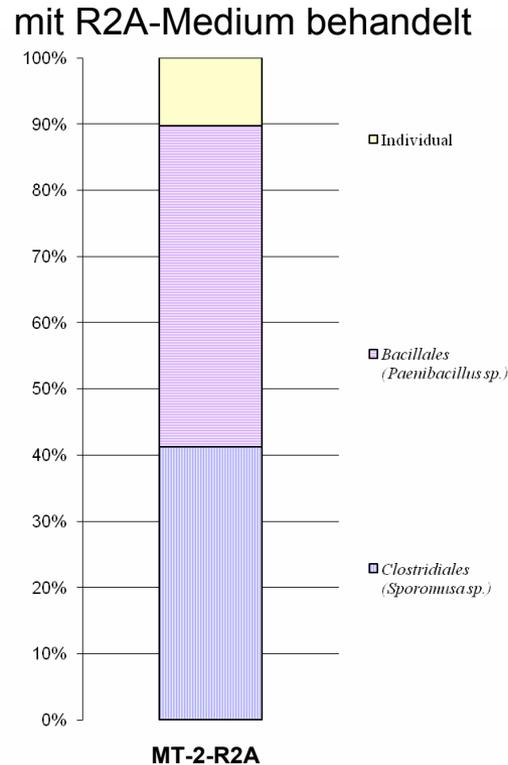
2.1 Bakterielle Diversitätsuntersuchungen

Direkte molekulare kultur-unabhängige Methoden

- Erstmals aus 50 g unbehandeltem Mont Terri Opalinus-Ton Gesamt-DNA isoliert
- Quantifizierung: aus 5.6 g Ton mit R2A behandelt ~ 150 ng Gesamt-DNA



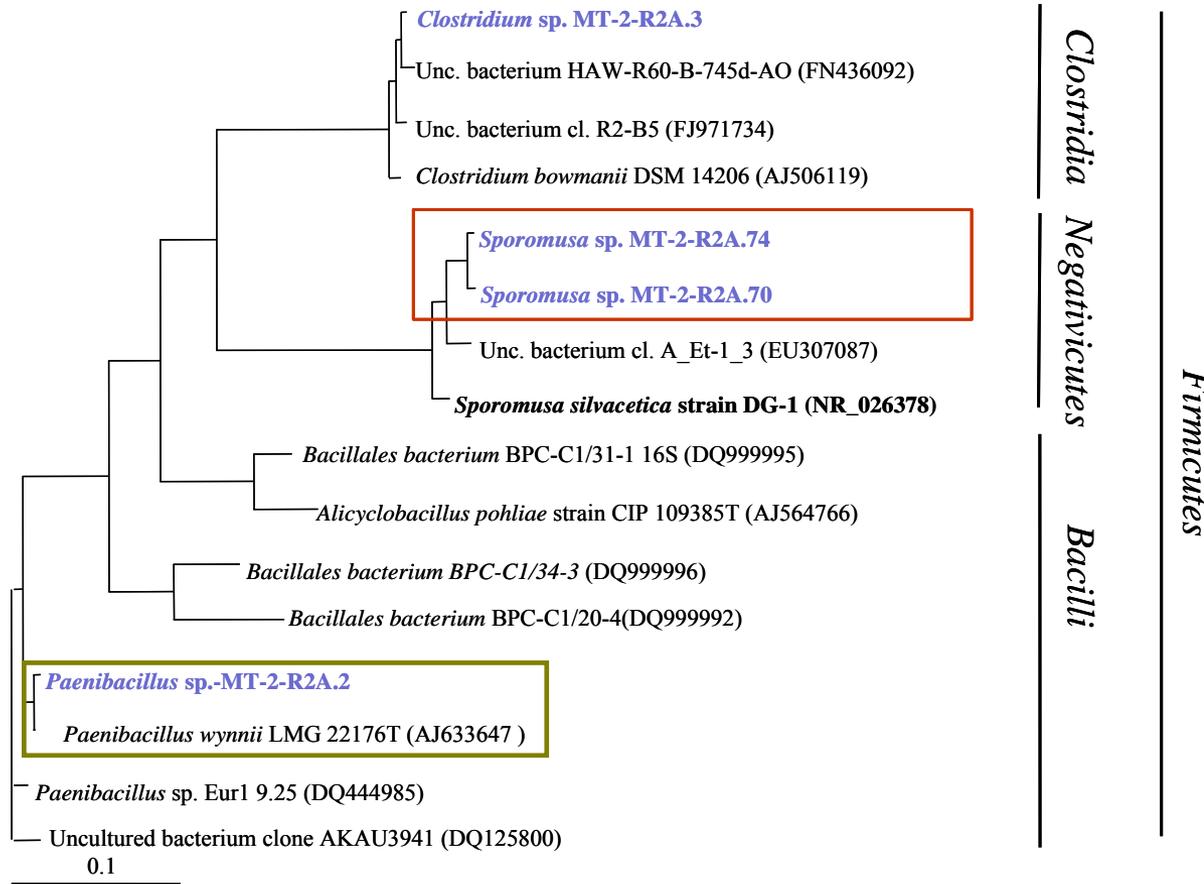
Vertreter von *Beta-Proteobakterien*,
Firmicutes und *Bacterioidetes* dominieren



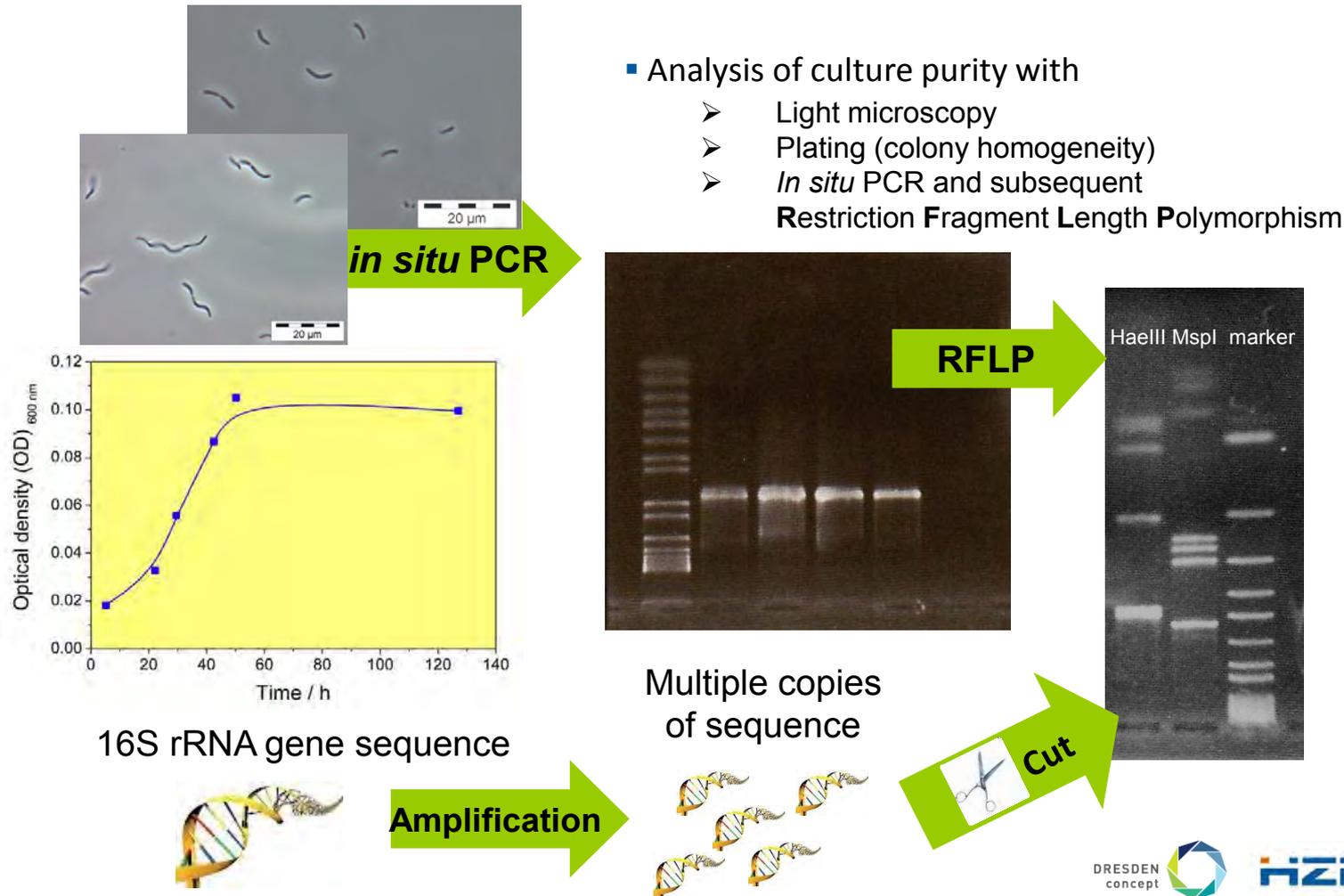
Vertreter der *Firmicutes*
überwiegen

2.1 Bakterielle Diversitätsuntersuchungen

Phylogenetisches Dendrogramm der 16S rRNA Gene der Isolate aus Mont Terri Opalinus-Ton (mit R2A Medium behandelt)



2.2 Kultivierung und Charakterisierung der Isolate: *Sporomusa* sp. Reinheit und Wachstum

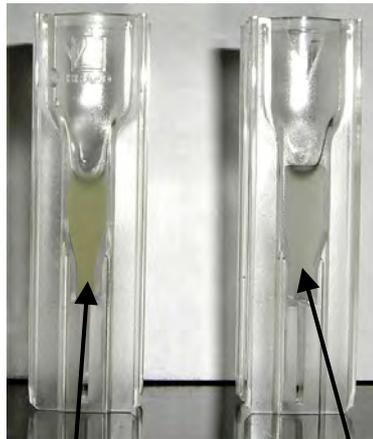


2.2 Kultivierung und Charakterisierung der Isolate: *Sporomusa* sp.

Charakterisierung der Zellwandstruktur und Morphologie

Aminopeptidase Test

Aminopeptidase is almost only present in Gram-negative bacteria and cleaves L-alanine from L-alanine 4-nitroanilide to yield 4-nitroanilide (yellow)



Sporomusa
sp. nov.

Paenibacillus sp.
(Gram-positive)

↓
Gram-negative

KOH String Test

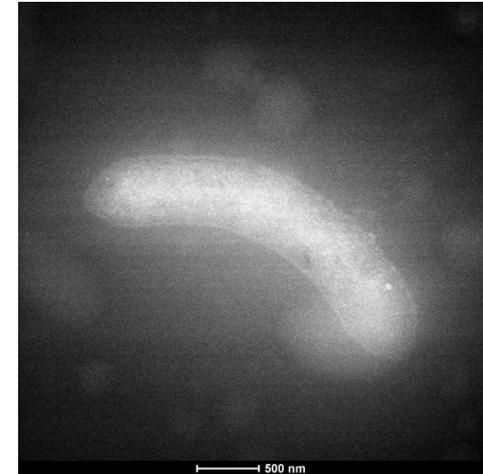
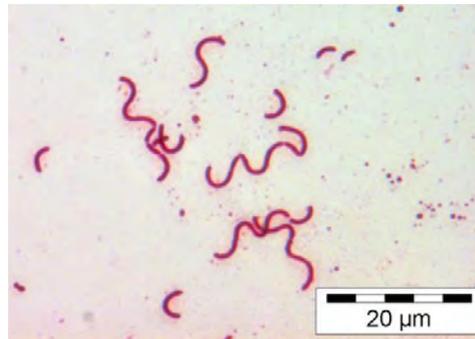
Gram-negative cell walls undergo lysis in presence of 3 % KOH

→ lysis was observed

Gram Staining

Incubation with crystal violet and subsequent counter stain with basic fuchsin

→ pink colored cells → Gram-negative



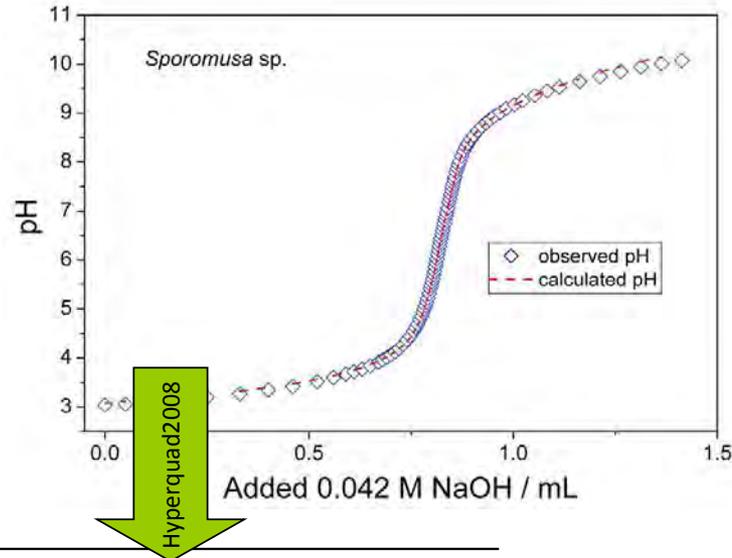
2.2 Kultivierung und Charakterisierung der Isolate: *Sporomusa* sp.

Charakterisierung der funktionellen Gruppen der Zellwand

Parameter:

[Biotrockenmasse / BTM]	0.30 g/L
[Titrant, NaOH]	0.042 M
Ionenstärke	0.099 M NaCl + 0.001 M HCl = 0.1 M
Titriertes Volumen	40 mL
pH-Bereich	3 – max. 10.5

• Titration unter N₂-Atmosphäre



Type of Surface Site	pK _A values		Site Densities (mmol/g _{dry biomass})	
	<i>P. fluorescens</i> [1]	<i>Sporomusa</i> sp.	<i>P. fluorescens</i>	<i>Sporomusa</i> sp.
Carboxyl	4.65 ± 0.13	4.80 ± 0.06	0.82 ± 0.06	0.53 ± 0.08
Phosphoryl	6.62 ± 0.13	6.68 ± 0.06	0.36 ± 0.09	0.35 ± 0.03
Amine/ -OH	9.18 ± 0.02	9.01 ± 0.08	0.78 ± 0.24	0.48 ± 0.05

Ähnliche pK_S Werte

Site densities unterschiedlich

[1] Moll, H., Lütke, L., Barkleit, A., Bernhard, G. (2012) Geomicrobiol. J., DOI: 10.1080/01490451.2012.688927.

2.3 Änderung der Actiniden-Speziation durch Ton-Isolate

- Mikroben sind natürliche Bestandteile der Umwelt mit einem signifikanten Einfluss auf das Ausbreitungsverhalten von Actiniden (An)



Notwendigkeit der Aufklärung von a) der bakteriellen An-Spezies und b) der Wechselwirkungsmechanismen in Endlagerformationen für nuklearen Abfall

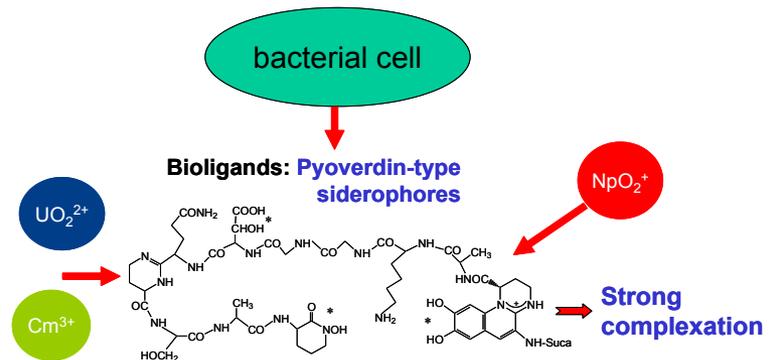
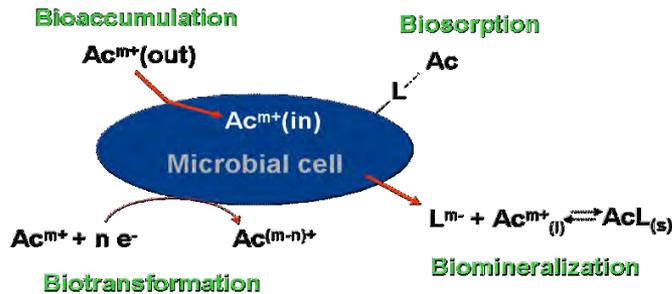
- An-Bakterien-Wechselwirkungen können unterteilt werden in:

a) **direkte Prozesse**

z.B. Metallaufnahme, Bio-sorption, -reduktion, -mineralisation

b) **indirekte Prozesse**

z.B. Komplexierung durch von Zellen freigesetzte Bioliganden

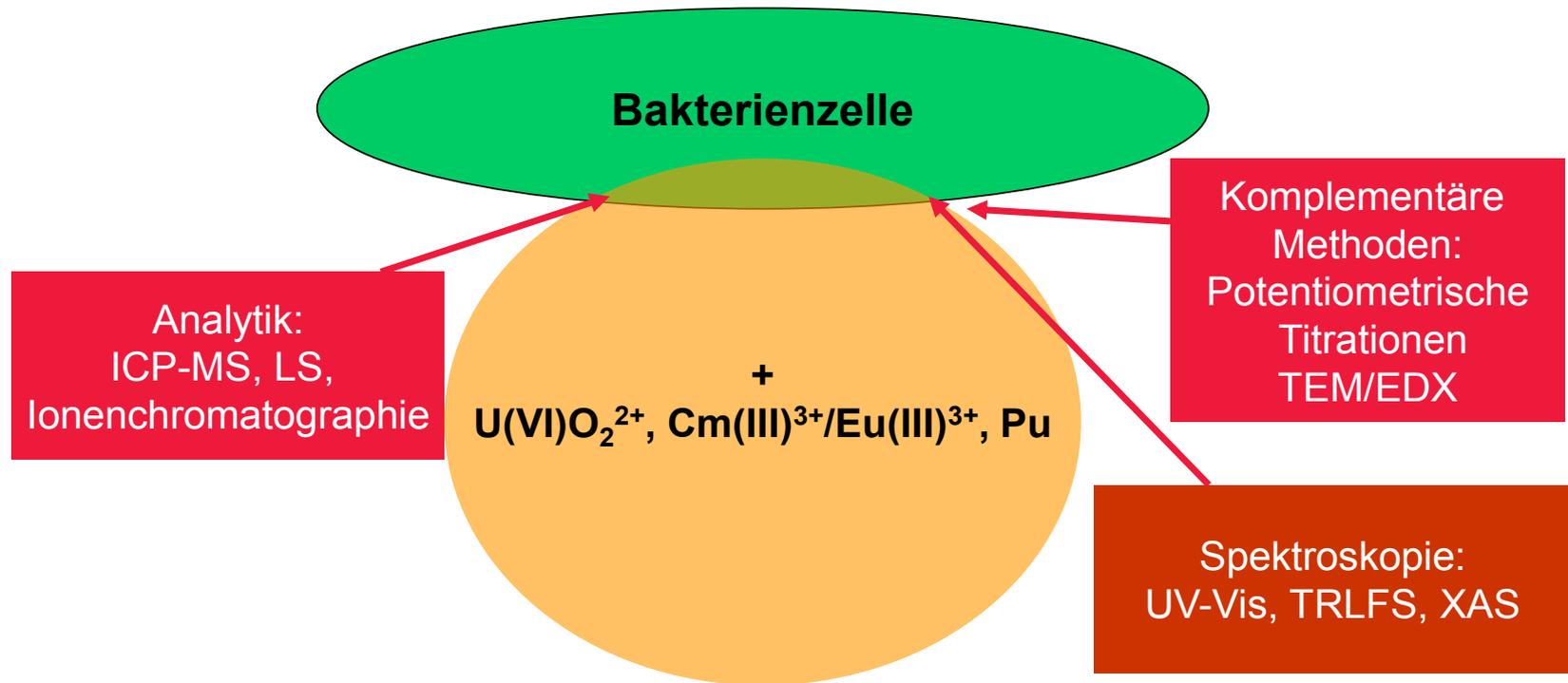


➔ Vorhaben BMWi 02E9491 Mikroben 1 und Vorhaben BMWi 02E10618 Ton-Mikroben

➔ Vorhaben BMWi 02E9985 Bioliganden

2.3 Änderung der Actiniden-Speziation durch Ton-Isolate

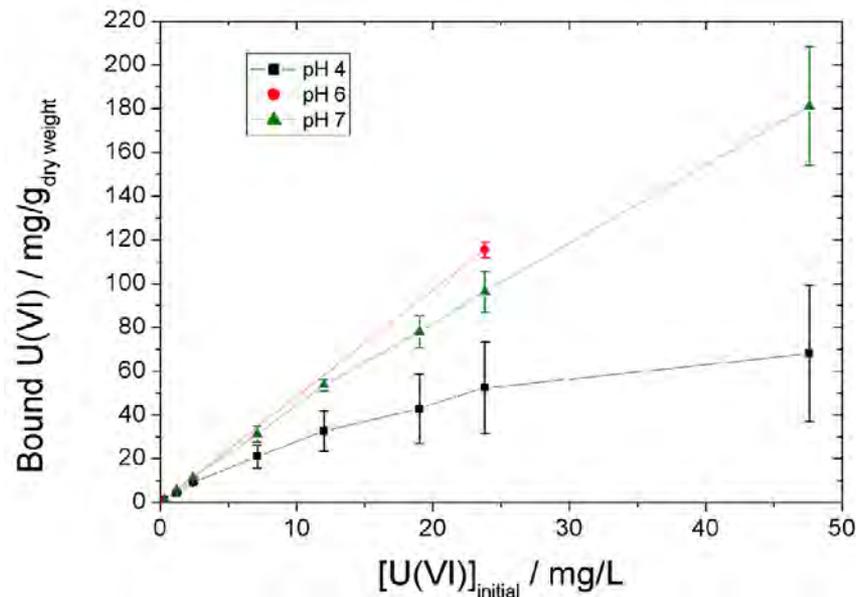
Allgemeines



Aufklärung der An/Ln-Speziation in biologischen Systemen

2.3.1 *Sporomusa* sp. + U(VI)

U(VI) Akkumulation in Abhängigkeit von $[U]_{\text{initial}}$



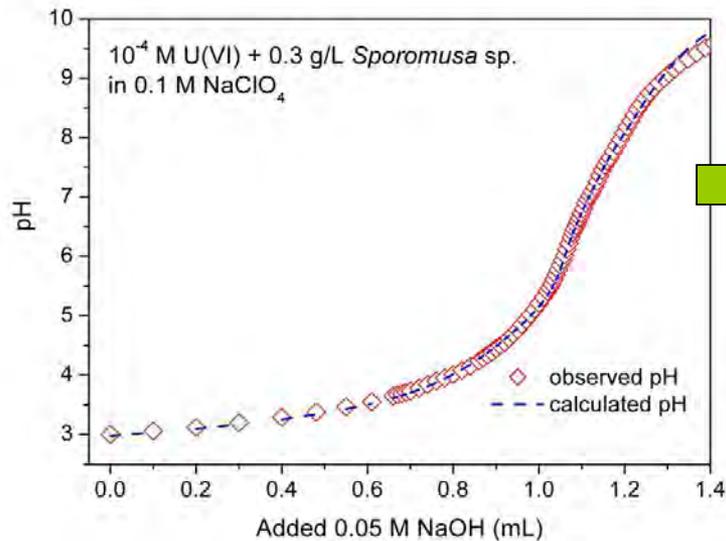
$[UO_2^{2+}]_{\text{initial}}$	0.3 – 48.0 mg/L
U Kontaktzeit	48 h
[BTM]	0.2 g/L
Medium	0.1 M NaClO ₄

→ Akkumulation von U(VI) durch *Sporomusa* sp. ist pH abhängig

→ Maximale Akkumulation bei pH 6

2.3.1 *Sporomusa* sp. + U(VI)

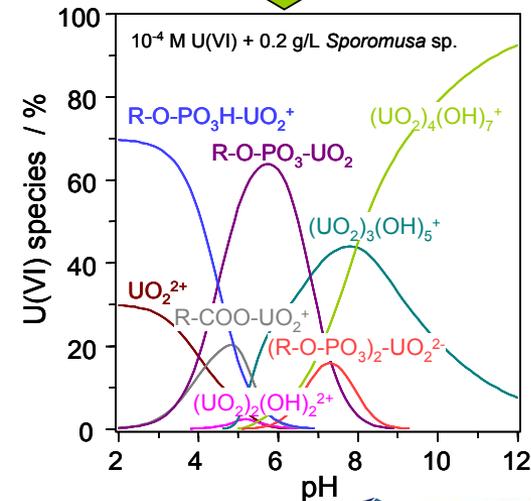
Potentiometrische Titration - U(VI) gebunden durch *Sporomusa* sp.



Bestimmte Oberflächenkomplexe und Stabilitätskonstanten unter Verwendung von HYPERQUAD2008

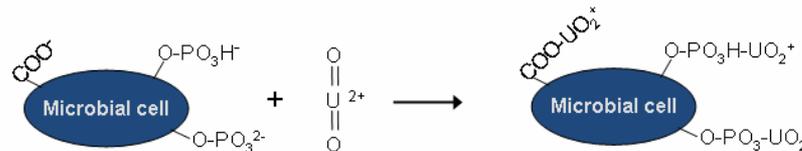
Komplex	log β (±SD)
R-COO-UO ₂ ²⁺	4.75 ± 0.98
R-O-PO ₃ -UO ₂	8.58 ± 0.04
R-O-PO ₃ H-UO ₂ ²⁺	13.07 ± 0.06
(R-O-PO ₃) ₂ -UO ₂ ²⁻	13.30 ± 0.09

Speciation
HYSS



Schlussfolgerung

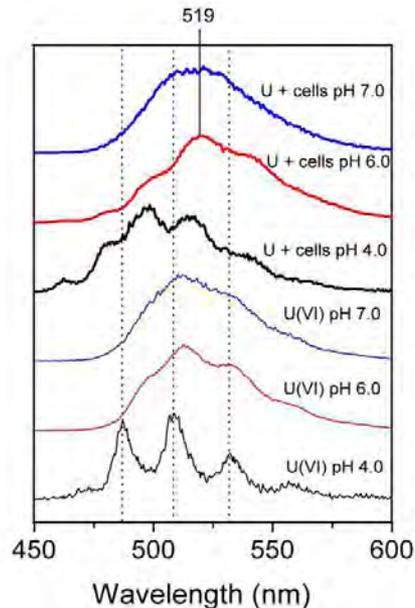
→ In Abhängigkeit des pH U(VI)-Anbindung an Carboxyl- und Phosphoryl-Gruppen (überwiegen)



2.3.1 *Sporomusa* sp. + U(VI)

Time-resolved Laser-induced Fluorescence Spectroscopy (TRLFS)

Parameter: $[UO_2^{2+}]_{\text{initial}}: 1 \cdot 10^{-4} \text{ M}$ U-Kontaktzeit: 48 h [BTM]: 0.2 g/L Medium: 0.1 M $NaClO_4$



Species	Emission Maxima (nm)				Lifetimes [μs]	Reference
U(VI), pH 4	488.0	509.1	532.2	557.0	1.3 ± 0.1 8.0 ± 0.7	
U(VI), pH 6	-	513.1	-	-	7.8 ± 0.1 24.1 ± 3.8	
U(VI), pH 7	-	512.8	-	-	7.4 ± 0.3 23.5 ± 0.9	
$(R-COO)_2-UO_2$	498	518	539	566	0.7 ± 0.1	[1]
$R-O-PO_3H-UO_2^+$	497.2	518.9	542.4	567.3	8.3 ± 0.6	[2]
$R-O-PO_3-UO_2$	498.1	519.6	542.9	567.5	1.2 ± 0.4	[2]
$(R-O-PO_3)_2-UO_2^{2-}$	499.7	521.0	544.3	568.9	13.3 ± 1.4	[2]
UO_2-F6P	497.1	519.0	543.3	568.9	0.13 ± 0.05	[3]
U(VI) + <i>Sporomusa</i> sp., pH 4	496.3	515.6	536.7	-	0.27 ± 0.01 2.31 ± 0.01	
U(VI) + <i>Sporomusa</i> sp., pH 6	498.0	519.4	540.0	-	-	
U(VI) + <i>Sporomusa</i> sp., pH 7	-	519.0	-	-	0.80 ± 0.01 6.19 ± 0.17	

Zusammenfassung:

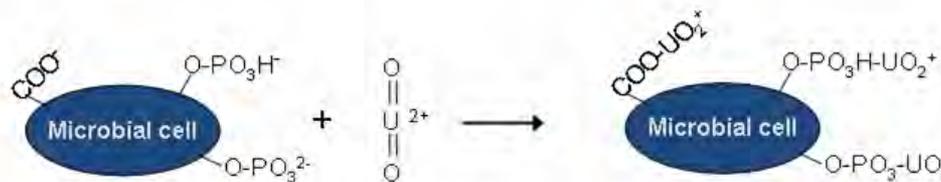
- Aus Emissionsmaxima bei $pH \geq 6$ folgt steigender Einfluss von (deprotonierten) Phosphoryl-Gruppen
- Bei pH 6 U(VI)-Anbindung am Effizientesten (HySS Speziation → Maximum des $R-O-PO_3-UO_2$ Komplexes)

[1] Barkleit et al. (2009) Dalton Trans. 27, 5379-5385., [2] Barkleit et al. (2008) Dalton Trans. 21, 2879-2886., [3] Koban et al. (2004) Radiochim. Acta 92, 903-908.

2.3.1 *Sporomusa* sp. + U(VI)

Zusammenfassung

→ Phosphoryl- und Carboxyl-Gruppen der Zellmembran sind für U(VI)-Anbindung verantwortlich



→ Erfolgreiche Validierung der U(VI)-Speziation mittels TRLFS

→ Die berechneten Stabilitätskonstanten lassen auf moderate bis starke Wechselwirkungen des U(VI) mit Oberflächenfunktionalitäten der Zellen schließen.

→ log β Werte können zur Vorhersage der U(VI)-Speziation z.B. in Umgebungen von nuklearen Endlagern genutzt werden

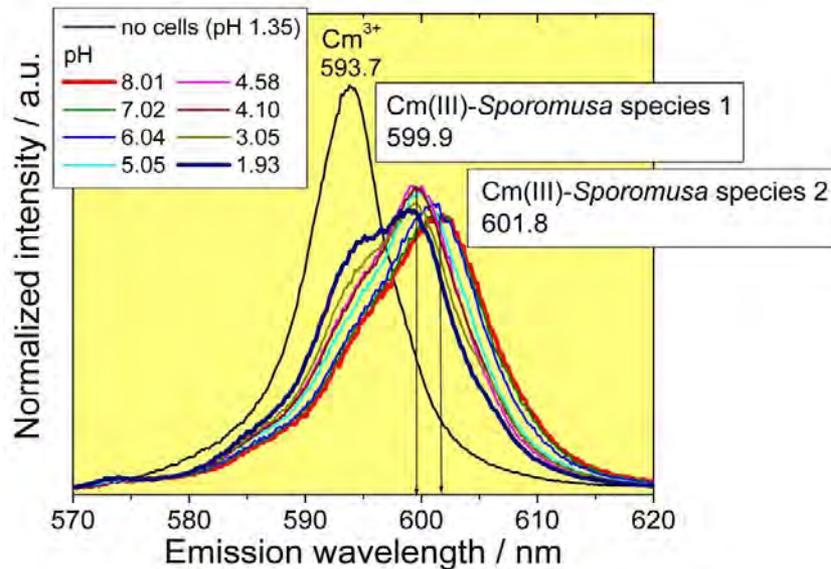
2.3.2 *Sporomusa* sp. + Cm(III)

TRLFS Ergebnisse

Parameter

[Cm³⁺]_{initial} : 0.3 µM
Medium: 0.1 M NaClO₄
[BTM]: 0.02 g/L
Anregungswellenlänge: 396 nm

Cm-Kontaktzeit: 15 Minuten



→ Cm(III)-Speziation an der Zelloberfläche ist pH-abhängig

→ Zwei Cm-Koordinationsumgebungen (funktionelle Gruppen der Zelloberfläche)

→ Unabhängig vom pH, ≥ 80% des Cm(III) an den Zellen gebunden

2.3.2 *Sporomusa* sp. + Cm(III)

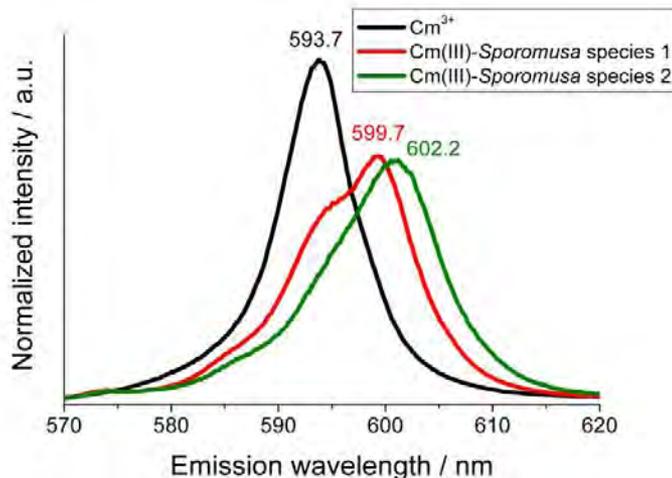
Spektroskopische Speziation mittels Faktoranalyse (SPECFIT^[1])

Eingabeparameter:

- Normalisierte TRLFS-Spektren
- Bekannte und berechnete Total-Konzentrationen des Cm³⁺ und der der funktionellen Gruppen an der Zelloberfläche von *Sporomusa* sp.
- pH-Wert jeder Probe
- Stabilitätskonstanten der Curium(III)-hydroxide^[2]



Einzelkomponentenspektren und Stabilitätskonstanten



Cm(III)–*Sporomusa* Spezies 1:

R–O–PO₃H–Cm²⁺; log β = 13.9 ± 0.9

Mittlere Lumineszenzlebensdauer: 250 μs

Cm(III)–*Sporomusa* Spezies 2:

R–COO–Cm²⁺; log β = 8.0 ± 0.6

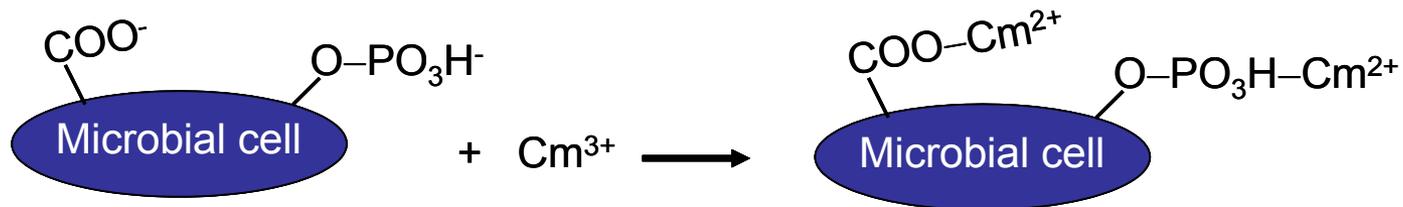
Mittlere Lumineszenzlebensdauer: 110 μs

[1] Binstead RA, Zuberbühler AD, Jung B. 2004 SPECFIT Global Analysis System Version 3.0.35, [2] Guillaumont, R., et al.: Update on the chemical thermodynamics of uranium, neptunium, plutonium, americium and technetium, OECD/NEA, Paris, 2003.

2.3.2 *Sporomusa* sp. + Cm(III)

Zusammenfassung

- Starke Wechselwirkungen über breiten pH- (1.5 → 8) und Biomassekonzentrationsbereich (0.01–200 mg_{Trockenmasse}/L)
- pH-abhängige Cm(III)-Koordination an funktionellen Gruppen der Zellmembran
- Saurer pH: protonierte Phosphoryl-Gruppen gefolgt von Carboxyl-Gruppen



- Biosorption und Bioakkumulation wahrscheinlich innerhalb der Zellmembranstruktur (nach Desorption mit 0.01 M EDTA: ~30 % irreversibel gebundenes Cm)
- Erfolgreiche Validierung der Cm-TRLFS Ergebnisse durch potentiometrische Titrations mit dem Analogon Eu(III)

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu

Plutonium Oxidationszustandsverteilung – Charakterisierung der Plutonium-Stammlösung

→ Flüssig-flüssig Extraktion und Flüssig-Szintillationsspektrometrie (LS)

➤ Extraktionsmittel:

a) Thenoyl-trifluoro-aceton (TTA, 0.5 M) in Xylol

b) Di(2-ethylhexyl) Phosphorsäure (HDEHP, 0.5 M) in Toluol

organische Phase

wässrige Phase

1 TTA bei pH 0

+4

+3, +5, +6, Pu(IV)-Polymer

2 HDEHP bei pH 0

+4, +6

+3, +5, Pu(IV)-Polymer

3 HDEHP bei pH 1

+3, +4, +6

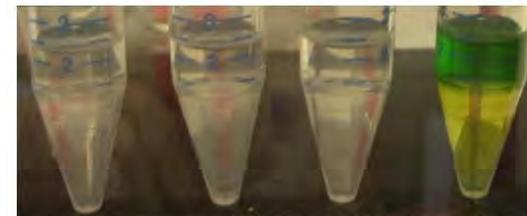
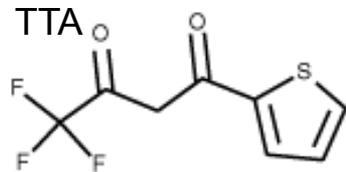
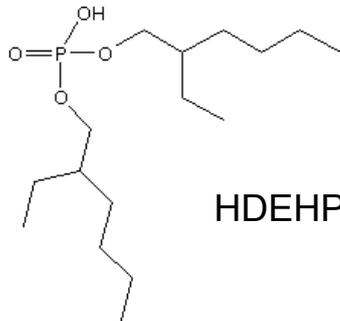
+5, Pu(IV)-Polymer

4 HDEHP bei pH 0

+3, +4, +5, +6

Pu(IV)-Polymer

+ 0.021 M $\text{Cr}_2\text{O}_7^{2-}$



Organic phase

Aqueous phase

TTA
at pH 0

HDEHP
at pH 1

HDEHP
at pH 0

HDEHP +
0.021 M
 $\text{Cr}_2\text{O}_7^{2-}$
at pH 0

Nitsche, H. et al.: Determination of plutonium oxidation states at trace levels pertinent to nuclear waste disposal. J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles 124/1, 171-185 (1988)., Nitsche, H. et al.: Long term plutonium solubility and speciation studies in a synthetic brine. Radiochim. Acta 66/67, 3-8 (1994).

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu

Plutonium Oxidationszustandsverteilung - Charakterisierung der Plutonium-Stammlösung

- Oxidative Auflösung von $^{242}\text{PuO}_2$ in HNO_3 in Gegenwart von AgNO_3 und $\text{K}_2\text{S}_2\text{O}_8$
- Herstellung $^{242}\text{Pu(VI)}$ -Stammlösung durch Elektrolyse in 3 M HClO_4



Percentage	^{242}Pu starting solution
Pu(IV)	50 ± 1
Pu(VI)	5 ± 1
Pu(III)	2 ± 2
Pu(V)	14 ± 1
Pu(IV)-polymer	21 ± 3
Recovered	95 ± 4

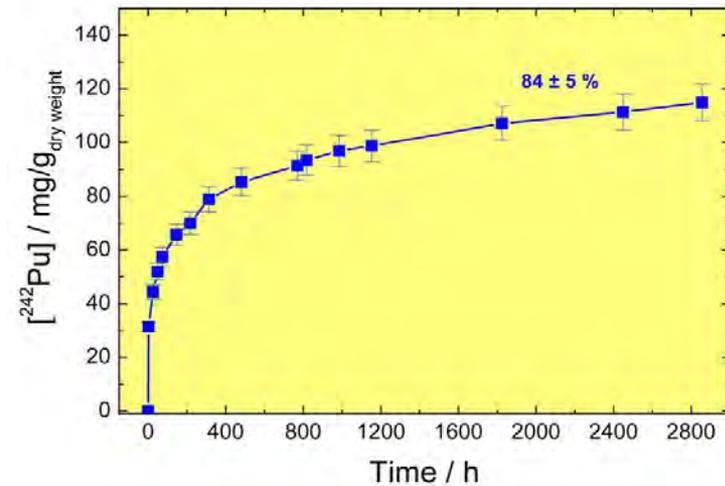
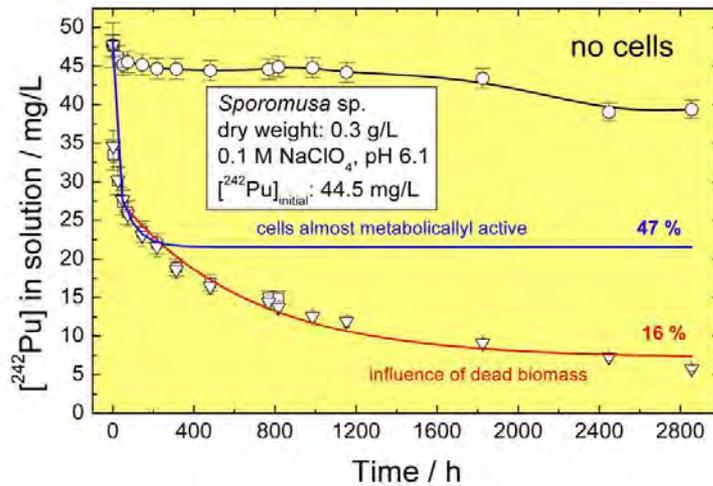
Percentage	^{242}Pu stock solution
Pu(IV)	0.8 ± 0.02
Pu(VI)	75 ± 2
Pu(III)	7 ± 1
Pu(V)	0
Pu(IV)-polymer	18 ± 0.5
Recovered	95 ± 4

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu Experimentelles



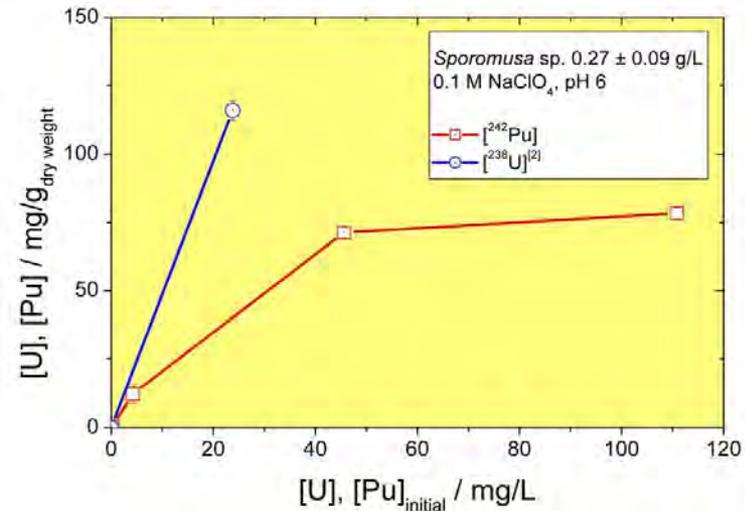
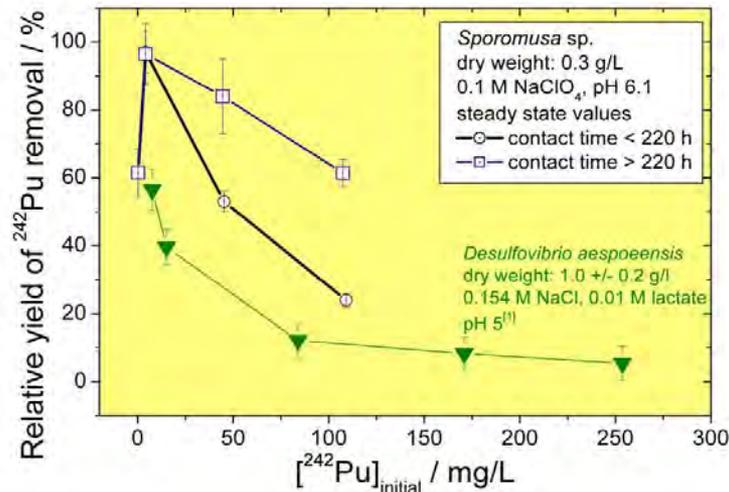
- *Sporomusa* sp. im R2A-Medium unter anaeroben Bedingungen bis zu einer optischen Dichte bei 600 nm (OD_{600}) von 0.08 – 0.10 kultiviert; Biomasse in der mittleren exponentiellen Wachstumsphase durch Zentrifugation abgetrennt und gewaschen
- Biotrockenmasse (BTM): 0.3 g/L
- ^{242}Pu Oxidationszustandsbestimmung durch Extraktion und Absorptionsspektroskopie
- Parameter: 0.1 M NaClO_4 und pH 6.1, kein Elektronendonator
- **Set 1:** Variation of $[\text{}^{242}\text{Pu}]_{\text{initial}}$: 0.2 to 107 mg/L
- **Laufende und geplante Untersuchungen:**
 - **Set 2:** detaillierte Studie zur Pu-Oxidationszustandsverteilung bei $[\text{}^{242}\text{Pu}]_{\text{initial}}$: 14 mg/L; E_h -Messung
 - **Set 3:** Zugabe von Elektronendonator; E_h -Messung
- Pu-Konzentrationen bestimmt mittels LS

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu Kinetik



- Wenigstens zwei Prozesse beeinflussen die Abnahme des ^{242}Pu in der Lösung
- Abgestorbene Biomasse zeigt höhere Pu-Aufnahmekapazität ($t > \sim 220 \text{ h}$)

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu Effizienz der bakteriellen Pu-Entfernung



- [²⁴²Pu]_{initial} beeinflusst Effizienz der ²⁴²Pu-Entfernung aus der umgebenden Lösung
- Höhere Bindungskapazität der abgestorbenen Biomasse
- *Sporomusa* sp. akkumuliert mehr ²⁴²Pu als z.B. *Desulfovibrio äspöensis*^[1]
- Tendenz erkennbar, dass weniger ²⁴²Pu akkumuliert wird als ²³⁸U
- Höhere Radiotoxizität von ²⁴²Pu

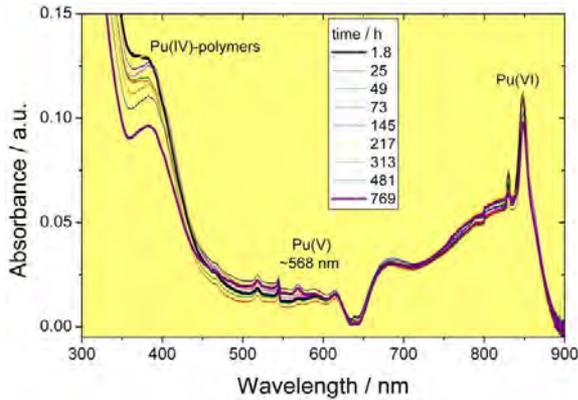
[1] Moll, H. et al.: The interaction of *Desulfovibrio äspöensis* DSM 10631^T with plutonium. Radiochim. Acta 94, 815-824 (2006).

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu

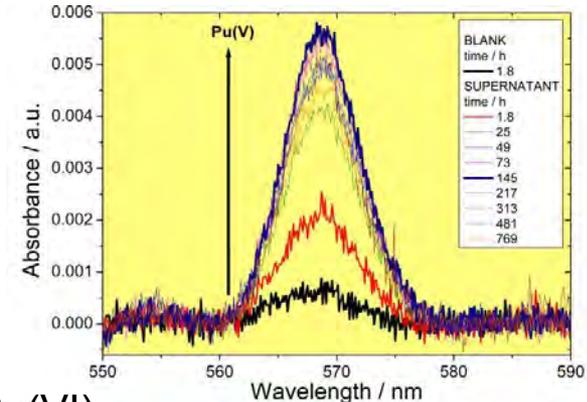
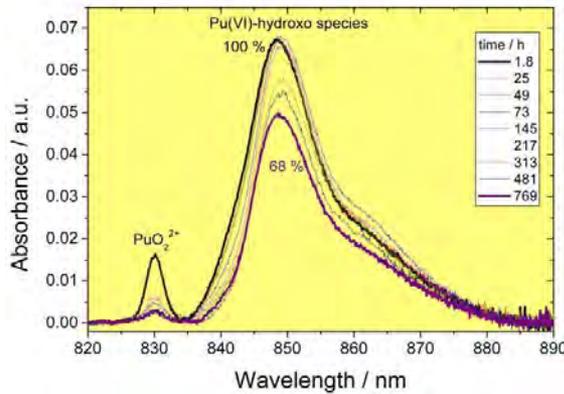
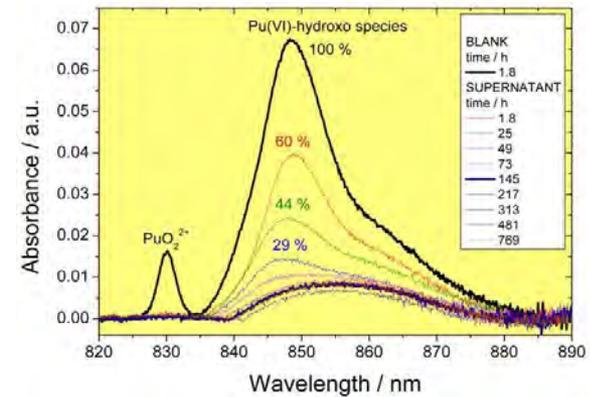
Pu-Oxidationszustandsverteilung – Erste Einblicke mittels Absorptionsspektroskopie

$[^{242}\text{Pu}]_{\text{initial}}$ 107 mg/L

Blank



Supernatant

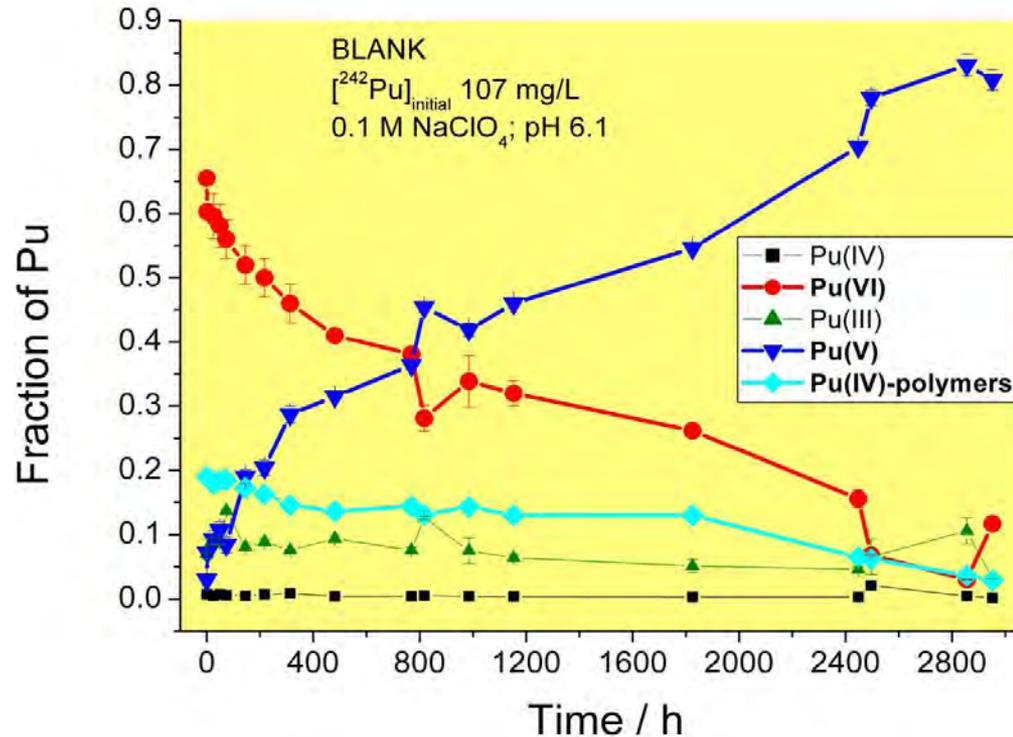


→ Abnahme von Pu(VI)

→ Bildung von Pu(V)

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu

Pu-Oxidationszustandsverteilung – Flüssig-flüssig Extraktion der Blanks



→ Hauptoxidationszustände am Anfang:

Pu(VI) $58 \pm 2 \%$ and Pu(IV)-Polymere $18 \pm 1 \%$

→ Instabilität des Pu(VI) (z.B. durch α -Strahlung): abiotische Pu(VI)-Reduktion

→ Wiederfindung des Pu: $95 \pm 4 \%$

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu

Pu-Oxidationszustandsverteilung – Flüssig-flüssig Extraktion der Überstände

Average values at $t > 72$ h:

Pu(V): 89 ± 5 %

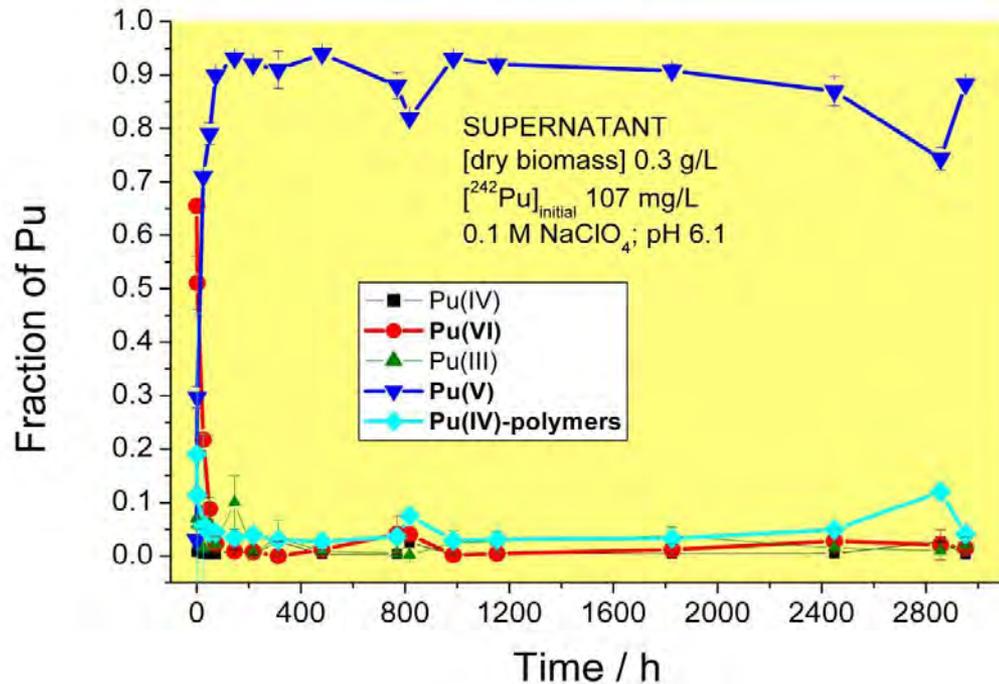
Pu(VI): 2 ± 1 %

Pu(IV): 1 ± 1 %

Pu(III): 2 ± 1 %

Pu(IV)-polymers: 4 ± 3 %

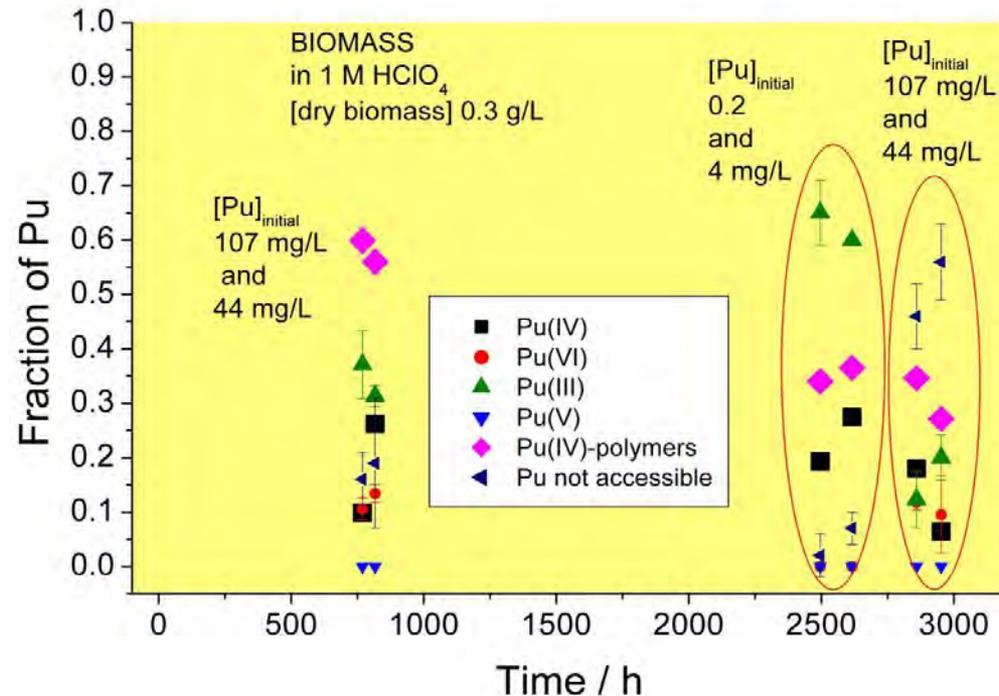
Pu recovered: 95 ± 2 %



- Schnelle Abnahme des Pu(VI): von 60 % via 51 %, 22 % und 9 % zu ~ 3 %
- Bioreduktion des Pu(VI) unter Bildung von Pu(V) und dessen Anreicherung im Überstand
- Abnahme der Pu(IV)-Polymere (Biosorption)

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu

Pu-Oxidationszustandsverteilung – Flüssig-flüssig Extraktion der Biomasse



- Anfangs biosorbierte Pu(IV)-Polymere dominieren
- Unterschiede in Abhängigkeit von $[Pu]_{\text{initial}}$
- $[Pu]_{\text{initial}} > 40$ mg/L: Zunahme des der Extraktion nicht zugänglichem Plutoniums (fest gebunden) und Pu(III)/Pu(IV) nachgewiesen
- $[Pu]_{\text{initial}} < 40$ mg/L: neben Pu(IV) deutliche Zunahme an Pu(III)

2.3.3 *Sporomusa* sp. + Pu Zusammenfassung

- Starke Wechselwirkungen von ^{242}Pu mit dem Ton-Isolat *Sporomusa* sp. bei pH 6 ($\sim 78 \text{ mg Pu/g}_{\text{dry weight}}$)
- Höhere ^{242}Pu -Bindungskapazität der abgestorbenen Biomasse
- Effizienz der ^{242}Pu -Entfernung abhängig von $[\text{}^{242}\text{Pu}]_{\text{initial}}$
- Weniger ^{242}Pu akkumuliert verglichen zu ^{238}U (Radiotoxizität)
- $\sim 57 \%$ des anfangs vorhanden Pu(VI) wurde infolge der Aktivität der Zellen innerhalb der ersten 24 h zu Pu(V) reduziert (nach 72 h 95 %)
- Gute Bindungseigenschaften von Pu(IV)-Polymeren an funktionellen Gruppen der Zellmembran
- Nachweis von Pu(III) und Pu(IV) an der Biomasse
- Starker Einfluss der *Sporomusa* sp. Zellen auf die Pu-Speziation
- Ähnlicher Wechselwirkungsmechanismus wie bei den Äspö-Stämmen *D. äspöensis*^[1] und *P. fluorescens*^[2]

[1] Moll, H. et al.: The interaction of *Desulfovibrio äspöensis* DSM 10631T with plutonium. Radiochim. Acta 94, 815-824 (2006). [2] Moll, H. et al.: The impact of the Äspö ground water bacterium *Pseudomonas fluorescens* on the speciation of plutonium. Lecture at the Plutonium Futures The Science 2012, 15.-20.7.2012, Cambridge, UK.

2.4 Zusammenfassung

Diversität im Mont Terri Opalinus-Ton (1)

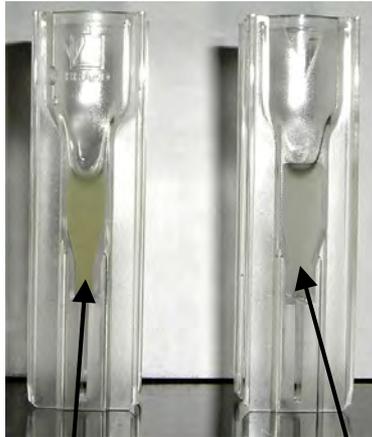
- **Erstmalig** aus Mont Terri Opalinus-Ton mikrobielle **Gesamt-DNA** isoliert (aus 50 g unbehandelten Ton)
- Vertreter von **Beta-Proteobakterien**, **Firmicutes** und **Bacterioidetes** dominieren in 16S rRNA Klonbibliothek der unbehandelten Tonprobe
- Nach Behandlung in R2A Medium überwiegen Vertreter von *Firmicutes*
- Vier bakterielle Isolate, die Firmicutes zuzuordnen sind, wurden aus Mont Terri Opalinus-Ton auf R2A Medium kultiviert:
***Sporomusa* sp. (2)** , ***Paenibacillus* sp. (1)** , ***Clostridium* sp. (1)**

2.4 Zusammenfassung

Diversität im Mont Terri Opalinus-Ton (2)

→ Umfassende Charakterisierung der Isolate: *Sporomusa* sp. und *Paenibacillus* sp. (Wachstum, Zellwandstruktur, Morphologie, funktionelle Gruppen der Zellmembran)

Aminopeptidase Test



Sporomusa
sp. nov.

Paenibacillus sp.
(Gram-positive)



Gram-negative

Potentiometrische Titrations

Type of Surface Site	pK _A values		Site Densities (mmol/g _{dry biomass})	
	<i>Sporomusa</i> sp.	<i>Paenibacillus</i> sp.	<i>Sporomusa</i> sp.	<i>Paenibacillus</i> sp.
Carboxyl	4.80 ± 0.06	4.90 ± 0.05	0.53 ± 0.08	0.53 ± 0.08
Phosphoryl	6.68 ± 0.06	6.66 ± 0.10	0.35 ± 0.03	0.24 ± 0.02
Amine/ -OH	9.01 ± 0.08	9.20 ± 0.03	0.48 ± 0.05	1.20 ± 0.26

Ähnliche pK_S Werte

Site densities unterschiedlich

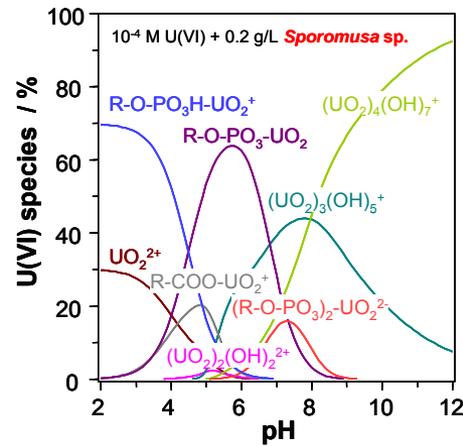
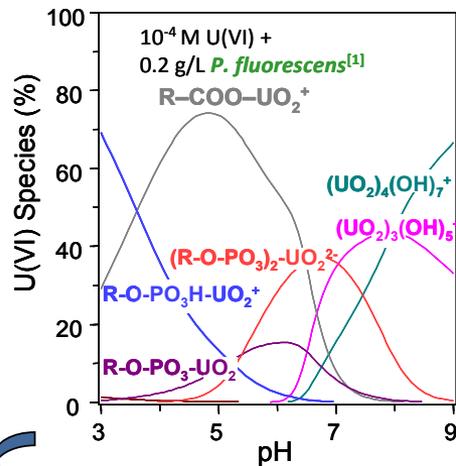
2.4 Zusammenfassung

An-Wechselwirkungen mit Ton-Isolaten (1)

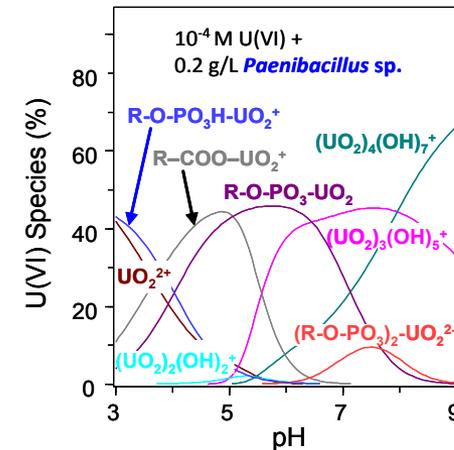
- **Starke An-Wechselwirkungen** der Opalinus-Ton Isolate und des Äspö-Bakteriums *Pseudomonas fluorescens* innerhalb eines breiten pH-Bereichs (2-8)
- Thermodynamische **Stabilitätskonstanten** der An/Ln mit den Opalinus-Ton Isolaten und dem Äspö-Bakterium *P. fluorescens* **bestimmt**

Beispiel: U(VI)-Stabilitätskonstanten mittels potentiometrischer Titration

Gram-negative Zellwand



Gram-positive Zellwand



- Neben generellen Zellwandeigenschaften beeinflussen auch individuelle Zellwandstrukturen die U-Bindung
- Bei niedrigem pH *P. fluorescens* und *Sporomusa* sp. effizienter in der U(VI)-Bindung (→ höherer Phosphoryl-Gruppengehalt)

[1] Lütke, L. et al.: Insights on the Uranium(VI) Speciation with *Pseudomonas fluorescens* on a Molecular Level. Dalton Transactions 41, 13370-13378 (2012).

2.4 Zusammenfassung

An-Wechselwirkungen mit Ton-Isolaten (2)

→ **Thermodynamische Speziation mit** der direkten Speziationstechnik **TRLFS bestätigt**

→ **Wechselwirkungsmechanismen:**

- U(VI) Biosorption, teilweise Biomineralisation
- Cm(III) Biosorption, Tendenzen für eingelagertes Cm(III)
- Pu Biosorption, Bioreduktion und Tendenzen für eingelagertes Pu

→ **Stärke der Wechselwirkung von *Sporomusa sp.*** mit ausgewählten An bei $[An] > 0.1$ mg/L ($[Cm]$ 0.07 mg/L) und bei pH 6: **Cm > U > Pu**

Fazit:

→ **Mont Terri Opalinus-Ton enthält bakterielle Gemeinschaften**

→ **Mont Terri Opalinus-Ton Isolate beeinflussen die Speziation und somit auch das Ausbreitungsverhalten ausgewählter An/Ln**

2.4 Zusammenfassung und Ausblick im Vorhaben

Offene Dinge

- Abschluss der Pu-Wechselwirkungsuntersuchungen mit den Mont Terri Opalinus-Ton Isolat *Sporomusa* sp.
- Auswertung der TEM/EDX-Untersuchungen zur Lokalisierung von U(VI)/Eu(III) an den Isolaten
- Publikationen zusammenstellen (z.B.: Curium(III) and Europium(III) interactions with the Mont Terri clay isolate *Sporomusa* sp., Impact of the novel Mont Terri clay isolate *Paenibacillus* sp. on the U(VI) speciation, The effect of U(VI) on cultivated *Pseudomonas fluorescens* biofilms - Spectroscopic and microscopic evidence of U(VI) immobilization in cultivated *P. fluorescens* biofilms)
- Erstellung Abschlußbericht

3. Ausblick auf zukünftige Forschungsvorhaben

Mikrobielle Wechselwirkungen mit An/Ln im Salz?

- Mikroorganismen (Bakterien und Archaeen) und deren Überlebensfähigkeit im Salz nachgewiesen [1, 2]
- Forschungen zu mikrobiellen Gemeinschaften und Prozessen im Salz als Wirtsgestein für ein nukleares Endlager sind vor allem in den USA in der Waste Isolation Pilot Plant (WIPP), New Mexico durchgeführt worden [3].
- **Untersuchungsbedarf:**
 - Aufklärung der mikrobiellen Diversität – dominierende Archaeen/Bakterien
 - Aufklärung der Wechselwirkungen dieser Mikroben mit Actiniden und weiteren Radionukliden: Tc-99, I-129, Se-79



Tools wurden geschaffen:

Tool 1: Mikrobielle Diversitätsbestimmung ✓

Tool 2: Mikrobielle Actinidenwechselwirkungen ✓

[1] Oren, A.: Diversity of halophilic microorganisms: Environments, phylogeny, physiology, and applications. *Journal of Industrial Microbiology & Biotechnology* 28, 56-63 (2002). [2] McGenity et al.: Origins of halophilic microorganisms in ancient salt deposits. *Environmental Microbiology* 2, 243-250 (2000). [3] Gillow, J. B., et al.: The potential of subterranean microbes in facilitating actinide migration at the Grimsel Test Site and Waste Isolation Pilot Plant. *Radiochimica Acta* 88, 769-774 (2000).

3. Ausblick auf zukünftige Forschungsvorhaben

Untersuchungsschwerpunkte – Mikroben/Actinide und Salz

- Mikroskopische Untersuchung des Salzgesteins (Anfärbung der Zellen und Bestimmung der Zellzahl)
- Direkte Untersuchung der mikrobiellen Diversität im Salzgestein
 - Isolierung der Gesamt-DNA aus ausgewählten Salzgesteinproben und/oder Salzwässern
 - Amplifizierung der 16S rRNA Gene von der Gesamt-DNA und anschließende Analyse zur Identifizierung vorhandener Bakterien und Archaeen
- Kultivierung bakterieller und archaealer Isolate, deren Anzucht und physiologische Charakterisierung
- Untersuchung der Wechselwirkungen Salz-spezifischer Mikroorganismen mit ausgewählten Actiniden
 - Erfassung aller relevanten Literatur zur Wechselwirkung von Mikroorganismen mit Actiniden im Salz in einer Datenbank
 - Untersuchungen zur Wechselwirkung dominierender Salz-spezifischer Mikroorganismen mit ausgewählten Actiniden (U, Cm, Pu)



Ideenskizze: „Mikrobielle Diversität im Salzgestein und Wechselwirkung dominanter Mikroorganismen mit Actiniden“ eingereicht



Danksagung

- F. Hille für seine Unterstützung bei mikrobiologischen Fragestellungen
- S. Sachs und K. Schmeide für die ^{242}Pu -Stammlösung
- A. Scheinost und A. Rossberg vom ROBL-Team (Grenoble)
- C. Eckard, U. Schaefer, A. Ritter für analytische Messungen (Ionenchromatographie, ICP-MS)
- H. Nitsche LBNL, USA für das ^{248}Cm
- Finanzielle Förderung:
 - Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie – **BMWi**
Vorhaben 02 E 10618



Vielen Dank für Ihre Aufmerksamkeit !!

Verbundprojekt: Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen



Actinidenverbund



10. Projektstatusgespräch
Karlsruhe
13.11. - 14.11.2012

BC
Untersuchung
Wirtsgest
Salzgest

Kontext

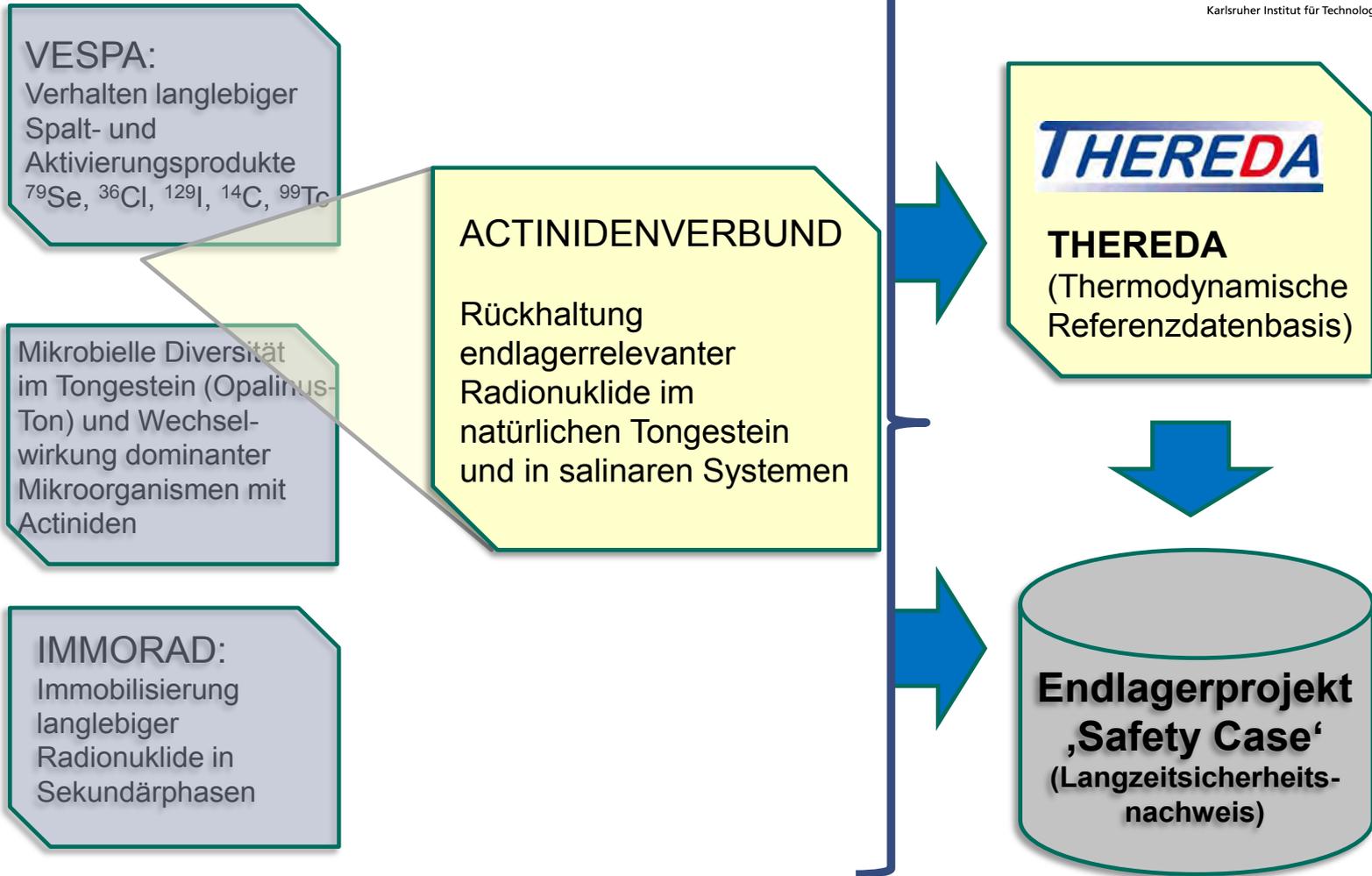
Der Langzeitsicherheitsnachweis gilt als geführt, wenn für den erforderlichen Zeitraum nachgewiesen ist, dass entweder keine Radionuklide den einschlusswirksamen Gebirgsbereich verlassen können („*vollständiger Einschluss*“) oder die vom Endlager ausgehenden Radionuklide in der Biosphäre nur zu vernachlässigbaren Expositionen für Mensch und andere Lebewesen führen können („*sicherer Einschluss*“).

GRS-247, 2008

Realistisches Szenario: Radionuklidausbreitung auf dem Wasserpfad
(Nur für C-14 auch Gaspfad denkbar)

**NAGRA Technical Report 02-05,
Wettingen, 2002.**

Kontext



...

Verbundprojekt: Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen

Arbeitspakete

AP1: Sorptionsuntersuchungen:

Actinidensorption an Opalinuston, Tonmineralphasen und Eisenphasen:
Ionenstärkeabhängigkeit, Temperaturabhängigkeit, Einfluss von Tonorganik.

AP2: Diffusionsuntersuchungen:

Actinidendiffusion, Einfluss von Tonorganik

AP3: Komplexierungsuntersuchungen:

Komplexierung mit LWOC (Propionat, Lactat, Kerogen und Huminstoffen) bei höheren Ionenstärken (NaCl) und höheren Temperaturen

AP4: Redox-Untersuchungen: Redoxverhalten von Actiniden

AP5: Stabilität von **Huminstoffkolloiden** bei hohen Ionenstärken

AP6: Löslichkeitsuntersuchungen: Einfluss von Borat auf An(III)/Ln(III)- Löslichkeiten

AP 7: Themen, die für das Projekt „**THEREDA**“ Datenlücken schließen.

Nachwuchsförderung/Kompetenzerhalt

10 PostDocs, 10 Doktoranden (+Diplom-/Masterarbeiten)

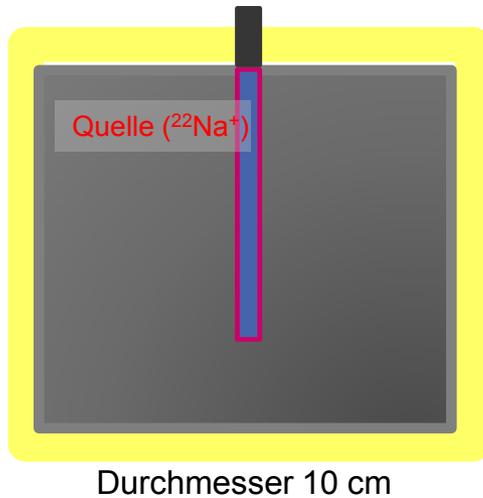
Methodenentwicklung

- Liquid waveguide UV/Vis (TU Dresden)
- ATR-IR-Spektroskopie (HZDR)
- Fluoreszenzspektroskopie (TRLFS, Hohe Temperaturen etc., KIT, HZDR, Uni-Hd.)
konfokale Spektromikroskopie; ‚molecular ruler‘,
Uni Potsdam)
- Röntgenspektr., μ -Röntgenspektromikroskopie (KIT, HZDR, Uni-Mainz, Uni- Hd.)
- Nachweisstarke Spurenelementbestimmungsmethoden zur Actinidenanalytik/Speziation:
 - ‚Hyphenated‘ Speziationsmethoden
(CE-ICP-MS; Uni Saarbrücken, KIT;
CE-ICP-MS/RIMS; Uni Mainz)
 - Beschleunigermassenspektrometrie (AMS; Uni Köln)
- μ -Kalorimetrie (TU-Dresden)
- GeoPET für in-situ-Diffusionsuntersuchungen (HZDR-Leipzig)
- Quantenchemie (TU München)

- Diffusionsradiotracer ($^{22}\text{Na}^+$)
- Zerstörungsfreie Beobachtung der Tracerdiffusion mittels sequentieller Positronen-Emissions-Tomographie (PET) über Monate
- Modellierung mittels Comsol-FEM

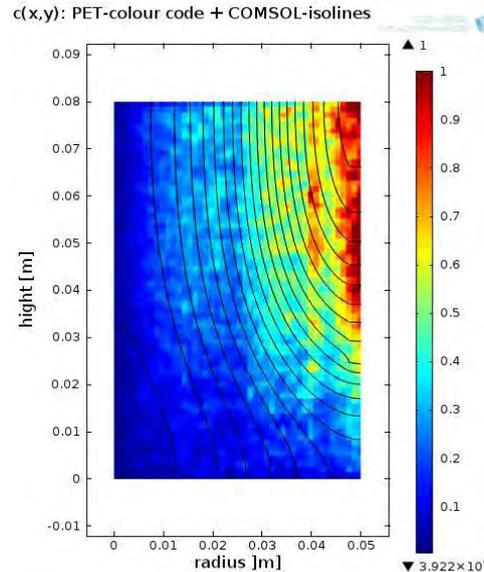


Zeit=8.7209e5 Oberfläche: u*alpha (mol/m³)
Isolinien: u*alpha (mol/m³)

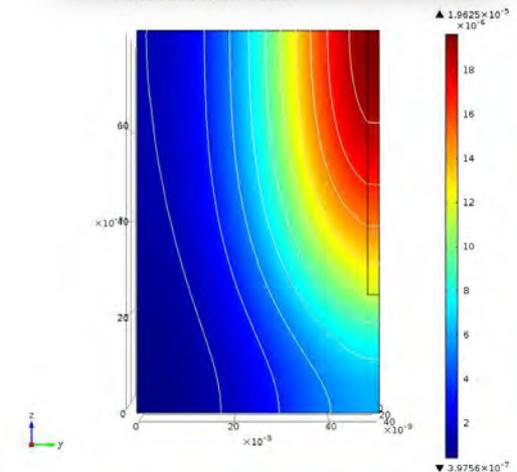


Bohrkern aus BLT 137

J. Kulenkampff, M. Gründig, J. Lippmann-Pipke and J. Schikora, HZDR, 2012



PET-Tomogramm

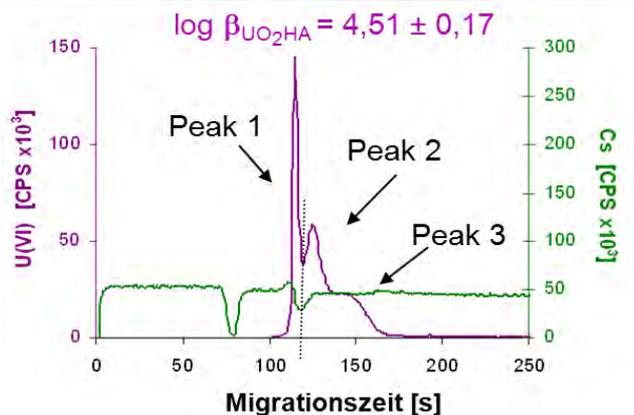


optimal angepasste FEM-Rechnung

CE-ICP-MS Speziation von U(VI) mit Huminsäure



500 ppb U(VI) und 25 ppm Aldrich-HA in 10 mM NP bei pH 5



Peak 1: Nicht komplexiertes UO_2^{2+}

Peak 2: An weak binding sites
komplexiertes UO_2^{2+}

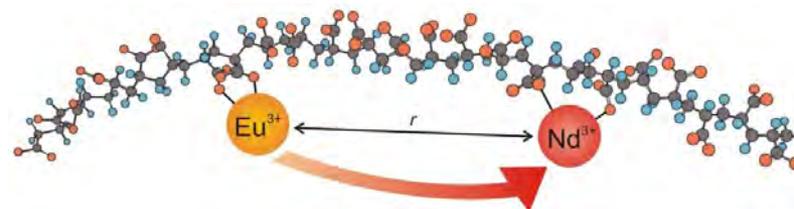
Peak 3: An strong binding sites
komplexiertes UO_2^{2+}

Kautenburger R (2009) *J Anal At Spectrom* 24, 934-938;

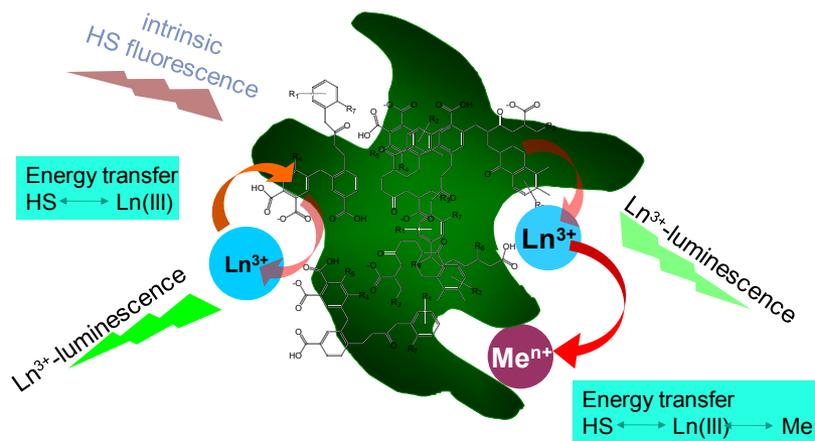
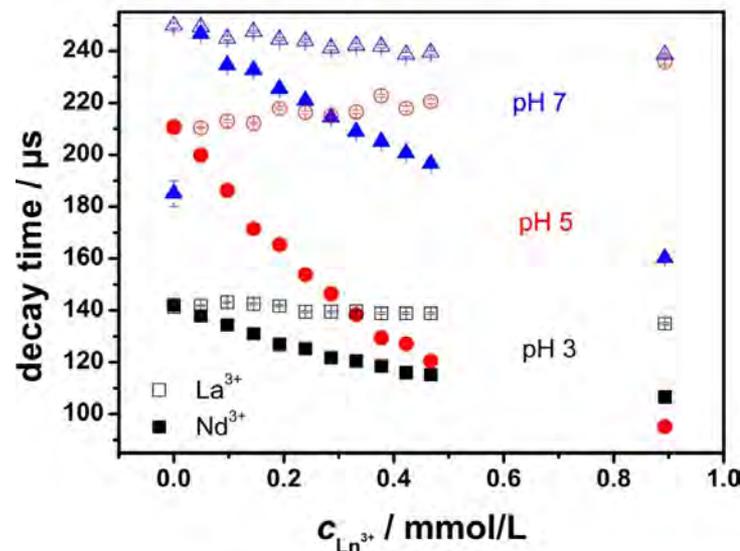
Möser C, Kautenburger R & HP Beck (2012) *Electrophoresis* 33, 1482-1487.

investigation of

- model polymers
- humic substances
- mineral surfaces



Decay times with and without acceptor



M. Kumke, S. Eidner et al., Uni Potsdam

Verbundprojekt: Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen

Arbeitspakete

AP1: Sorptionsuntersuchungen:

Actinidensorption an Opalinuston, Tonmineralphasen und Eisenphasen: Ionenstärkeabhängigkeit, Temperaturabhängigkeit, Einfluss von Tonorganik.

AP2: Diffusionsuntersuchungen:

Actinidendiffusion, Einfluss von Tonorganik

AP3: Komplexierungsuntersuchungen:

Komplexierung mit LWOC (Propionat, Lactat, Kerogen und Huminstoffen) bei höheren Ionenstärken (NaCl) und höheren Temperaturen

AP4: Redox-Untersuchungen: Redoxverhalten von Actiniden

AP5: Stabilität von **Huminstoffkolloiden** bei hohen Ionenstärken

AP6: Löslichkeitsuntersuchungen: Einfluss von Borat auf An(III)/Ln(III)-Löslichkeiten

AP 7: Themen, die für das Projekt „**THEREDA**“ Datenlücken schließen.

Fragen:

Sorptionsmechanismen im natürlichen Tongestein verstanden?

Vorhandene Daten (und Sorptionsmodelle) auf deutsche Tonformationen übertragbar?

One of the „pillars of safety“:

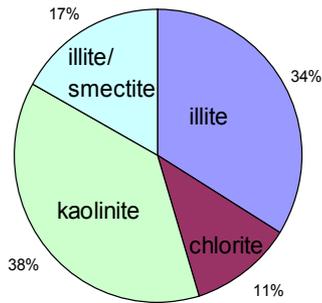
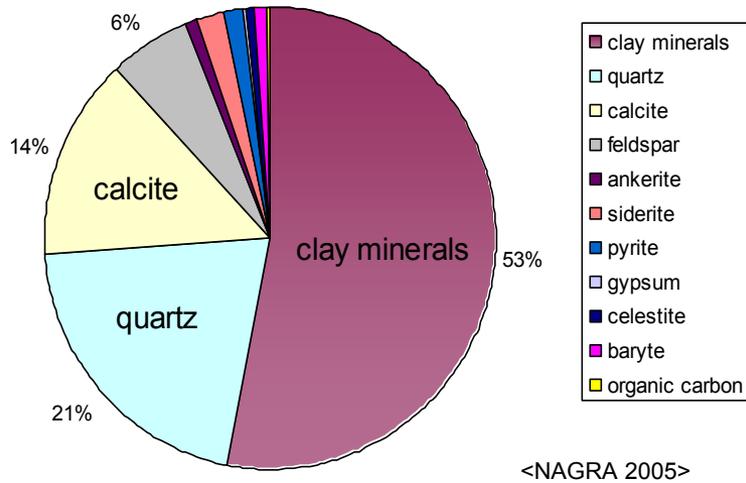
... geochemical immobilisation and retardation of radionuclides released from the waste forms

NAGRA Technical Report 02-05, 2002
Project Opalinus Clay
Safety Report

Grambow et al. Radiochim. Acta 94, 2006
Bradbury & Baeyens Geochim. Acta, 2005/2009

Mineral Content Opalinus Clay OPA

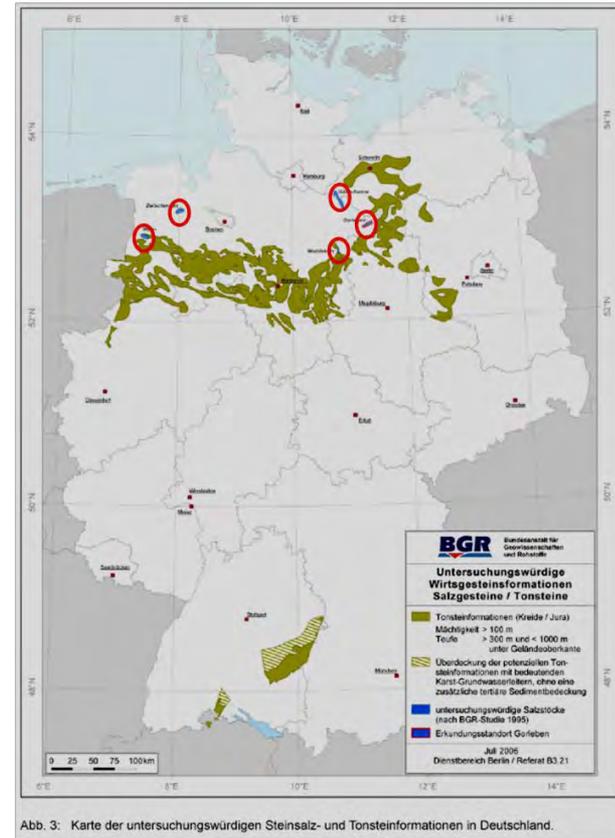
Opalinus clay



Hartmann et al., 2010

REM:

- Strontianite
- Zircon
- Hematite
- Sphalerite
- Rutile
- Apatite



Der ‚bottom-up‘ Ansatz

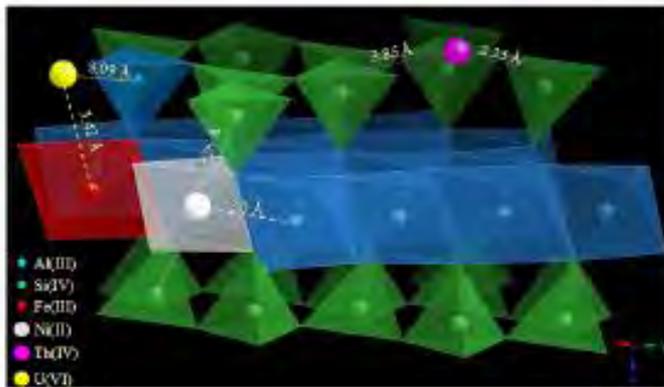
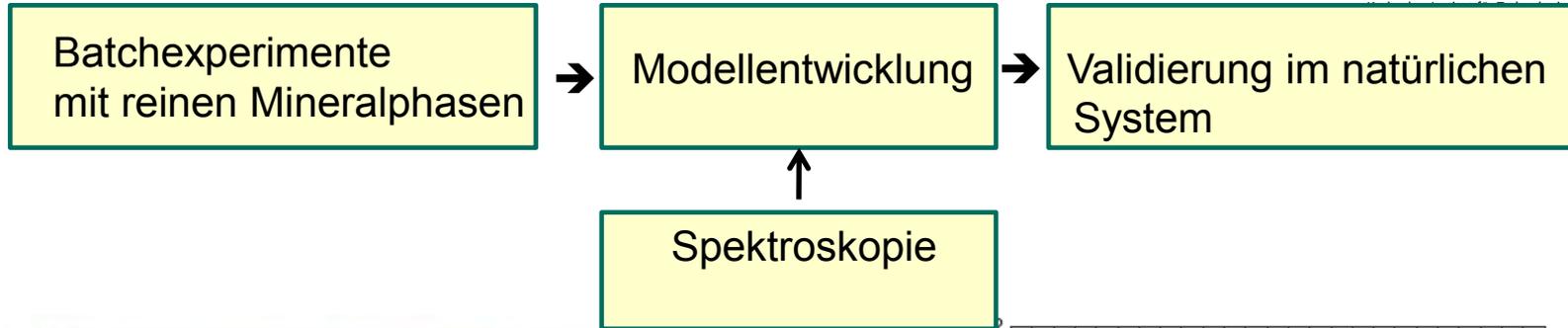


Fig. 4.4: Specific strong sorption site types for Ni(II), Th(IV) and U(VI) on montmorillonite as determined by EXAFS.

→ **Modell: 2SPNE SC/CE**
 (Bradbury, Baeyens et al. GCA 2005)

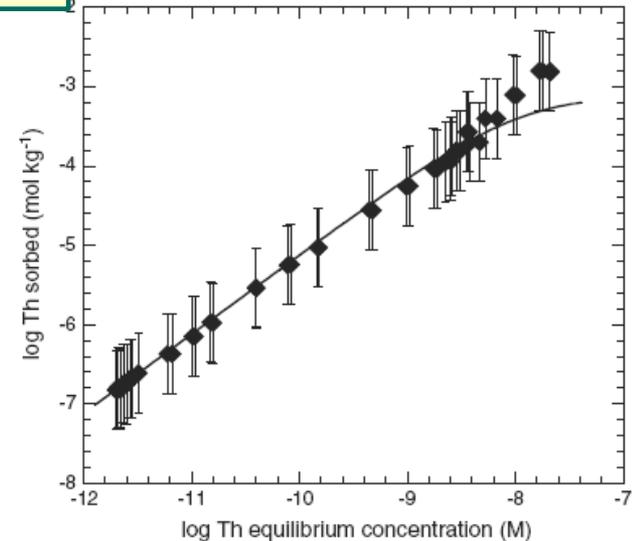
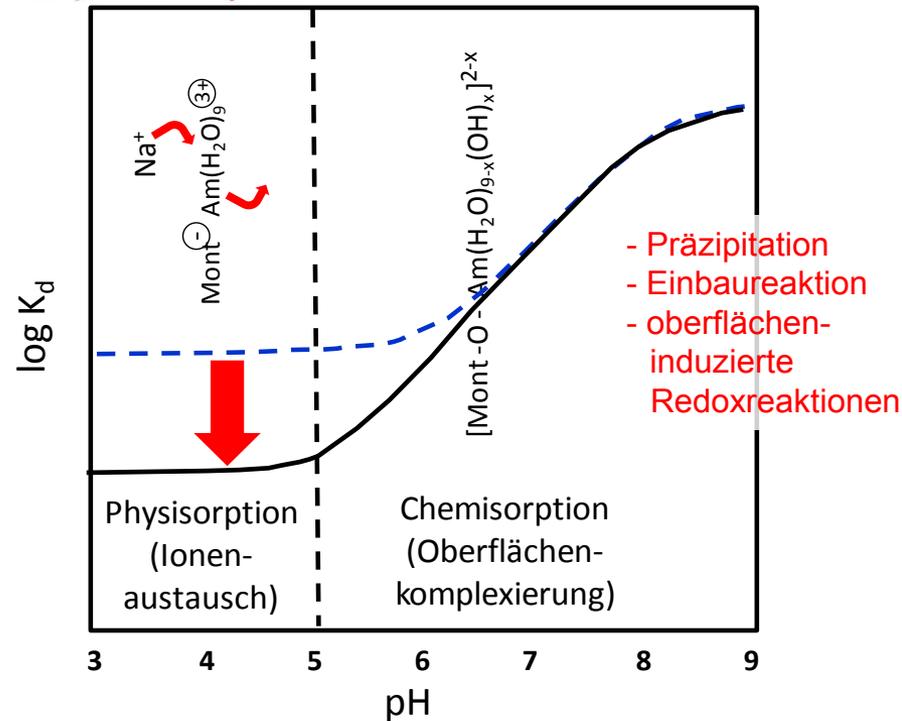
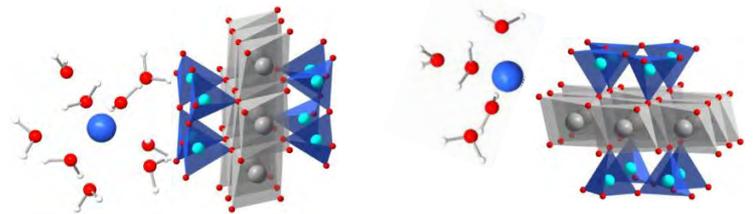


Fig. 8. Th(IV) sorption isotherm on Opalinus Clay. Experimental data (♦). The continuous line is the blind model prediction.

Bradbury&Baeyens, Appl. Clay Sci., 2011

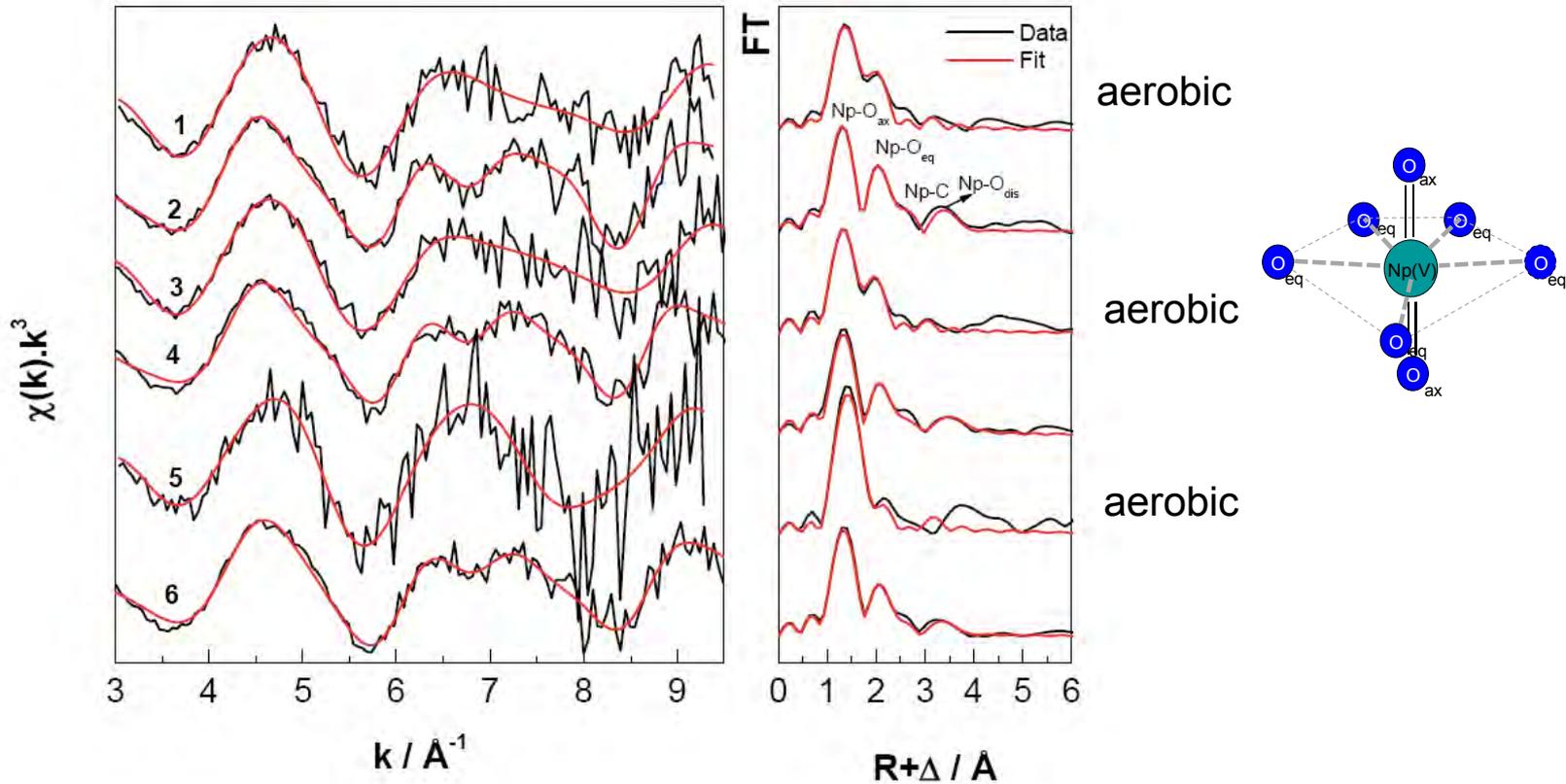
Actinidensorption an Tonmineralphasen: Reaktionsmechanismen



K_d -values for actinide sorption to Opalinus clay in synthetic clay rock pore water

Metal ion	Concentration of metal ion (M)	K_d ($m^3 kg^{-1}$)		
		PSI/Nagra		
		pH = 7.6	pH = 7.2	pH = 7.8
Pu(III) ^a	$1 \cdot 10^{-7}$	159 ± 37^{b2}	22.6 ^a	75.2 ^a
Am(III)	$9 \cdot 10^{-9}$	30 ± 2^{b2}	17.0	63.0
Eu(III)	$1 \cdot 10^{-7}$	50 ± 10^d	59.8	50
	$1.9 \cdot 10^{-5}$	1.6 ± 0.1^{e2}		
	$6 \cdot 10^{-7} - 2 \cdot 10^{-3}$	59 ± 1^g		
Th(IV)	$8 \cdot 10^{-9}$	29 ± 16^{b2}	55.4	55.4
Pu(IV)	$9 \cdot 10^{-8}$	83 ± 34^{b2}	-	-
Np(V)	$1 \cdot 10^{-11} - 5 \cdot 10^{-5}$	0.03 ± 0.02^{b2}	-	-
Pu(V)	$3 \cdot 10^{-7}$	0.04 ± 0.01^d	-	-
	$3 \cdot 10^{-7}$	0.3 ± 0.2^d		
U(VI)	$1 \cdot 10^{-7} - 2 \cdot 10^{-4}$	0.03 ± 0.01^{b2}	-	-
	$1 \cdot 10^{-7}$	0.024 ± 0.01^f		
	$1 \cdot 10^{-6}$	0.0222 ± 0.0004^c		
Pu(VI)	$1 \cdot 10^{-7}$	13 ± 3^{b2}	-	-

Neptunyl(V) auf Opalinus Ton



Amayri, Drebert, Fröhlich, Kaplan, Kratz, Reich, Stöbener, Trautmann, Wunderlich, Uni Mainz

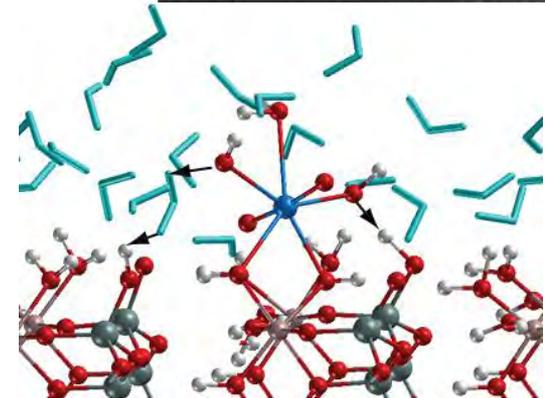
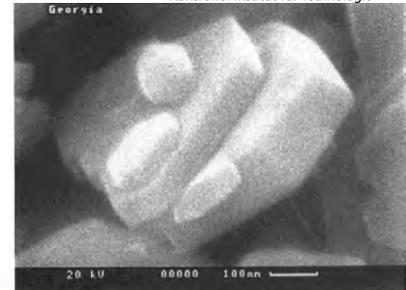


Uranyl(VI) auf Kaolinit

- EXAFS: Equatoriale U-O-Bindungen
 - U-O_{kurz} ~ 230 pm → Bindung an Substrat, U-O_S
 - U-O_{lang} ~ 250 pm → Bindung an Wasser, U-O_w
- auch für Montmorillonit, Aluminiumoxid

- Quantenmechanische Modellierung
 - Lange Bindungen an Oberfläche
 - Hydrolyse an Oberfläche
⇒ kurze U-OH-Bindung

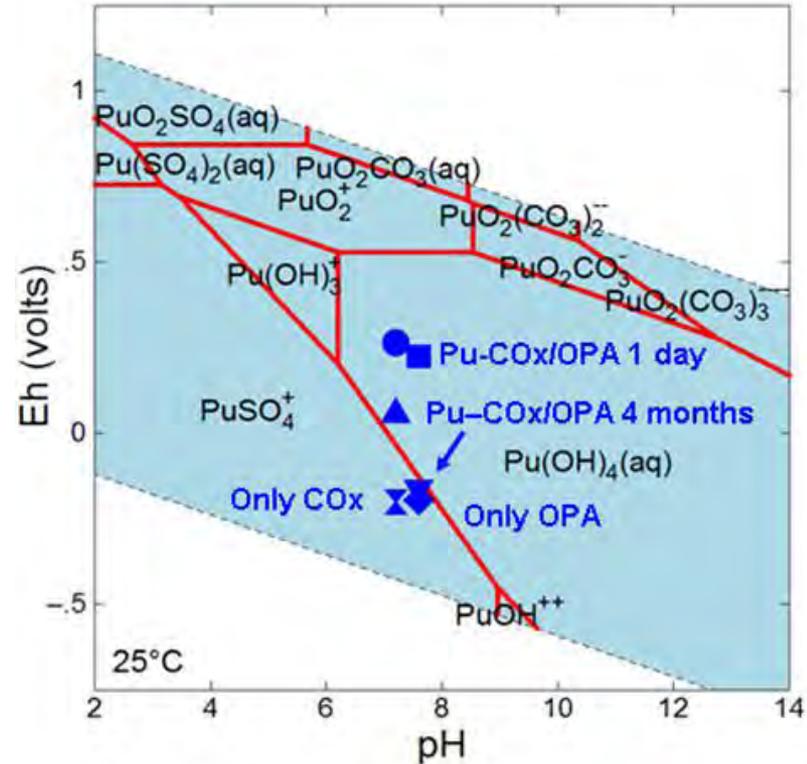
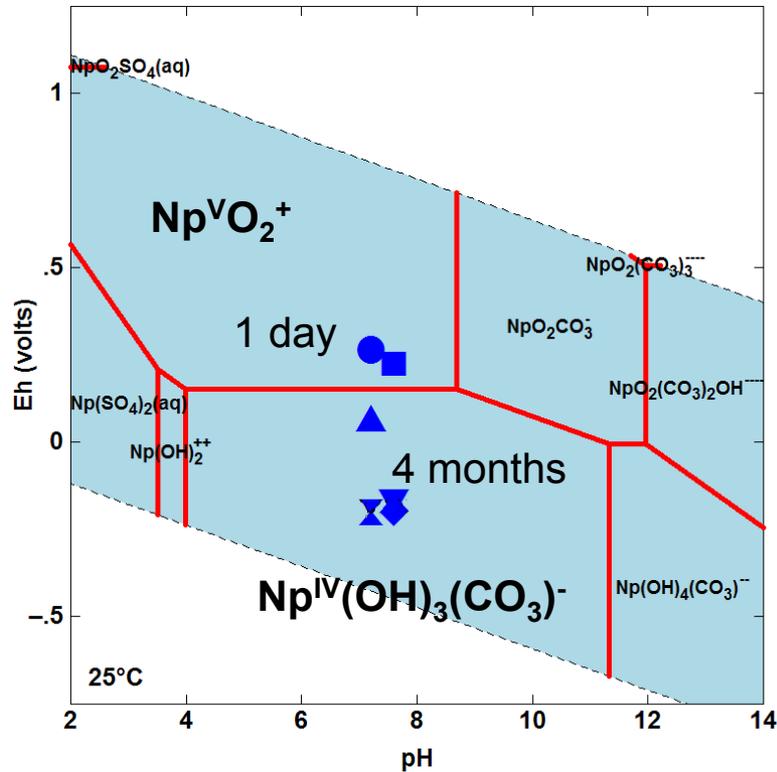
- Erweiterung der Interpretation
 - Martorell, Kremleva, Krüger Rösch, J. Phys. Chem. 2010
 - Kremleva, Krüger Rösch, Geochim. Cosmochim. Acta 2011



Fläche	Platz	U-O _s	U-OH	U-O _w
(001)	AlOO	220, 222		257
	AlO-AlO	222, 223, 258		256
(010)	AlOOH	204, 258	230	268
	AlOHOH	236, 254	223, 229	275
Exp.	Exp.	228		249

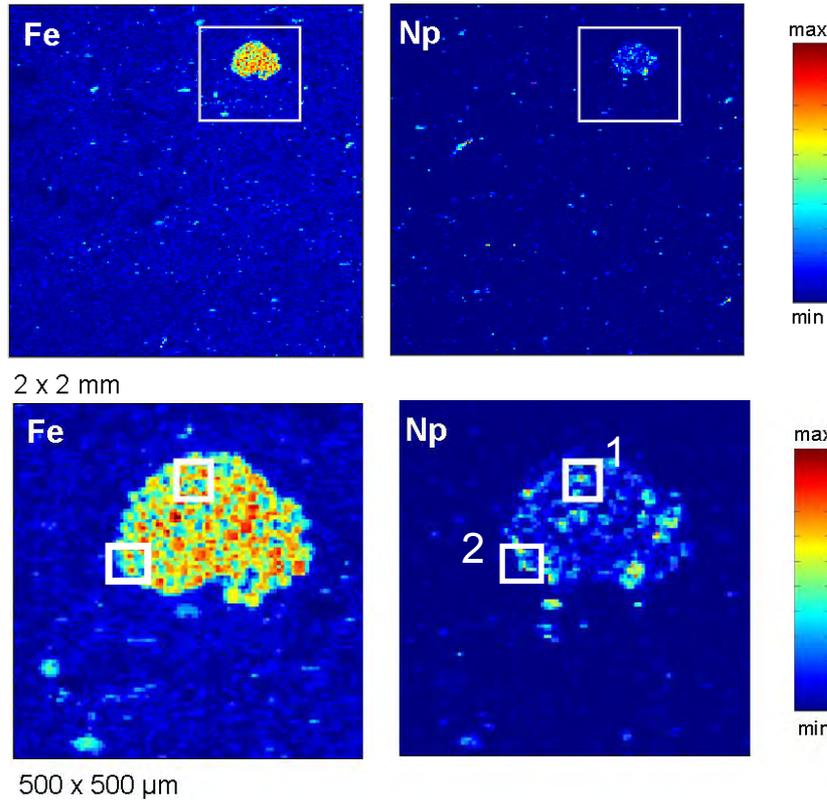
Bindungen in pm; Exp.: Thompson, Parks, Brown, in Jenne 1998

Actinidenrückhaltung unter reduzierenden Bedingungen



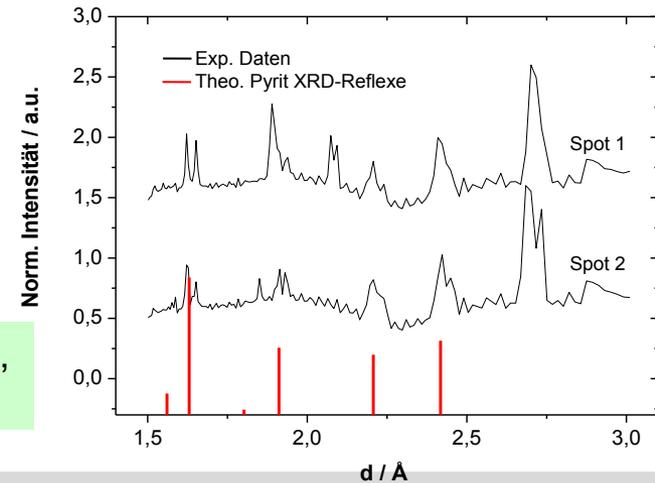
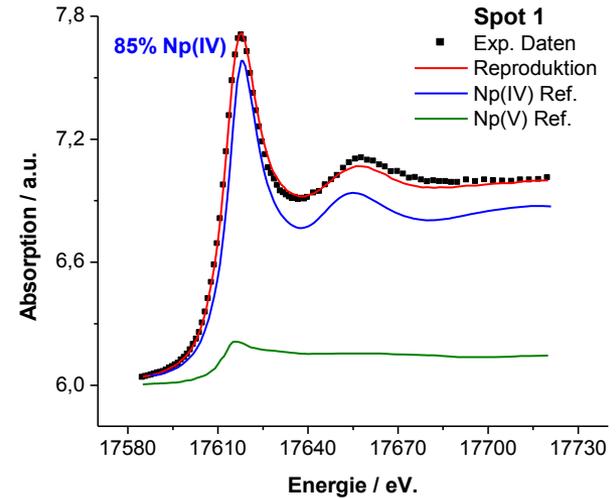
Banik, Marsac, Marquardt, Geckeis, Lützenkirchen, Schild, Rothe, Schäfer, 2012, *in prep.*

Rückhaltung von 8 μM Np(V) auf OPA-Dünnschliff unter anaeroben Bedingungen ¹



Pyrit ist eine der redoxaktiven Mineralphasen von OPA, die die Speziation von Np bestimmen.

[1] Fröhlich, D. R., Amayri, S. et al., Anal. Bioanal. Chem. 404, 2151-2162 (2012)



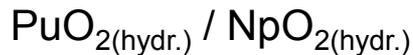
Np, Pu Speziation in natürlichem Tonstein

Unter reduzierenden Tonporenwasser-Bedingungen:

Np → Np(IV)

Pu → Pu(IV)

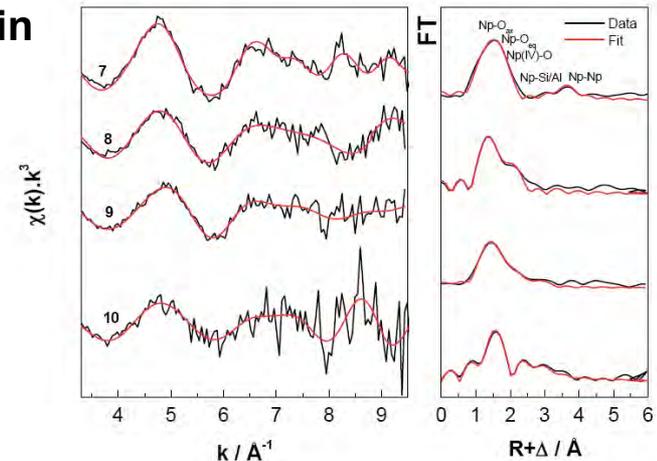
Np/Pu Konzentrationen in Lösungen entsprechen der Löslichkeit von



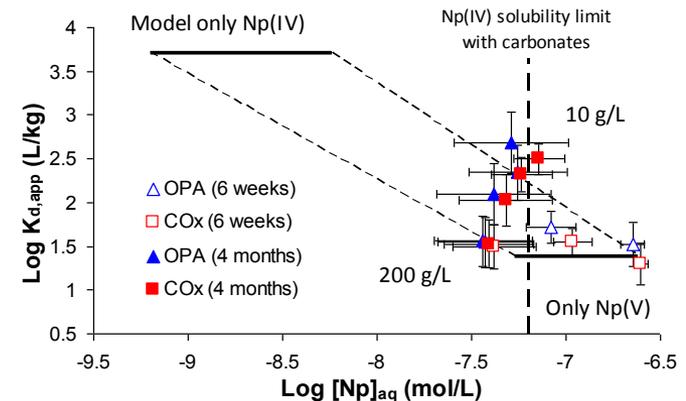
Dominante Lösungsspezies:



→ Geringe Mobilität von Np(IV)/Pu(IV)



Amayri et al., Uni Mainz, 2012



Marsac et al., KIT, 2012

Redoxreaktionen im Tonstein (OPA/COx)

- Tetravalente Pu, Np-Spezies im Tonstein (sowohl OPA als auch COx) unter anaeroben (in-situ) Bedingungen stabil
- Relativ rasche Reduktion von Pu(V/VI); langsame Np(V)-Np(IV) Reduktionskinetik über Monate hinweg
→ Kopplung Sorption – Reduktion - Präzipitation
- Mögliche Redox-Reaktionspartner im Tonstein: Fe(II) Mineralphasen: Pyrit, Siderit; strukturelles Fe(II) in Tonmineralphasen; S_2^- , S^{2-} haltige Mineralphasen; Mittels μ -Spektroskopie lässt sich der Pyrit identifizieren.

Fragen:

Sorptionsmechanismen im natürlichen Tongestein verstanden?

Vorhandene Daten (und Sorptionsmodelle) auf deutsche Tonformationen übertragbar?

Tongesteine in Norddeutschland:

Unterkreidetone:

Geochemische Datenlage:

- Porenwassercharakteristik: I bis <5 mol/L
- Daten aus Projekt Konrad vorhanden
- Offene Fragen zum mechanistischen Verständnis zur RN Sorption/Diffusion bei hohen Ionenstärken

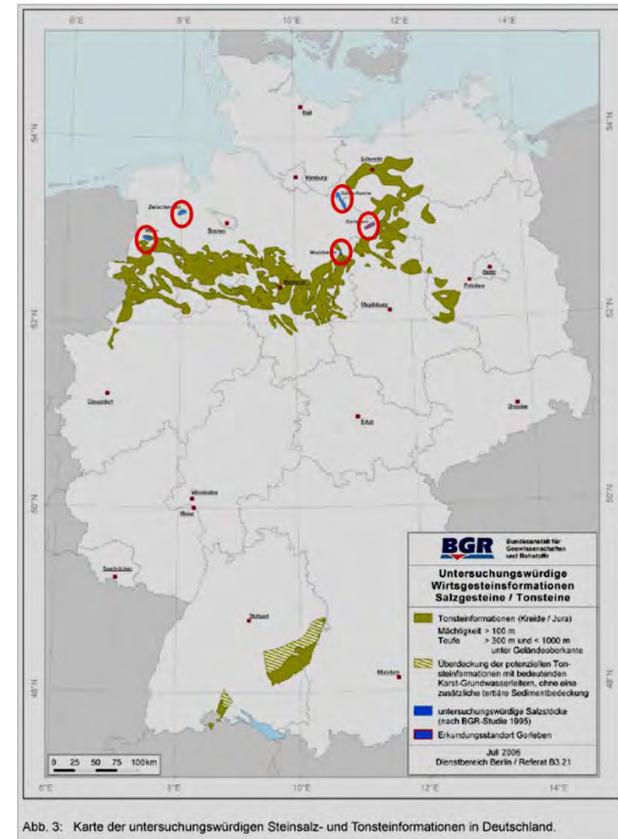
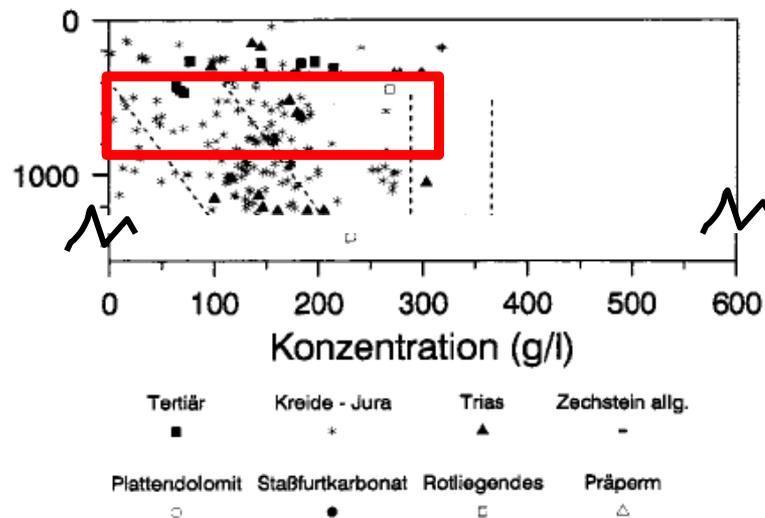


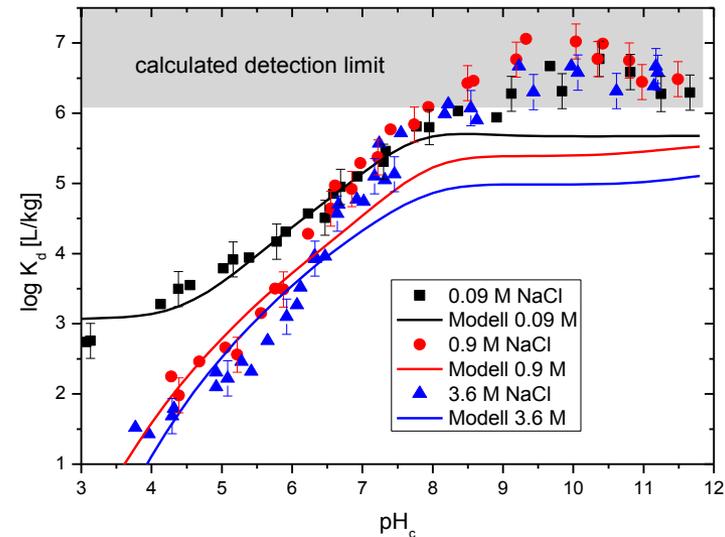
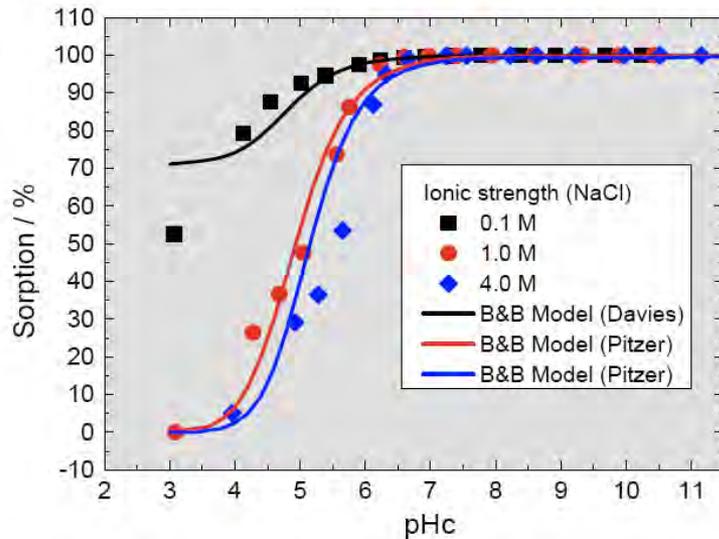
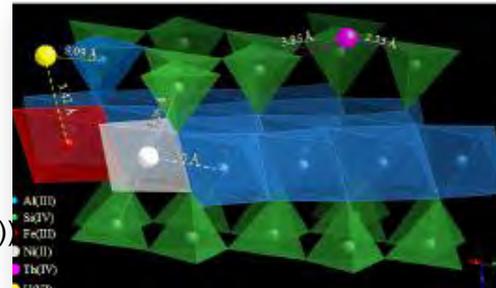
Abb. 3: Karte der untersuchungswürdigen Steinsalz- und Tonsteinformationen in Deutschland.

Gesamtkonzentration von Formationswässern Nord- und Nordwestdeutschlands in Abhängigkeit von ihrer Tiefenlage /KLI 91/ aus: GRS-A-2956, 2002

BGR, 2006

Sorption von Eu(III) (Analogon für Am/Cm(III)) auf Na-Illite

2 g/L Na-illite (illite du Puy), 2 E-7 mol/L Eu(III) (markiert mit $^{152}\text{Eu(III)}$)



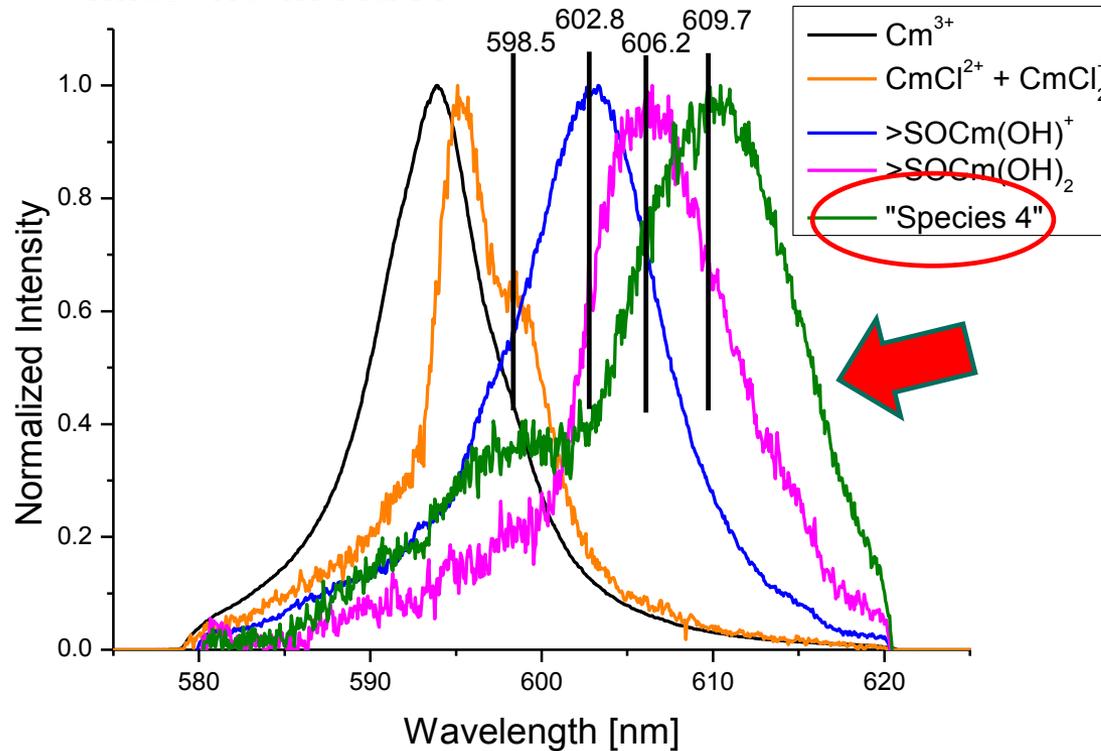
Kombination des 2SNE SC/CE (Bradbury, Baeyens et al. GCA 2005) mit Pitzer Modell beschreibt Ionenstärkeeinfluss (aber: Abweichung im hohen pH-Werte-Bereich?)

Schnurr et al., 2012

Oberflächenspeziation von Cm/Am/Eu bei pH > 10

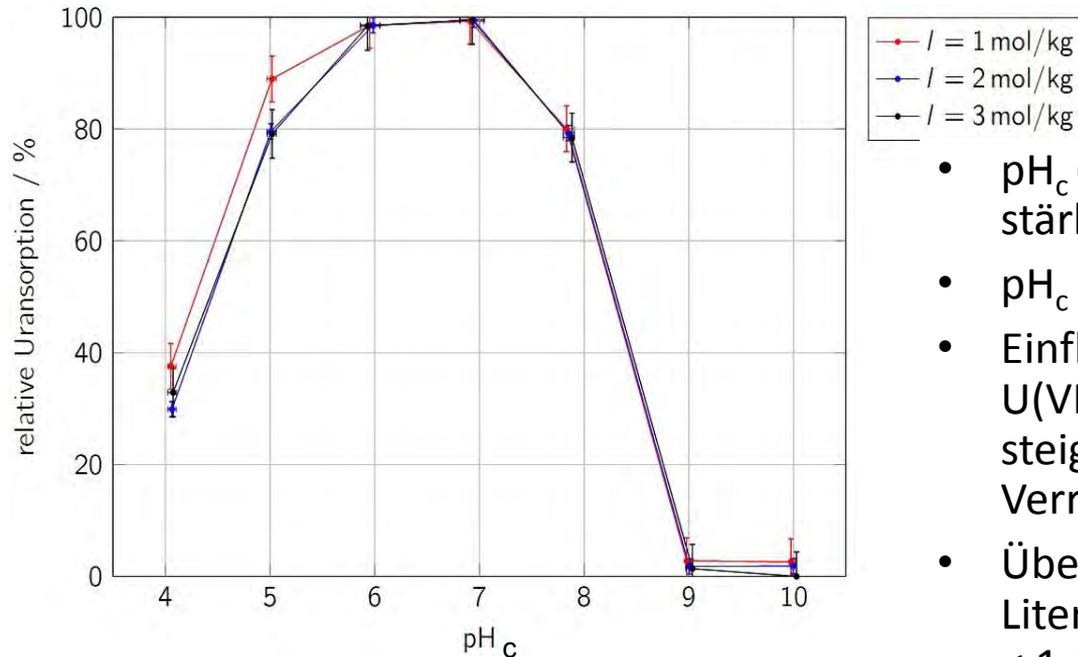
(0.25 g/L Illite, $2 \cdot 10^{-7}$ mol/L Cm(III))

Illite 4.0 M NaCl



U(VI)-Sorptions an Montmorillonit – Einfluss von pH und Ionenstärke

Hintergrundelektrolyt: NaCl



$S/L = 4 \text{ g/L}$; $[U(VI)] = 1 \cdot 10^{-6} \text{ M}$; $pCO_2 = 10^{-3.5} \text{ atm}$

➤ Kein erkennbarer Einfluss der Ionenstärke auf die U(VI)-Sorptions für $pH_c > 6$.

Joseph et al., HZDR, 2012; Möser et al., Uni Saarbrücken, 2012

- pH_c 6-7: U(VI)-Sorptions am stärksten
- pH_c 9-10: keine Sorptions
- Einfluss der Ionenstärke auf die U(VI)-Sorptions im Sauren: mit steigender Ionenstärke, Verringerung der U(VI)-Sorptions
- Übereinstimmung mit der Literatur [1, 2] (für Ionenstärken $< 1 \text{ mol/L}$), dort auch Einfluss im Basischen erkennbar.

[1] D. Zhao et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **287**, 557 (2010).

[2] J. Catalano, G. Brown, *Geochim. Cosmochim. Acta* **69**, 2995 (2005).

Ionenstärkeinfluss auf Actinidensorption auf Tonmineralphasen

- Moderate bis geringe Reduktion der Sorption von An/Ln(III) und UO_2^{2+} bei Ionenstärken bis 4 mol/kg NaCl
- Erste Rechnungen mit einer Kombination: Pitzer - 2SNE SC/CE Modell (Bradbury, Baeyens et al. GCA 2005) sind erfolgversprechend

Verbundprojekt: Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen

Arbeitspakete

AP1: Sorptionsuntersuchungen:

Actinidensorption an Opalinuston, Tonmineralphasen und Eisenphasen:
Ionenstärkeabhängigkeit, Temperaturabhängigkeit, Einfluss von Tonorganik.

AP2: Diffusionsuntersuchungen:

Actinidendiffusion, Einfluss von Tonorganik

AP3: Komplexierungsuntersuchungen:

Komplexierung mit LWOC (Propionat, Lactat, Kerogen und Huminstoffen) bei höheren Ionenstärken (NaCl) und höheren Temperaturen

AP4: Redox-Untersuchungen: Redoxverhalten von Actiniden

AP5: Stabilität von **Huminstoffkolloiden** bei hohen Ionenstärken

AP6: Löslichkeitsuntersuchungen: Einfluss von Borat auf An(III)/Ln(III)- Löslichkeiten

AP 7: Themen, die für das Projekt „**THEREDA**“ Datenlücken schließen.

Actinides

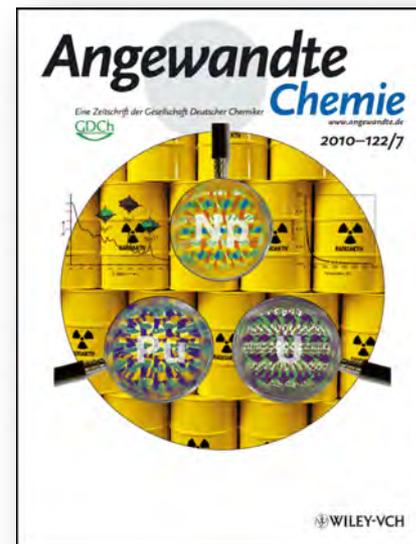
DOI: 10.1002/ange.200906127

Neptunium Diverges Sharply from Uranium and Plutonium in Crystalline Borate Matrixes: Insights into the Complex Behavior of the Early Actinides Relevant to Nuclear Waste Storage**

Shuao Wang, Evgeny V. Alekseev, Jie Ling, S. Skanthakumar, L. Soderholm, Wulf Depmeier, and Thomas E. Albrecht-Schmitt*

The immobilization of actinides, such as neptunium and plutonium, in solid matrixes is being used as an approach for preventing their release into the environment during long-term storage. Many waste forms have been suggested as being suitable, including zircon, garnet, pyrochlore, synroc, and

neptunium, and plutonium borates relevant to the development of advanced waste forms for the long-term storage of these radionuclides, we have prepared a large family of U^{VI} borates, several highly unusual intermediate- or mixed-valent neptunium compounds, and a Pu^{VI} borate that differs in



Hexenküche im Castor?

Kieler Forscher sorgt sich um Spezialgläser, in die Atommüll eingeschmolzen wird

Leonardo - Wissenschaft und mehr
Sendedatum: 15. Februar 2010

Borkonzentrationen:

$4 \cdot 10^{-3} - 0,2 \text{ mol/L}$ (z.B. Asse, R-Punkt)

K. Schmidt, 2006

$1.3-4.5 \cdot 10^{-2} \text{ mol/L}$ (GWB, ERDA-6 brine,
WIPP site)

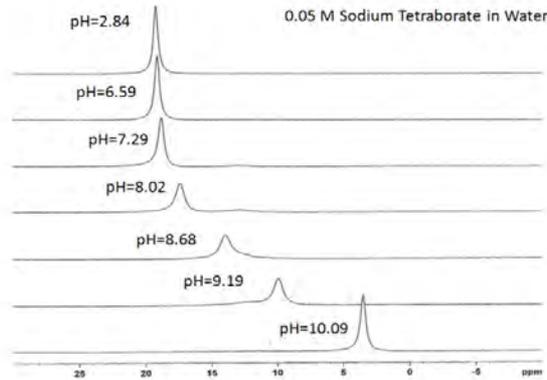
M. Borkowski, 2010

$6,5 \cdot 10^{-2} \text{ mol/L}$ (Borosilicate leach test
 90°C , 12.2 a)

E. Curti, 2006

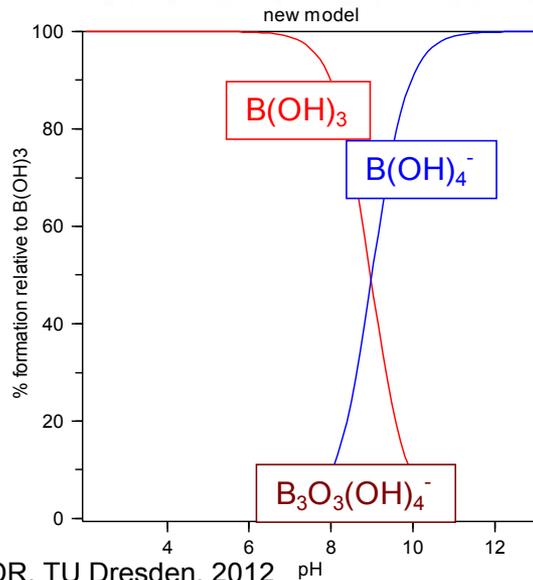


Wässrige Chemie der Borate

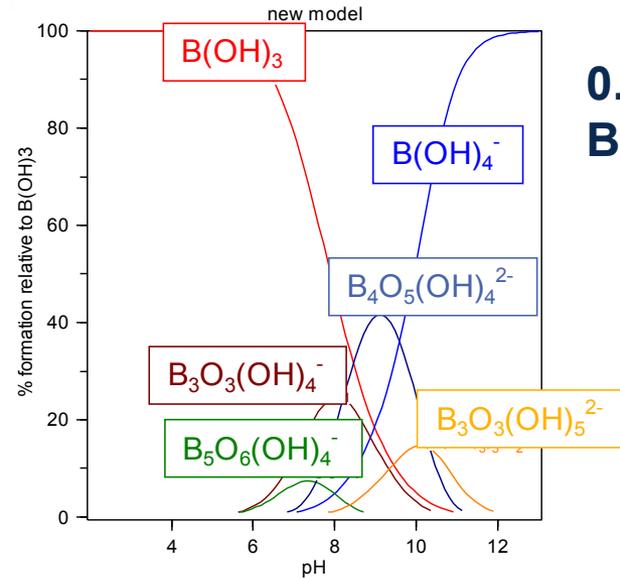


^{11}B -NMR studies performed at varying pH_c and constant $[\text{B}]_{\text{tot}}$ (Borkowski et al., 2010)

0.025 M $\text{B}(\text{OH})_3$



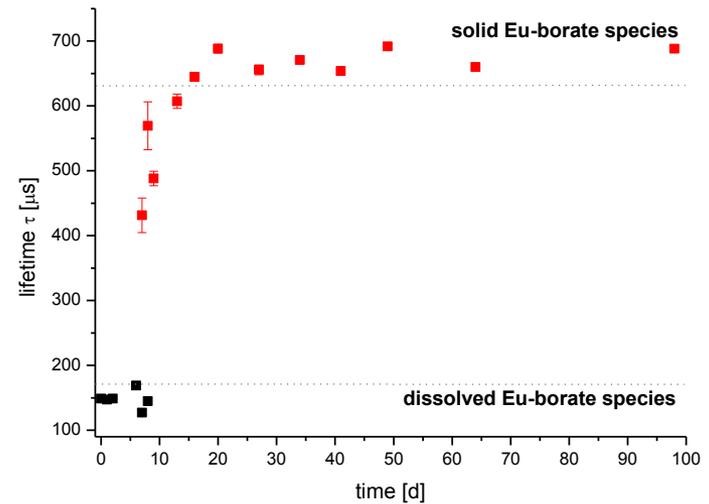
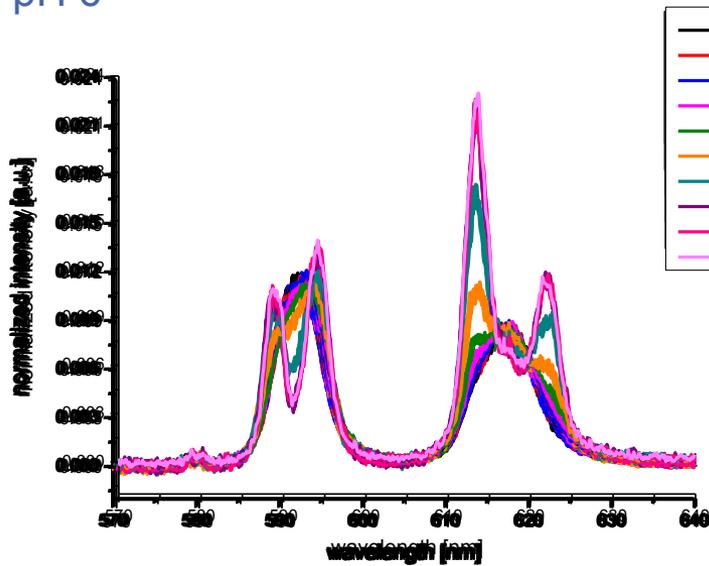
Schott et al., HZDR, TU Dresden, 2012



0.4 M $\text{B}(\text{OH})_3$

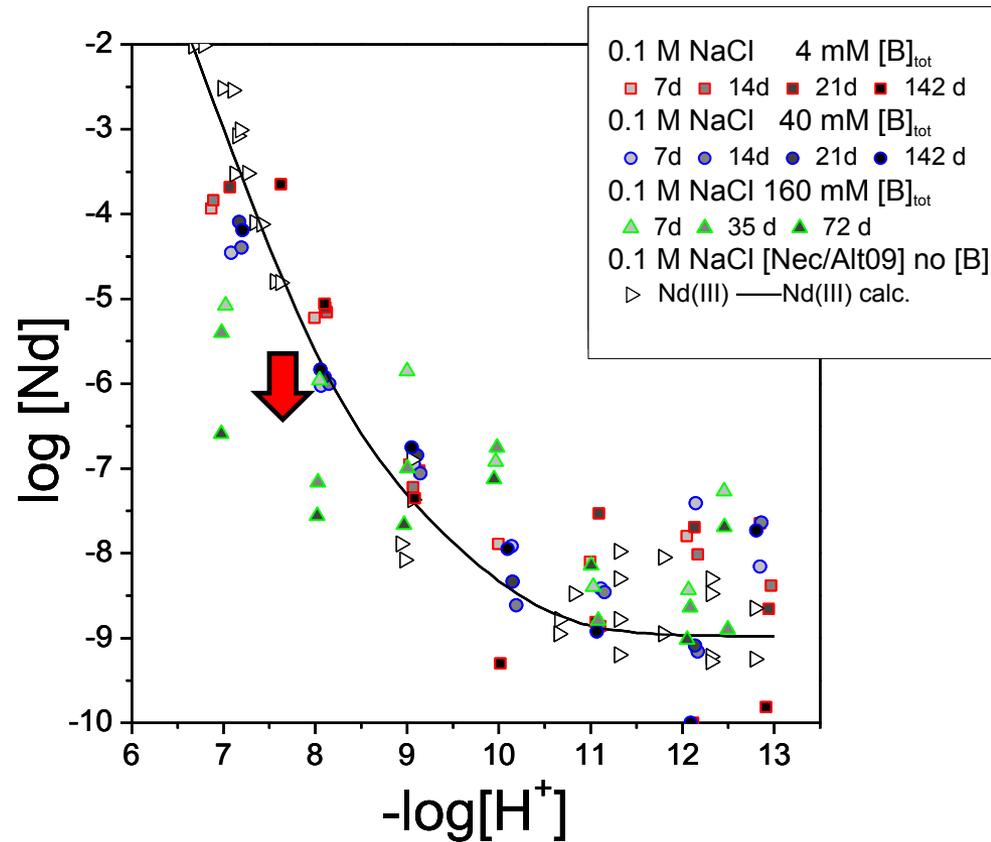
Actiniden/Lanthanidenreaktion mit Borat

$3 \cdot 10^{-5}$ M Eu
 0.65 M B(OH)₃
 0.1 M NaClO₄
 pH 6



Schott et al., TU Dresden, 2012

Löslichkeit von Nd(III) in NaCl-Lösung



Hinze et al., KIT, 2012

Bor-Einfluss auf Actinidenspeziation und -löslichkeit

Spektroskopisch nur schwache Boratkomplexierung dreiwertiger Actiniden/Lanthanidionen beobachtbar (\ll Hydrolyse)

Kein signifikanter Anstieg der Löslichkeit tri-, tetravalenter Actiniden in Anwesenheit von Borat (bis ca. 0.2 mol/kg) in NaCl/CaCl₂/MgCl₂ Lösungen

Abnahme der Eu/Nd(III)-Löslichkeit bei niedrigen pH Werten ($\text{pH}_c < 8$)
→ Bildung schwerlöslicher Boratfestkörper.

Verbundprojekt: Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen

Arbeitspakete

AP1: Sorptionsuntersuchungen:

Actinidensorption an Opalinuston, Tonmineralphasen und Eisenphasen: Ionenstärkeabhängigkeit, Temperaturabhängigkeit, Einfluss von Tonorganik.

AP2: Diffusionsuntersuchungen:

Actinidendiffusion, Einfluss von Tonorganik

AP3: Komplexierungsuntersuchungen:

Komplexierung mit LWOC (Propionat, Lactat, Kerogen und Huminstoffen) bei höheren Ionenstärken (NaCl) und höheren Temperaturen

AP4: Redox-Untersuchungen: Redoxverhalten von Actiniden

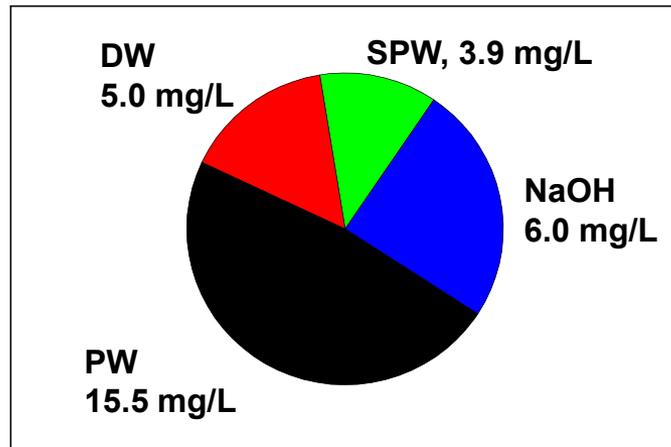
AP5: Stabilität von **Huminstoffkolloiden** bei hohen Ionenstärken

AP6: Löslichkeitsuntersuchungen: Einfluss von Borat auf An(III)/Ln(III)-Löslichkeiten

AP 7: Themen, die für das Projekt „**THEREDA**“ Datenlücken schließen.

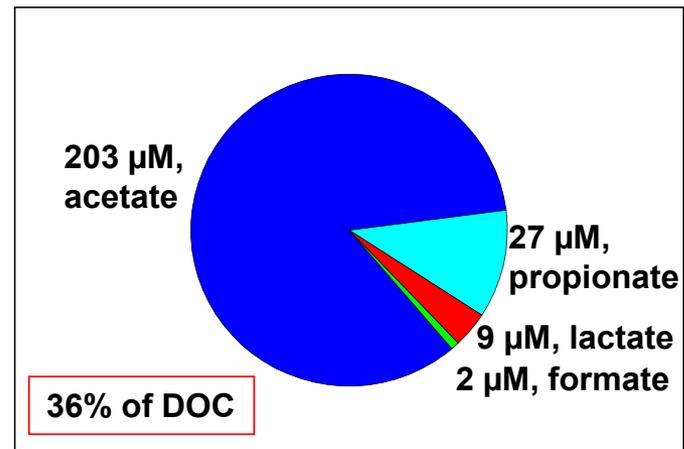
Characterization of DOC in OPA¹⁾

DOC in OPA



PW: DOC in original pore water
DW: OPA extraction with deionized water
SPW: OPA extraction with synthetic pore water
NaOH: OPA extraction with NaOH

Low molecular weight organic acids (LMWOA) in OPA pore water



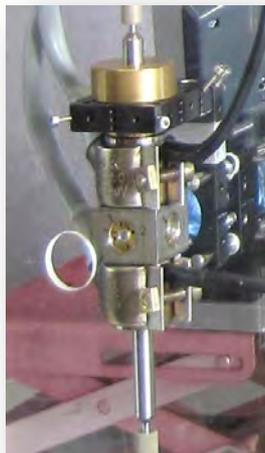
1) Borehole BWS-A1:
 Courdouan et al. , Appl. Geochem. (2007), 2926

Komplexierung von Actiniden mit organischen Komplexbildnern bei höheren Temperaturen

Spektroskopie

Entwicklung einer
Hochtemperatur-
Messzelle
Für EXAFS/TRLFS

(Uni Heidelberg, KIT)



Complexation of Am(III) with lactate
as a function of temperature

μ -Kalorimetrie

Kalorimetrische
Bestimmung von
Deprotonierungs-/
Komplexbildungs-
konstanten

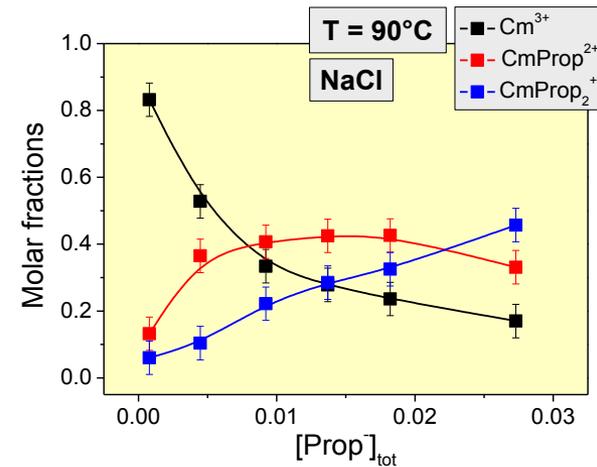
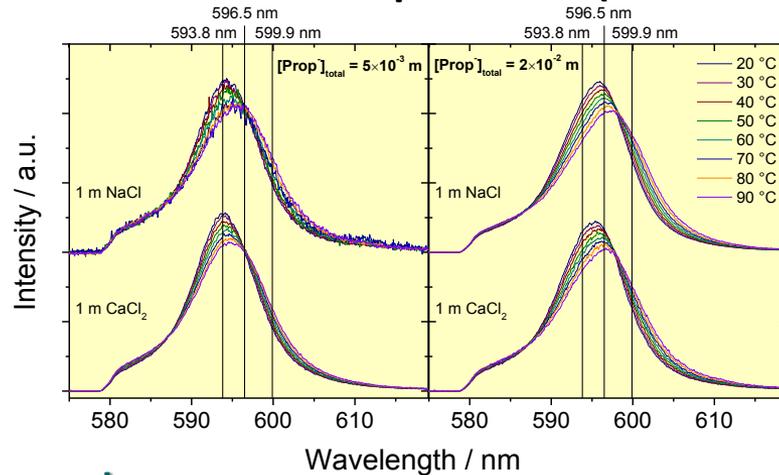
(TU Dresden)



Example: stepwise protonation of
pyromellitic acid



Thermodynamic data on the complexation of Cm(III) with various organic ligands (e.g. acetate, propionate, lactate) at elevated temperatures ($T < 100\text{ }^\circ\text{C}$)



Approach:

- Speciation of Cm(III) with various organic ligands (e.g. acetate, propionate, lactate) as a function of temperature
- Determination of temperature dependent stability constants at various ionic strengths
- Extrapolation to zero ionic strength $\rightarrow \log K_n^0$
- Influence of different ionic media: NaCl, NaClO₄, CaCl₂
- Determination of ion interaction coefficients and thermodynamic data ($\Delta_r H_m^0$, $\Delta_r S_m^0$, $\Delta_r G_m^0$, $\Delta_r C_{p,m}^0$)

Fröhlich et al , Uni Heidelberg, 2012

Tonorganik

- Umfangreiche Datenbasis für die Komplexierung von Actinidionen mit niedermolekularen organischen Komplexbildnern erarbeitet
- Niedermolekulare organische Säureanionen (Acetat, Lactat, Propionat) stellen relativ schwache Komplexbildner dar; Nach bisherigen Untersuchungen nur geringer Einfluss auf Actinidenspeziation in Tonporenwässern
- Stark komplexierende makromolekulare organische Liganden können möglicherweise aus Tonorganik mobilisiert werden; allerdings ist ihr Diffusionspotential begrenzt.

Vielen Dank dem

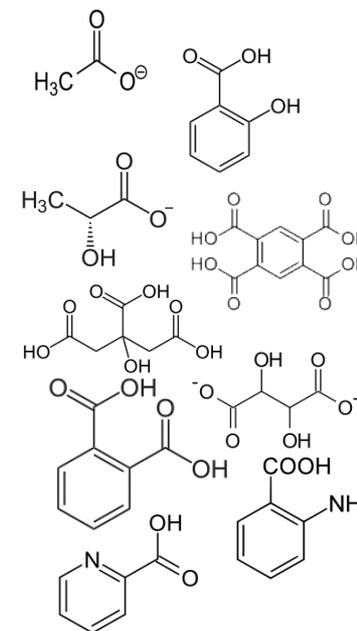


für die Förderung

.... und Ihnen für Ihre Aufmerksamkeit!

Actinide complexation with low molecular weight organic ligands

Ligands	T [°C]	Complex formation constant			Method
<i>Am(III)</i>		$\log \beta_{110}$	$\log \beta_{120}$	$\log \beta_{130}$	
Acetic acid	25 - 50	2.14 – 2.30			A
Salicylic acid	25	2.56	3.93		A
Lactic acid	25 - 65	2.22 – 2.75			A, B
Pyromellitic acid	20 – 50	5.42 – 5.7	9.74 – 10.80		A, B
Citric acid	25 - 50	6.67 – 7.66	11.80 – 12.36		A
Tartaric acid	25	3.84	6.54		A
Phthalic acid	25	3.99			B, C
Anthranilic acid	25	3.70			B, C
Picolinic acid	25	3.83	7.34		B, C
<i>Eu(III)</i>					
Salicylic acid	25 – 60	1.84 – 1.67	3.56 – 3.70	4.89 – 5.35	B
Lactic acid	25 – 70	2.51 – 2.87	4.45 – 4.78	5.83 – 6.48	B
Pyromellitic acid	25 – 60	4.70 – 5.03			B
Tartaric acid	25	4.17	7.27		A



BMW-Joint Research Project: KIT report, 2012

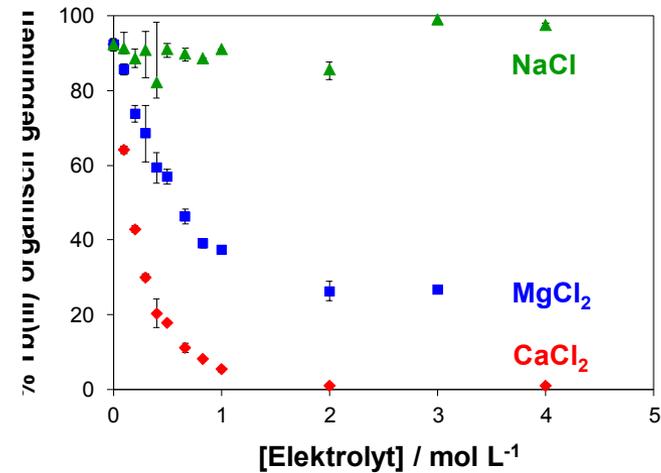
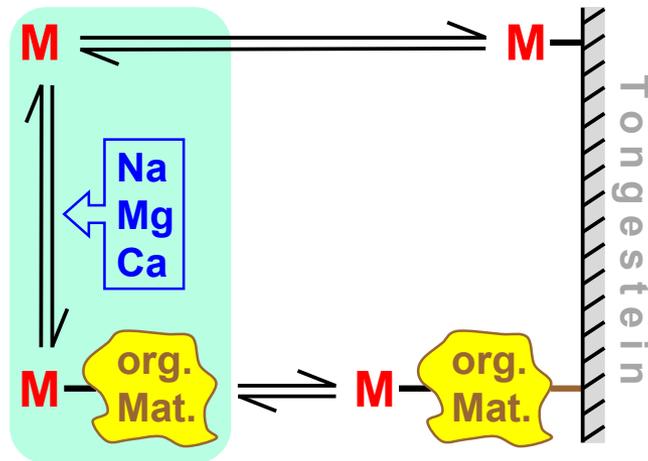
Actinide complexation with low molecular weight organic ligands

Ligands	T [°C]	Complex formation constant			Method
		$\log \beta_{101 \text{ or } 11}$	$\log \beta_{102 \text{ or } 12}$	$\log \beta_{202}$	
<i>U(IV)</i>					
Citric acid	25	13.5 ± 0.2	25.1 ± 0.2		A
Mandelic acid	25	4.53 ± 0.09	8.02 ± 0.13		A
Glycolic acid	25	4.71 ± 0.08	8.25 ± 0.15		A
Succinic acid	25	9.0 ± 0.2			A
<i>U(VI)</i>					
Citric acid	-120	7.24 ± 0.16 ^a		18.90 ± 0.26 ^a	B / C
	25	7.67 ± 0.12 ^b		18.85 ± 0.42 ^b	
Oxalic acid	-120	5.88 ± 0.29 ^a	10.26 ± 0.13 ^a		B / C
	25	5.92 ± 0.03 ^b	10.30 ± 0.38 ^b		
Lactic acid	7 – 65	2.71 – 3.70	4.40 – 5.64		A / C
Anthranilic acid	25	3.14 ± 0.17			D
Nicotinic acid	25	3.73 ± 0.30	7.46 ± 0.17		C
Phenylphosphonic acid	25	3.61 ± 0.14	6.95 ± 0.22		C
Benzenesulfonic acid	25	2.62 ± 0.07			C
4-Hydroxybenzene sulfonic acid	25	2.67 ± 0.03			C

BMW-Joint Research Project: KIT report, 2012

Besitzt höhermolekulares organisches Material in Tongestein bei hoher Salinität ein Mobilisierungspotential für Actinidionen?

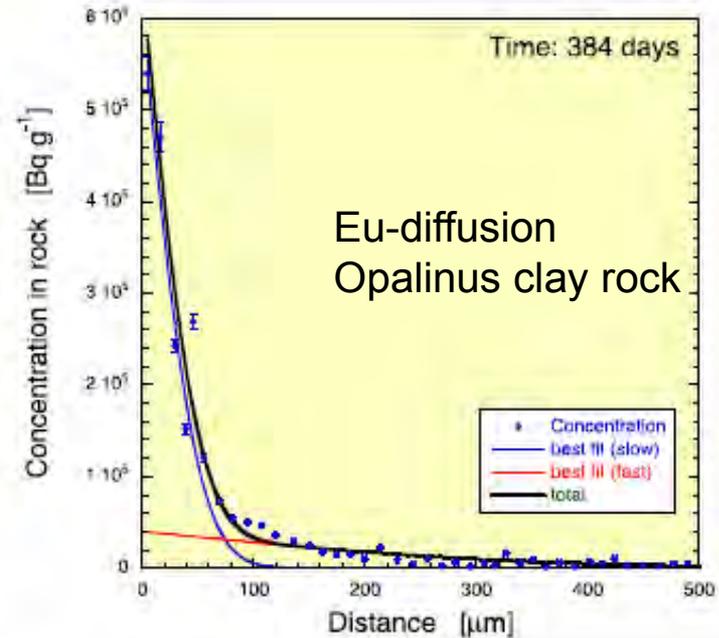
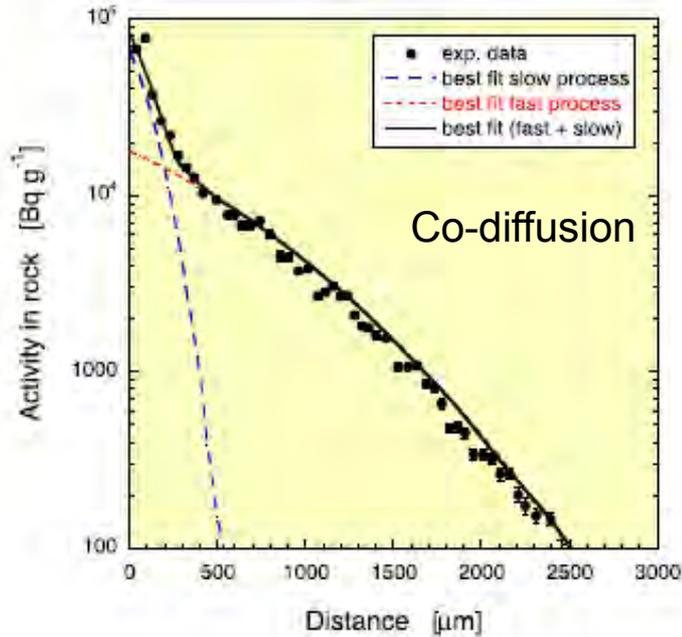
Einfluss der Hauptelektrolytbestandteile von Tonporenwässern auf die Organo-Komplexbildung von $[^{160}\text{Tb}]$ Terbium(III) als Analogtracer (Radiotracerstudien mittels Ultrafiltration)



- Verschiedene Salze zeigen sehr unterschiedliche Effekte
- Sie liegen sowohl in Konkurrenz- als auch in Abschirmung
- Das Mobilisierungspotential von Tonorganika wird durch weitgehend unterbunden.

Claus et al., HZDR, 2012

„Anomaleous“ diffusion behaviour of strongly sorbing tracers

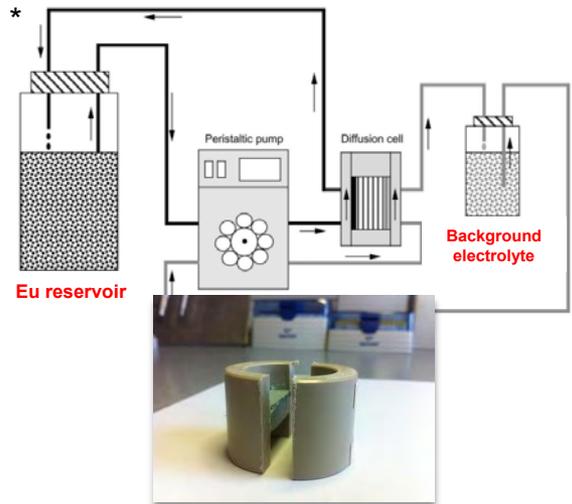


S. Altmann et al., Appl. Geochem. (2012)

Kombination: Diffusionsexperiment / Spektroskopie

Diffusionsexperiment:

Kompaktierter Na-illit (1700 kg/m^3)
 $10^{-6} \text{ M Eu(III)}$, $0,2 \text{ M NaCl}$, pH: 5,5-6,4
Diffusionsdauer: 152 Tage

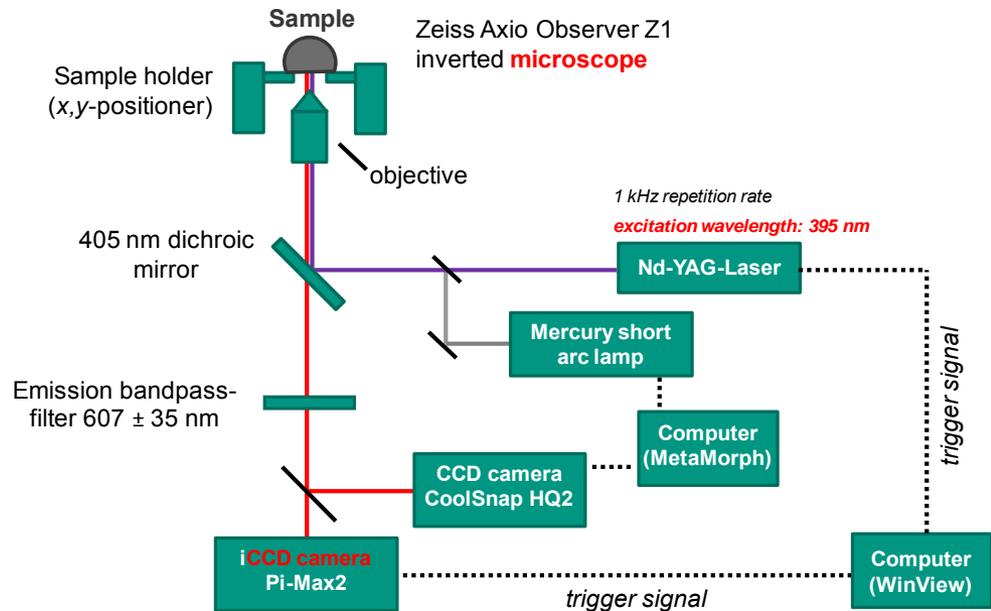


*T Kupcik, Th. Schäfer, KIT-INE



CATCLAY
(Contract Number:
Grant Agreement 249624)

Konfokale μ -TRLFS



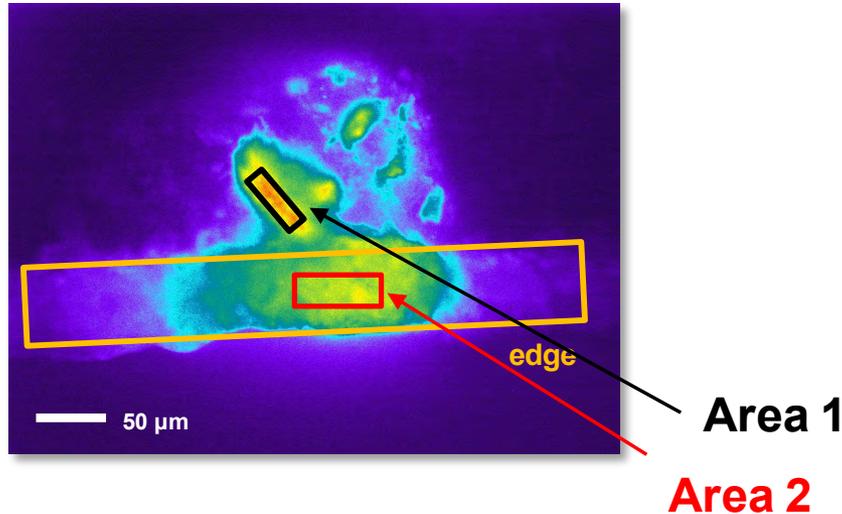
*C. Hille, S. Eidner, M. Kumke; Department of Physical Chemistry,
University of Potsdam

Diffusionsexperiment – Konfokale Mikrospektrometrie

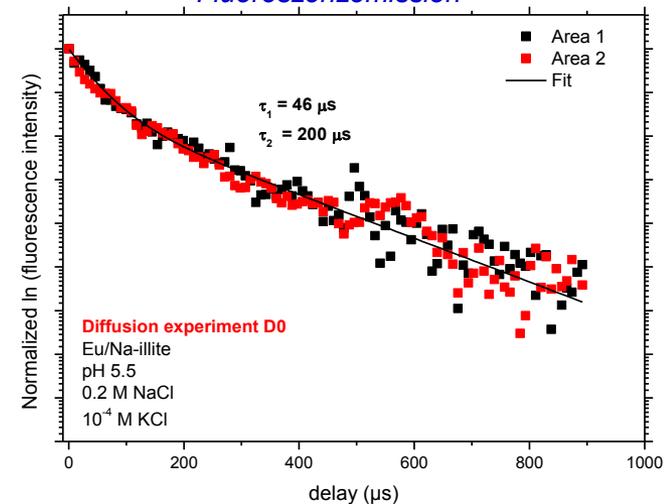
Erste Experimente:

- Ortsauflösung im μm Bereich
- Zeitaufgelöste Spektrometrie möglich
- Hohe Oberflächenrauigkeit erschwert Fokussierung

Fluoreszenzemission



Zeitaufgelöste
Fluoreszenzemission



Spektroskopische Untersuchungen

Actinide	Mineral	Spectroscopy	
UO_2^{2+}	Kaolinite montmorillonite	TRLFS/EXAFS	
NpO_2^+	Kaolinite, OPA	EXAFS, μ -XAS	
Pu	Kaolinite, montmorillonite OPA	EXAFS	
Am/Cm/Eu	Illite, Montmorillonite	TRLFS, EXAFS	

ImmoRad – Langzeitsicherheit durch Immobilisierung langlebiger Radionuklide; Erste Ergebnisse

Thorsten Stumpf

BMBF-Verbundprojekt “Grundlegende Untersuchungen zur Immobilisierung langlebiger Radionuklide durch die Wechselwirkung mit endlagerrelevanten Sekundärphasen (ImmoRad)”

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

Förderzeitraum: 3 Jahre

Offizieller Beginn: Februar 2012

Verbundpartner :

Thomas Neumann, Karlsruher Institut für Technologie, Institut für Mineralogie und Geochemie (KIT-IMG)

Dirk Bosbach, Forschungszentrum Jülich, Institut für Energieforschung (FZJ-IEK6)

Andreas Scheinost, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf, Institut für Ressourcenökologie (HZDR-IRE)

Björn Winkler, Universität Frankfurt, Institut für Geowissenschaften (GU-IFG)

Jan Tits, Paul Scherrer Institut, Nuclear Energy and Safety Research Department, Labor für Endlagersicherheit, Schweiz (PSI-LES)

Manuel Prieto Rubio, Universidad de Oviedo, Departamento de Geología, Spanien (UO-DG)

Thorsten Stumpf, Karlsruher Institut für Technologie, Institut für Nukleare Entsorgung (KIT-INE)

Nachhaltigkeit 1

März 2008 bis Mitte 2011 wurde das **Virtuelle Institut** „Advanced Solid-Aqueous Radio-Geochemistry“ von der Helmholtzgemeinschaft gefördert. Es handelt sich daher um die Fortführung eines bereits positiv evaluierten und installierten Verbundes.

Nachhaltigkeit 2

Förderung des **Nachwuchses**! Die Personalmittel werden ausschließlich zur Finanzierung von Doktoranden und jungen Nachwuchswissenschaftlern (Postdoktoranden) genutzt.

3 Doktoranden (KIT-INE, FZJ-IEK6, Uni Oviedo)

4 Postdoktoranden (KIT-IMG, HZDR-IRE, Uni Frankfurt, PSI-LES)

Netzwerk 1

Verknüpfung zwischen **Großforschungseinrichtungen** und **Universitäten**! In das Projekt eingebunden sind Institute an Helmholtzzentren und universitäre Arbeitsgruppen, sodass auch der Lehre Rechnung getragen wird.

3 Helmholtzzentren (KIT-INE, FZJ-IEK6, HZDR-IRE)

1 Schweizer Forschungszentrum (PSI-LES)

3 Universitäten (KIT-IMG, Uni Oviedo, Uni Frankfurt)

Netzwerk 2

Internationale Zusammenarbeiten! In das Projekt eingebunden sind neben den nationalen Partnern auch Mitarbeiter von zwei nichtdeutschen Institutionen.

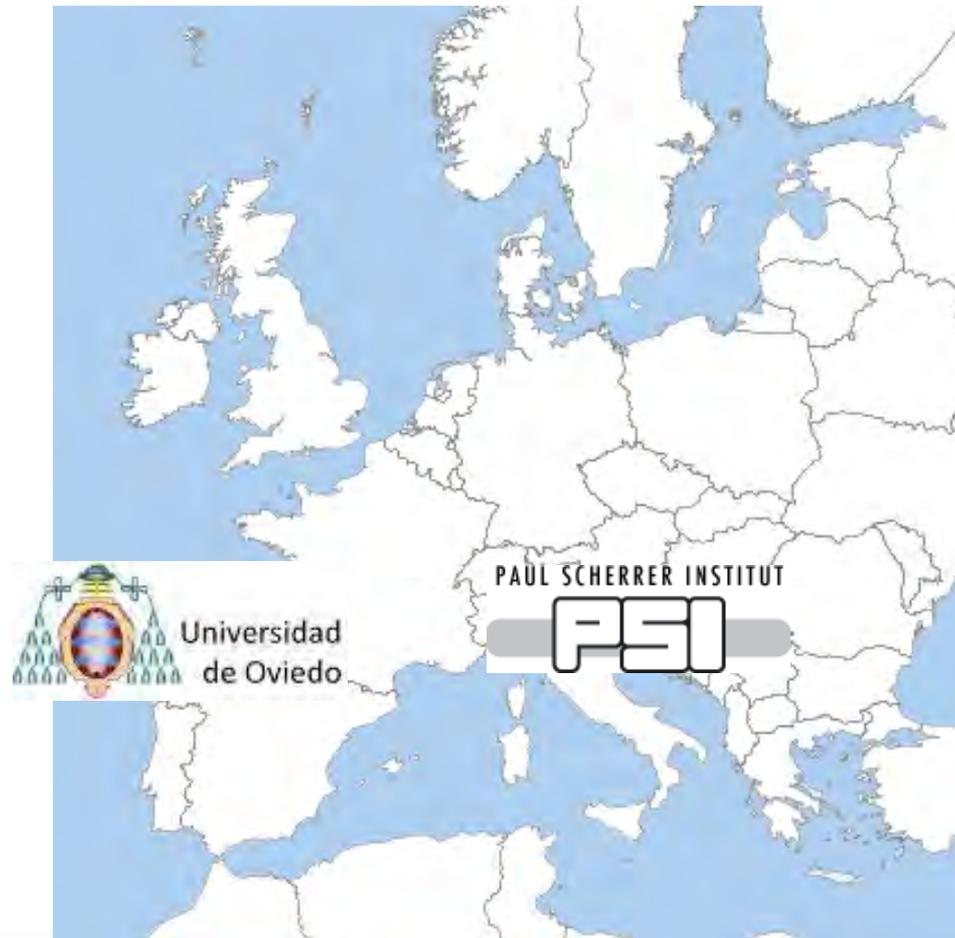


JÜLICH
FORSCHUNGSZENTRUM

GOETHE
UNIVERSITÄT
FRANKFURT AM MAIN

KIT
Karlsruhe Institute of Technology

HZDR



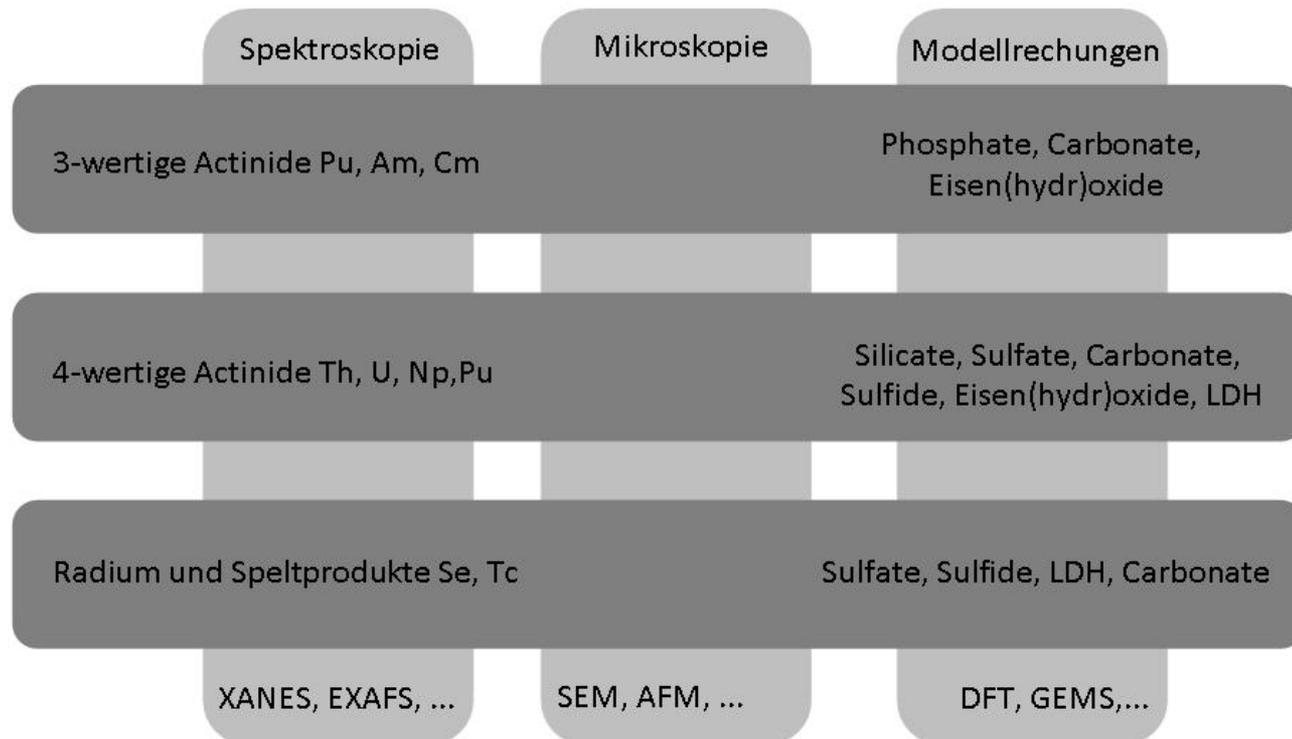
Work packages:

A) Dreiwertige Actinide: Pu, Am, Cm (Einbau in und Wechselwirkung mit Phosphaten, Carbonaten, Eisen(hydr)oxiden).

B) Vierwertige Actinide: Th, U, Np, Pu (Einbau in und Wechselwirkung mit Silicaten, Sulfaten, Carbonaten, Sulfiden, Eisen(hydr)oxiden, LDH-Phasen, Phosphaten).

C) Radium und Spaltprodukte: Ra, Se(IV), Se(VI), Tc (Einbau in und Wechselwirkung mit Sulfaten, Sulfiden, LDH Phasen, Carbonaten).

Immobilisierung langlebiger Radionuklide durch endlagerrelevante Sekundärphasen: **Systeme und Methoden**



Milestones:

Verbund-“Kickoff meeting” April 2012, Bad Herrenalb

Goldschmidt conference June 2012 – meeting within session 8c

Meeting January 2013, Frankfurt

Goldschmidt conference 2013

“Mid-Term”-Verbund-Meeting June 2013, Oviedo

Meeting January 2014, Villigen

Verbund-Final-Meeting June 2014, Jülich

Program for Goldschmidt Session 8c

„Structural incorporation of heavy metals/radionuclides into mineral phases in aqueous environment“ (Co-convenor T. Stumpf & T. Neumann)

Oral

Chronological order	Time (minutes)	Author(s)	Title
1 (Keynote Lecture)	24+6	Bruno	From aqueous to solid solutions: A process understanding of trace metal incorporation into solid structures
2	12+3	Brandt et al.	Replacement of Barite by Radiobarite at close to equilibrium conditions and room temperature
3	12+3	Marshall et al.	Uranium incorporation during iron(oxyhydr)oxide crystallisation at hyperalkaline pH
4	12+3	Zänker et al.	Silica-stabilized actinide(IV) colloids at near-neutral pH
5	12+3	Tits et al.	Immobilisation of hexavalent actinides in cementitious materials: Evidence for structural incorporation in calcium-silicate-hydrates
6	12+3	Holliday et al.	Discrimination factors affecting incorporation: Comparison of the fate of $\text{Eu}^{3+}/\text{Cm}^{3+}$ in the Sr carbonate/sulfate system
7	12+3	Hofmann et al.	Influence of nitrate on the Eu(III) uptake by calcite: A TRLFS study
8	12+3	Polly et al.	Sorption and incorporation of radionuclides at mineral surfaces studied with quantum chemical methods
9	12+3	Kulik et al.	Partial-equilibrium concepts to model trace element uptake
10 (Keynote Lecture)	24+6	Breynaert et al.	Interaction of selenite with iron sulfide minerals: a new perspective
11	12+3	Deditius et al.	Role of minor and trace elements in the immobilization of U and REE
12	12+3	Dulnee et al.	Tin sorption to magnetite nanoparticles under anoxic conditions
13	12+3	Um et al.	Limited reoxidation of ^{99}Tc by ^{99}Tc -goethite coprecipitation
14	12+3	Boyanov et al.	Transformations of aqueous U(VI) during redox cycling of Fe phases

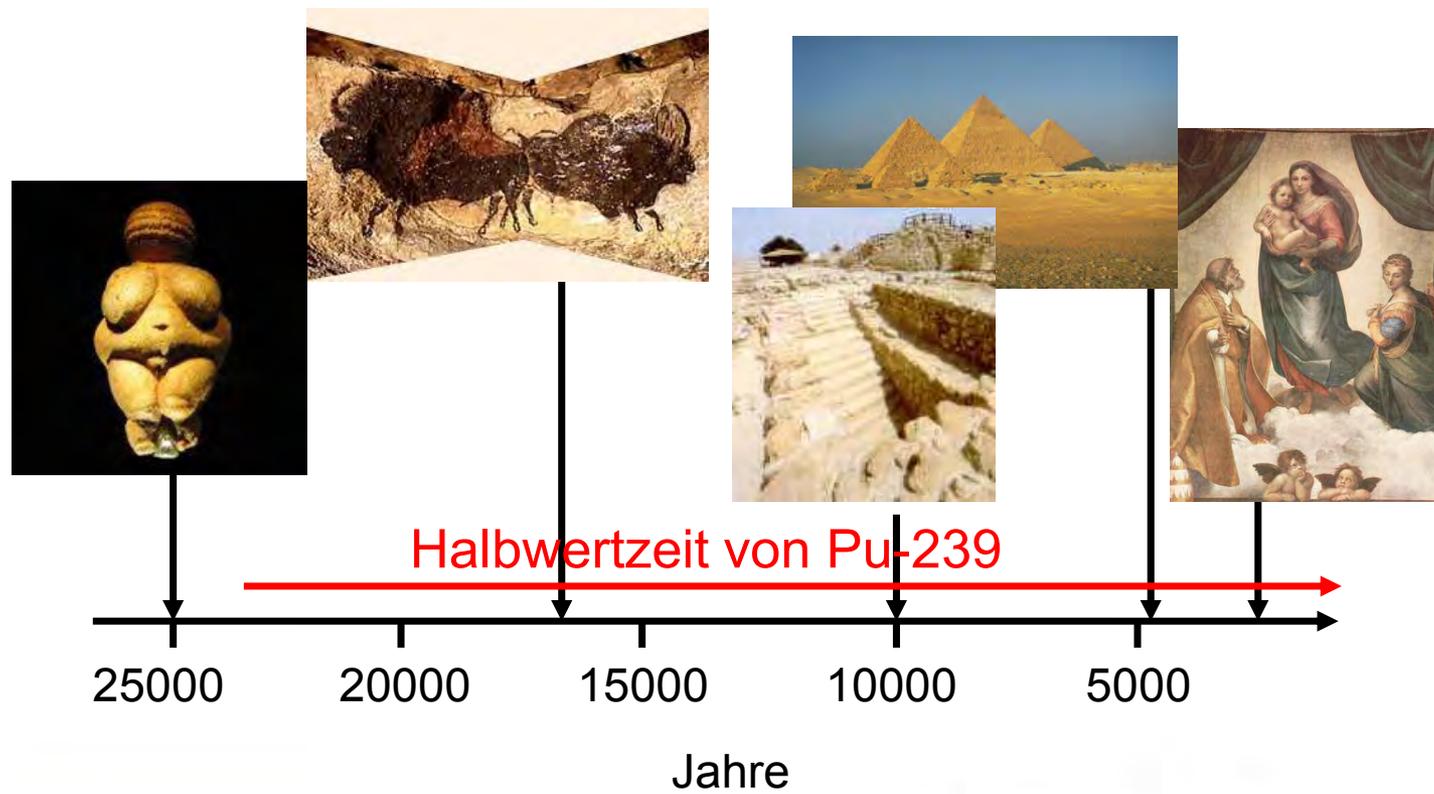
Poster

	Author(s)	Title
1	Rozov et al.	Synthesis, characterization and stabilities of Mg-Zr(IV)-Al-Cl containing layered double hydroxides (LDHs)
2	Miyazaki et al.	Local structure of Al in Al-Zn hydroxide coprecipitates
3	Kim et al.	Mercury Sorption on Apatite: Effects of pH and Ionic Strength
4	Ortiz-Young et al.	Interfacial-water: properties explored with an Atomic Force Microscope
5	Naren et al.	Uptake behavior of silicic acid by schwertmannite and its stability
6	Lin et al.	Synchrotron XAS and single-crystal EPR study of arsenic speciation in struvite
7	Dähn et al.	X-ray microspectroscopic investigations of Ni(II) uptake by argillaceous rocks of the Boda Claystone Formation in Hungary
8	Mailliot et al.	U(VI) sorption on montmorillonite in the presence of phosphate
9	Klängenberg et al.	Recrystallization of Barite in the presence of Ra at elevated temperatures up to 90°C
10	Harsh et al.	Incorporation of Perrhenate into Nitrate Sodalite
11	Celestian et al.	Heavy metal sequestration in nanoporous minerals
12	Wang et al.	Inspired by minerals: Metal-fluoride behavior for engineered waste treatment
13	Soltermann et al.	Investigations of Fe(II) sorption onto montmorillonite. A wet chemistry and XAS study

Ziel

Ziel des Vorhabens ist es einen Beitrag zur sicheren Endlagerung hochradioaktiven Abfalls zu leisten. In diesem Kontext wollen wir ein auf atomarer Skala basierendes **Prozessverständnis** der Wechselwirkung von Actiniden und Spaltprodukten mit endlagerrelevanten Mineralen bzw. Mineraloberflächen erlangen, um so Retentionsmechanismen auf langen Zeitskalen zu verstehen.

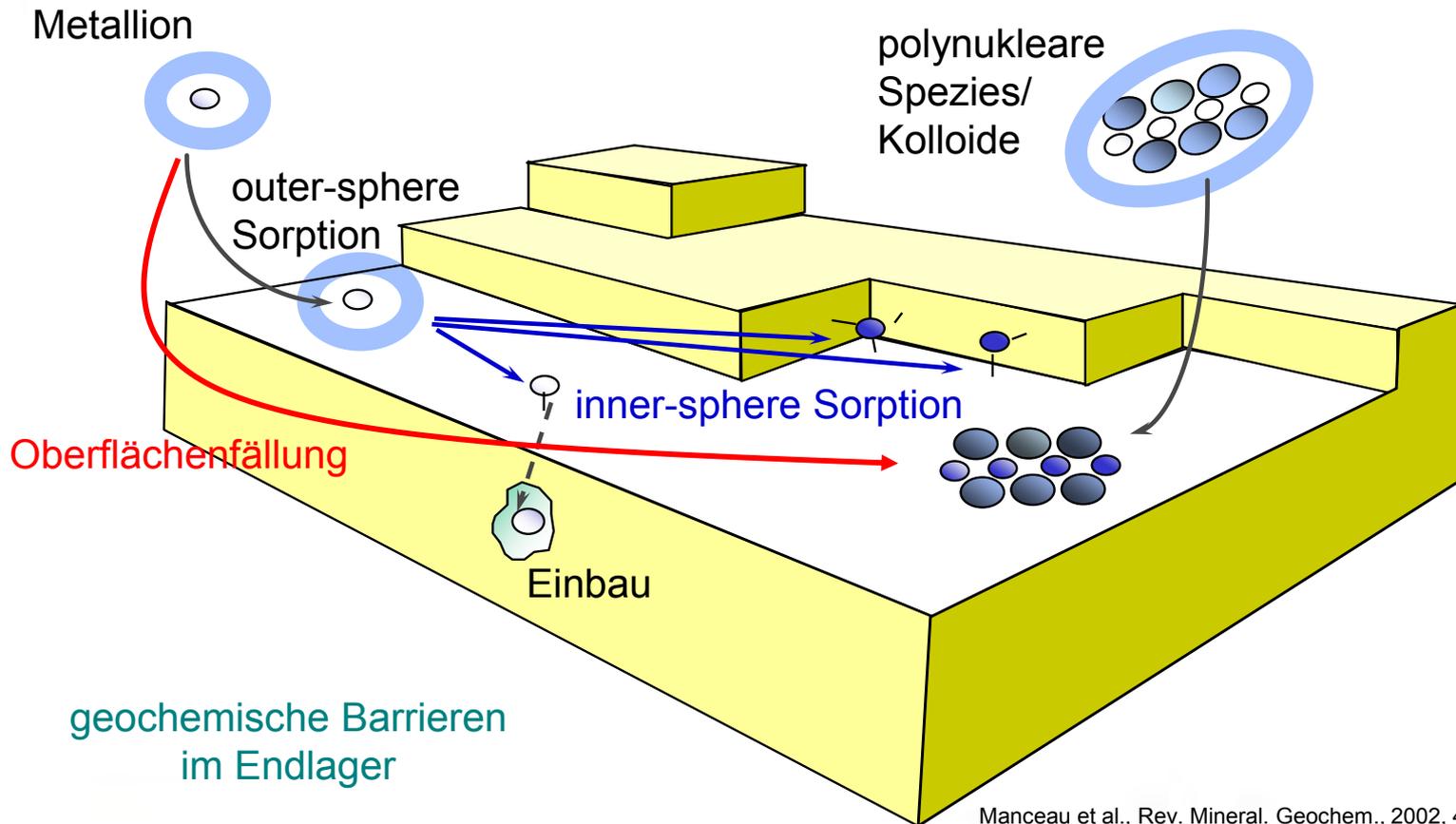
Zeiträume für die Aussagen zur Langzeitsicherheit



Voraussagen zur Freisetzung von Actiniden über einen Zeitraum von mehreren hunderttausend Jahren

- durch zeitliche Extrapolation makroskopisch beobachteter Phänomene → **unzureichend!**
- **durch Prozessverständnis auf molekularer Ebene**

Grundlegende Prozesse auf molekularer Ebene



Manceau et al., Rev. Mineral. Geochem., 2002, 49, 344

BMBF-Verbundprojekt “Grundlegende Untersuchungen zur Immobilisierung langlebiger Radionuklide durch die Wechselwirkung mit endlagerrelevanten Sekundärphasen (ImmoRad)”

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

BMBF-Verbundprojekt “Grundlegende Untersuchungen zur Immobilisierung langlebiger Radionuklide durch die Wechselwirkung mit endlagerrelevanten **Sekundärphasen** (ImmoRad)“

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

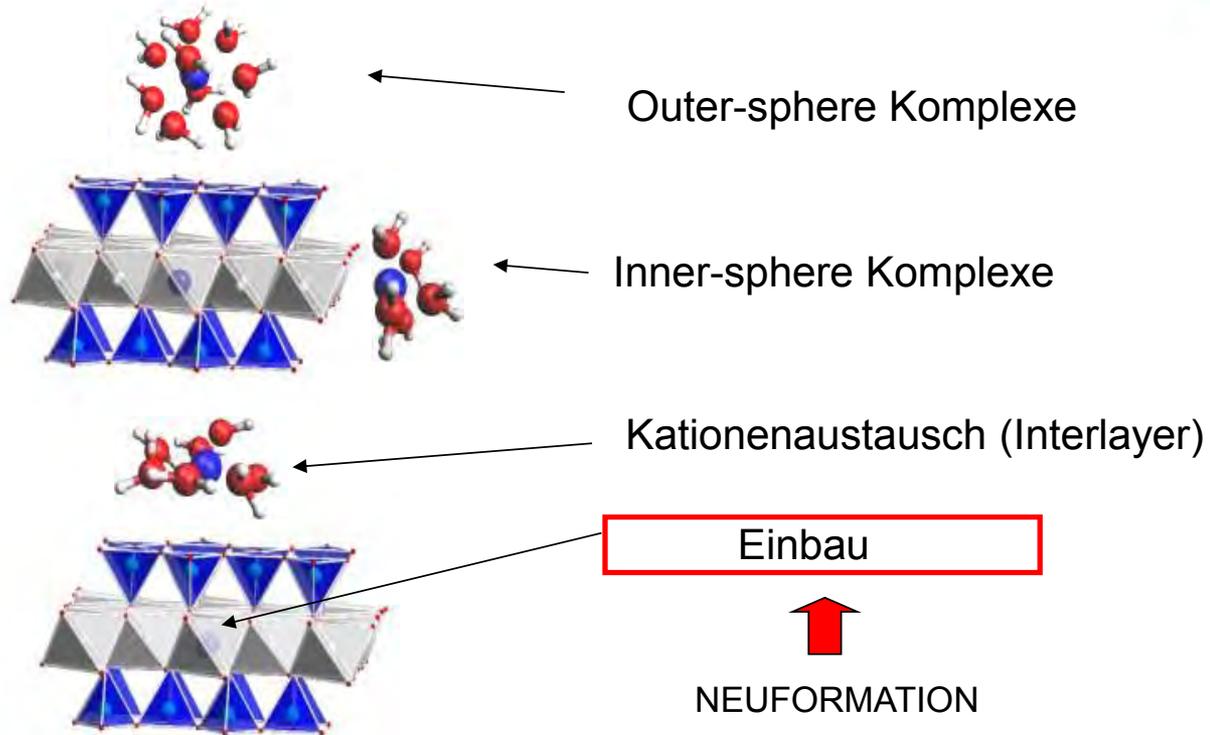
Sekundärphasen

Sekundärphasen als Folge von Korrosionsprozessen

Immobilie Sekundärphasen – Rückhaltung von Radionukliden

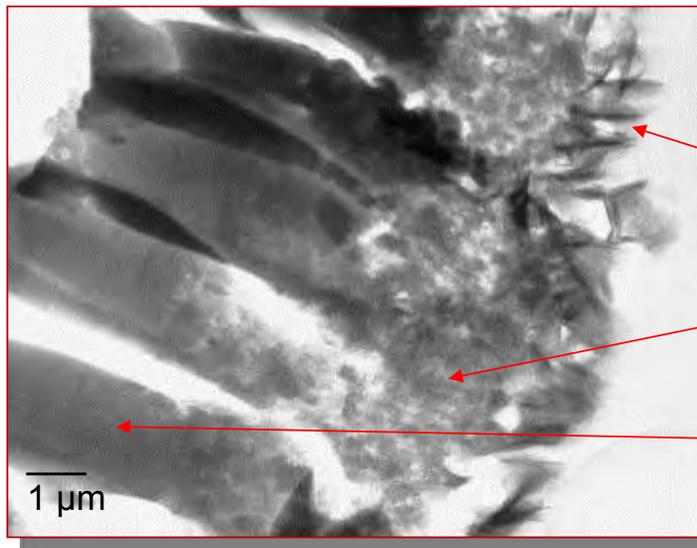
Mobile kolloidale Sekundärphasen – möglicher Transport von Radionukliden

Sekundärphasen: Tonminerale



Sekundärphasen: Tonminerale

Korrodiertes HAW Glas (TEM cross-sectional view)



Tonminerale
(Hektorit)

Gel layer

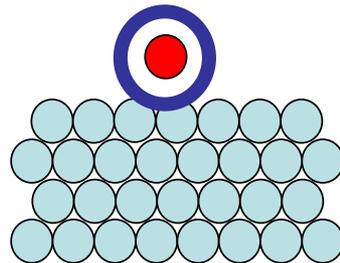
Glas

at.-%	glass	gel layer	clay
Nd_2O_3	2.06	3.5	3.0

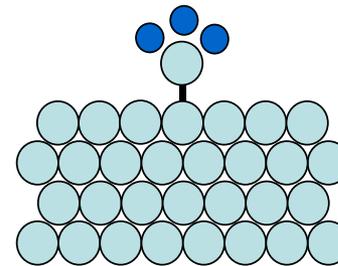
Enzo Curti (PSI), J.-L.Crovisier (Uni Strasbourg)

Radionuklide Sorptionsreaktionen

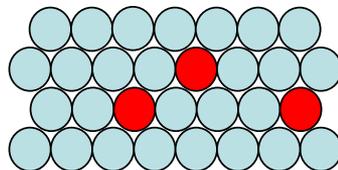
1. Outer-sphere Sorption



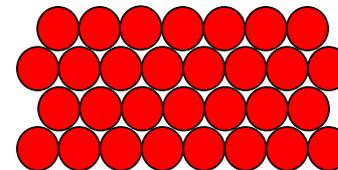
2. Inner-sphere Sorption



3. Solid Solution

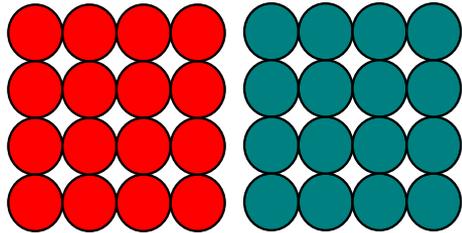


4. Fällung



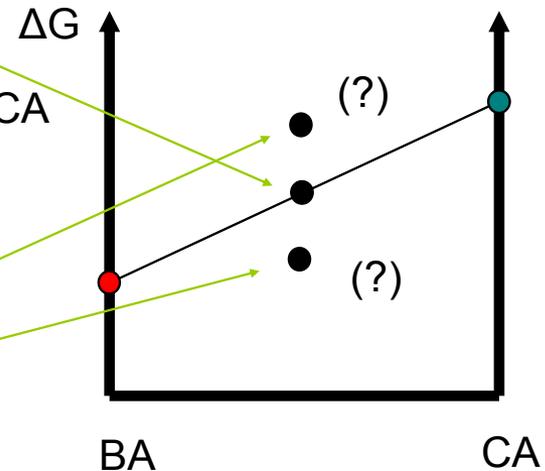
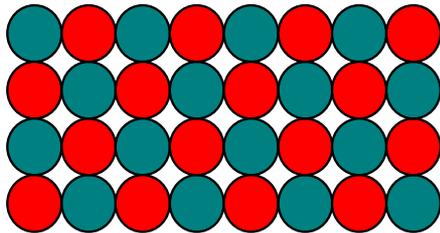
Was ist eine „solid solution“?

Phase BA Phase CA



Mechanische Mischung von Phase BA und CA

Phase (B,C)A



Mischung von B und C auf molekularer Ebene - homogene solid solution (B,C)A. Eine eigene Phase die über einen größeren Bereich in gleicher chemischer Zusammensetzung existiert.

Solid solutions in der Natur

Tourmalin



Sehr häufig in der Natur auftretende Wirtsminerale sind solid solutions. Die Bildung solcher „Mischungen“ auf molekularer Ebene scheint energetisch favorisiert zu sein.

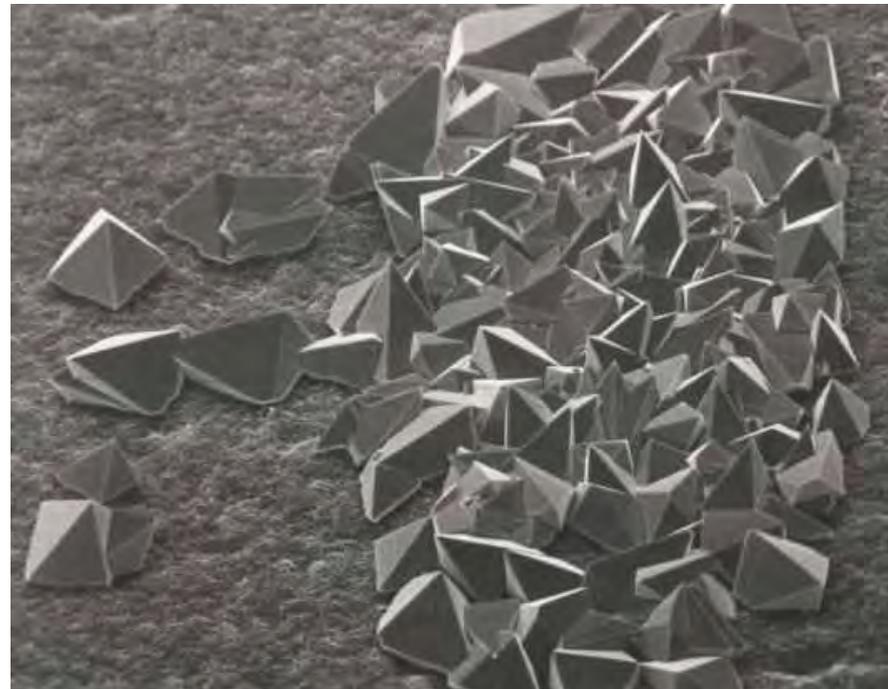
Solid solutions im nuklearen Abfall



Brennstoff



HLW Glas

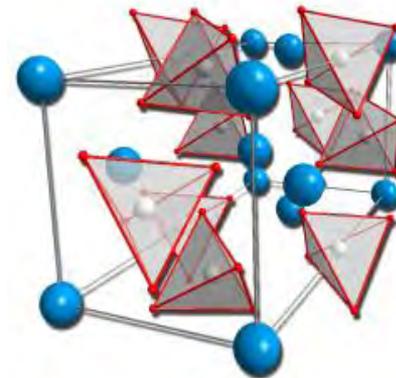
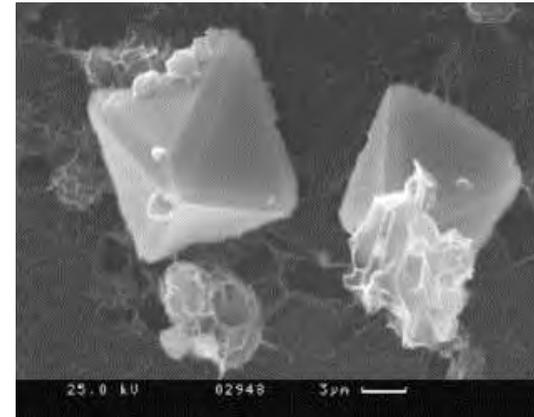


Sekundärphasen

Sekundärphase: Powellit (CaMoO_4)

Powellit als Sekundärphase während der HLW Glaskorrosion.

Bildung von solid solutions durch Substitution von ein- und dreiwertigen Kationen für Ca^{2+} .



Work packages:

A) Dreiwertige Actinide: Pu, Am, Cm (Einbau in und Wechselwirkung mit Phosphaten, Carbonaten, Eisen(hydr)oxiden).

B) Vierwertige Actinide: Th, U, Np, Pu (Einbau in und Wechselwirkung mit Silicaten, Sulfaten, Carbonaten, Sulfiden, Eisen(hydr)oxiden, LDH-Phasen, Phosphaten).

C) Radium und Spaltprodukte: Ra, Se(IV), Se(VI), Tc (Einbau in und Wechselwirkung mit Sulfaten, Sulfiden, LDH Phasen, Carbonaten).

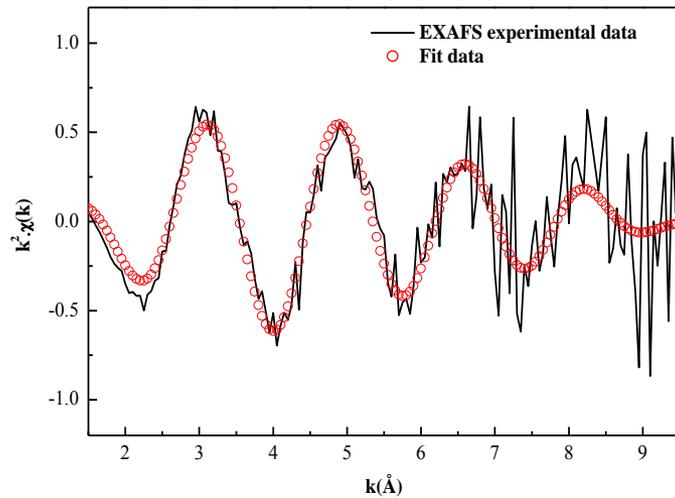
Work packages:

A) Dreiwertige Actinide: Pu, Am, Cm (Einbau in und Wechselwirkung mit Phosphaten, Carbonaten, Eisen(hydr)oxiden).

B) Vierwertige Actinide: Th, U, Np, Pu (Einbau in und Wechselwirkung mit Silicaten, Sulfaten, Carbonaten, Sulfiden, Eisen(hydr)oxiden, LDH-Phasen, Phosphaten).

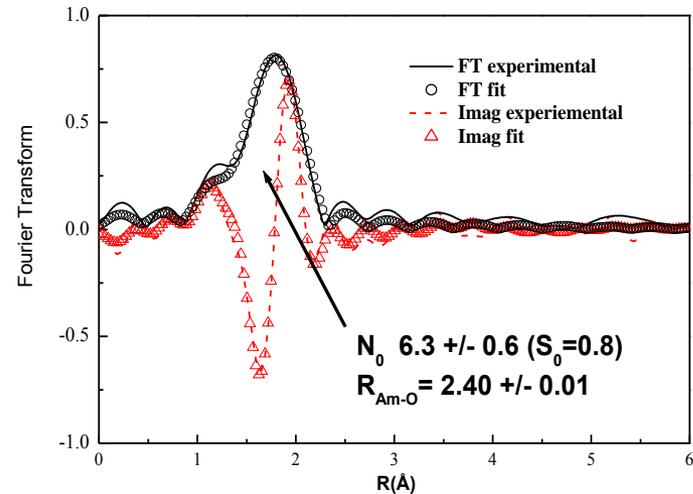
C) Radium und Spaltprodukte: Ra, Se(IV), Se(VI), Tc (Einbau in und Wechselwirkung mit Sulfaten, Sulfiden, LDH Phasen, Carbonaten).

EXAFS Messungen von Am(III)/Calcit



Am³⁺ Aquo Ion

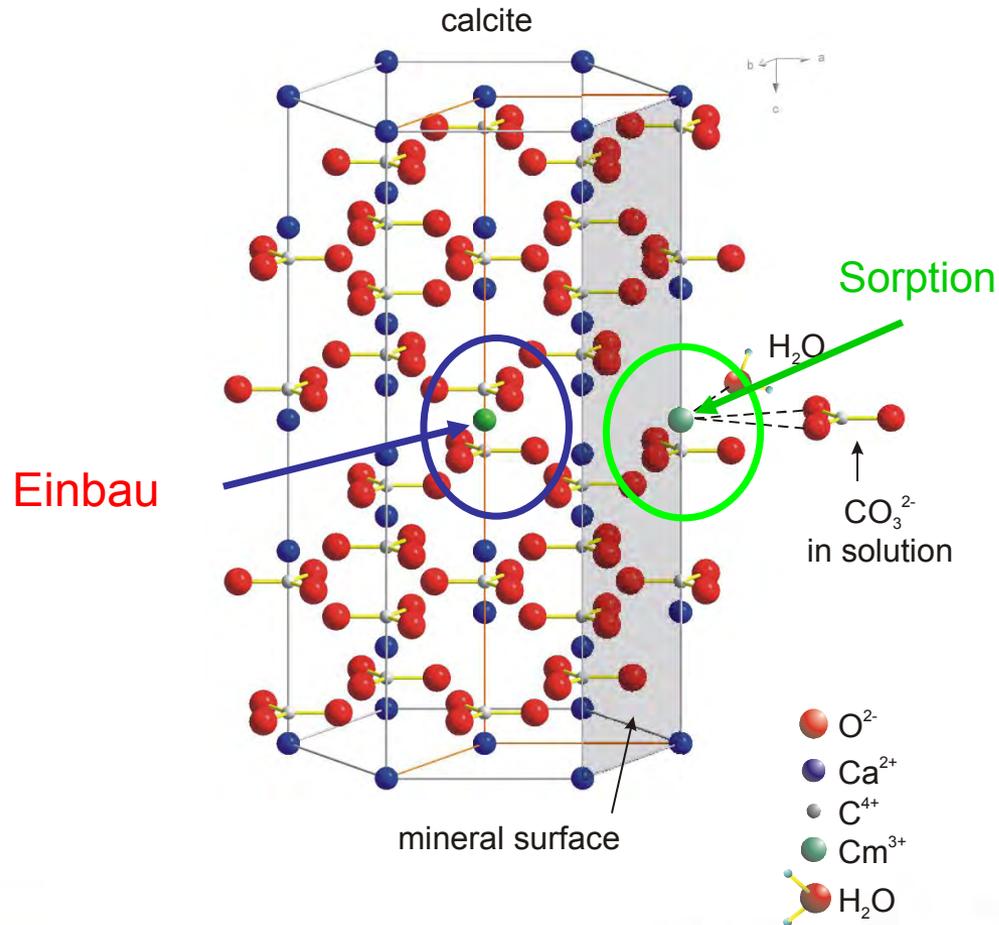
Am-O 2.47 Å
Koordinationszahl 9



Am(III)/Calcit

2.40 Å
6.3

Ln(III)/An(III) - Calcit



Ca^{2+} Austausch gegen $\text{Ln}^{3+}/\text{An}^{3+}$
Ladungsausgleich???

2 x Ca²⁺ Austausch gegen Ln³⁺/An³⁺ + Na⁺

Ladungsausgleich???

Ionenradien:

Ca^{2+} 1.00 Å

Ce^{3+} 0.97 Å

Am^{3+} 0.98 Å

Eu^{3+} 0.95 Å

Na^{+} 1.02 Å

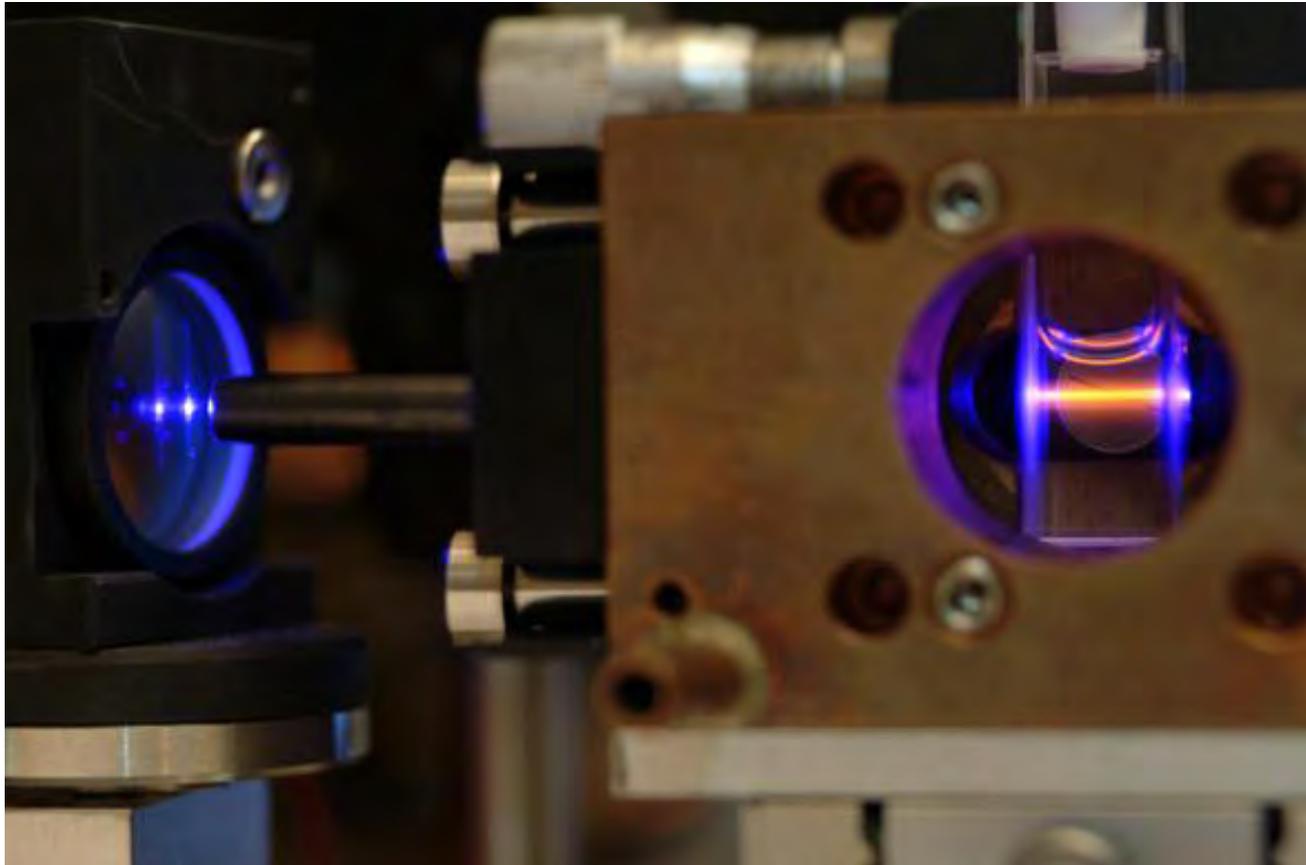
K^{+} 1.38 Å

Shannon et al. *Acta Cryst. A*, 1976, 32, 751-767

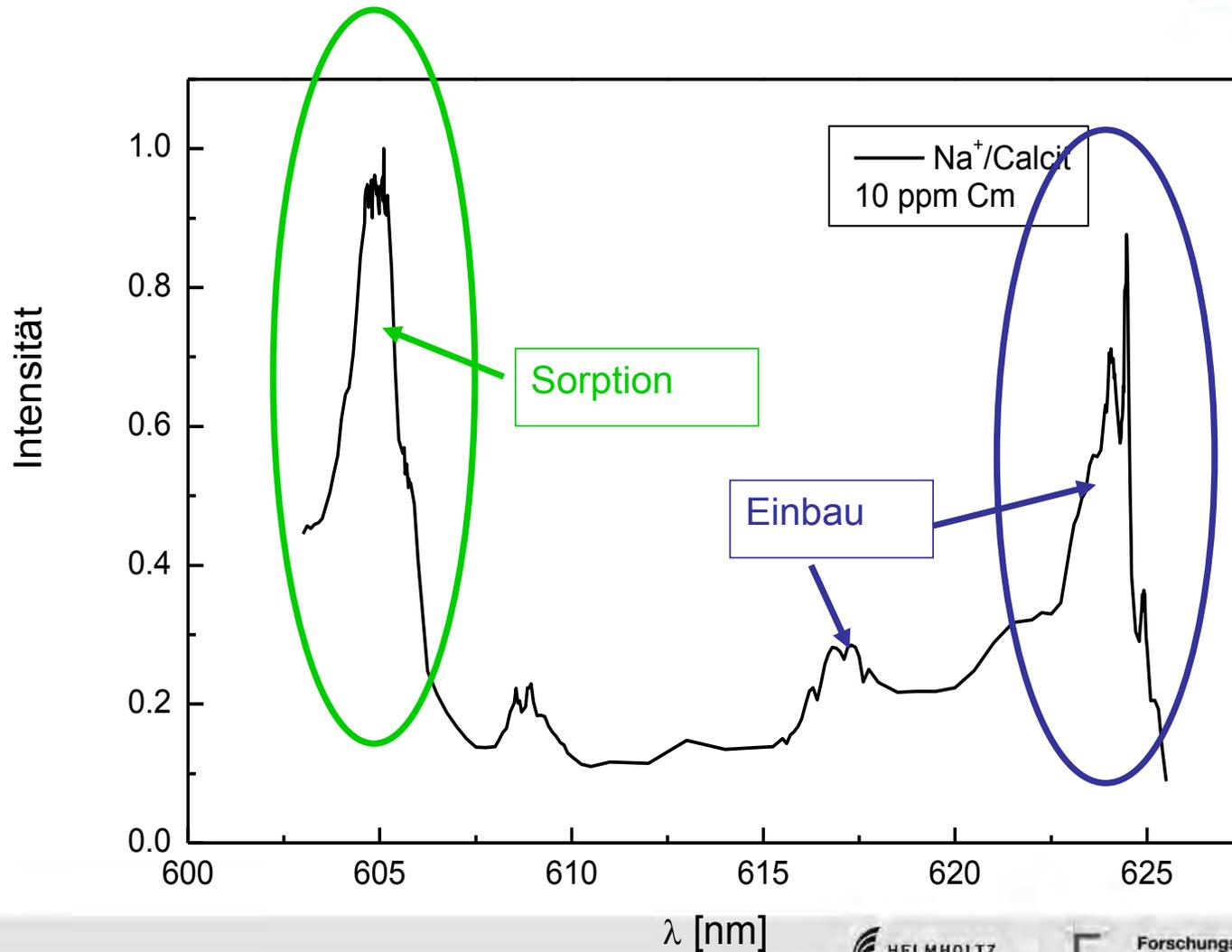




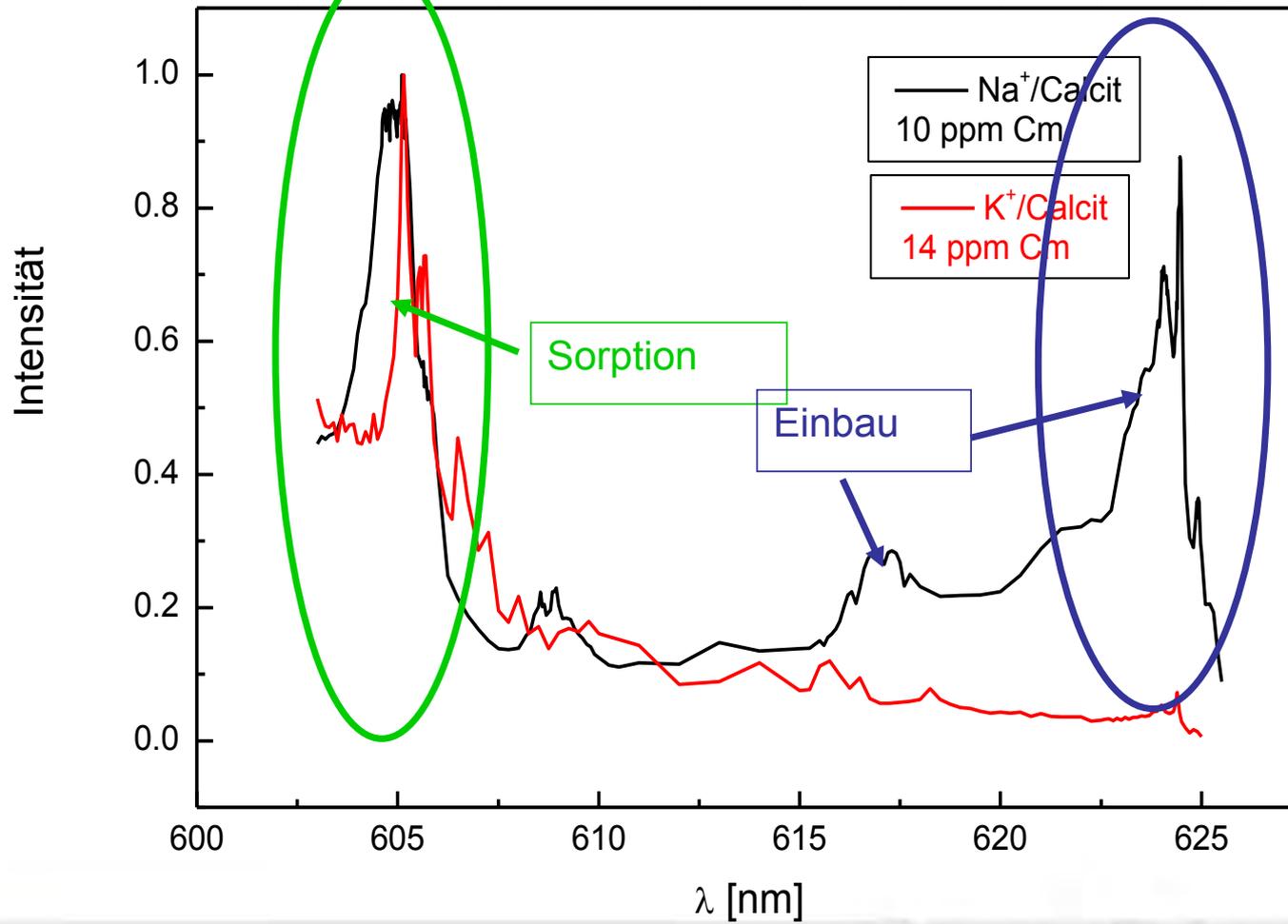
Fluoreszenz von Curium

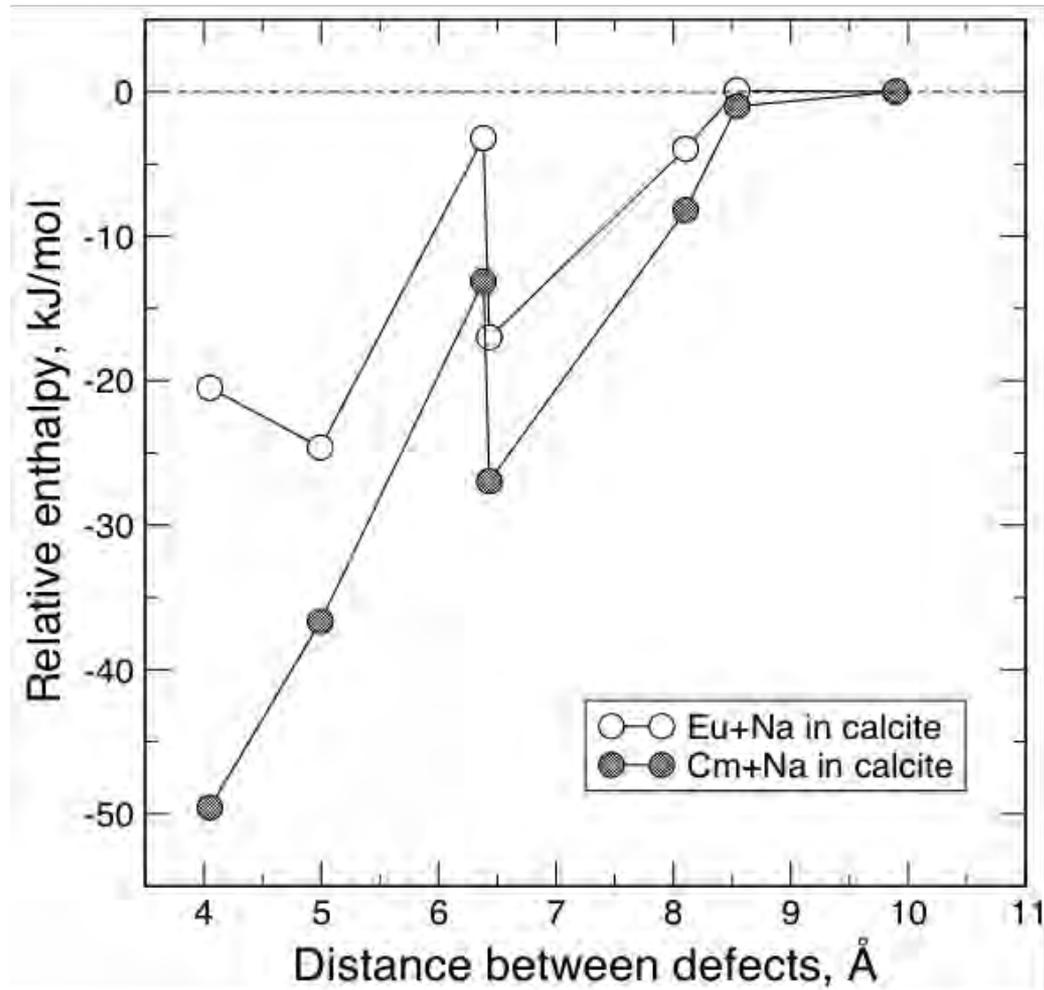


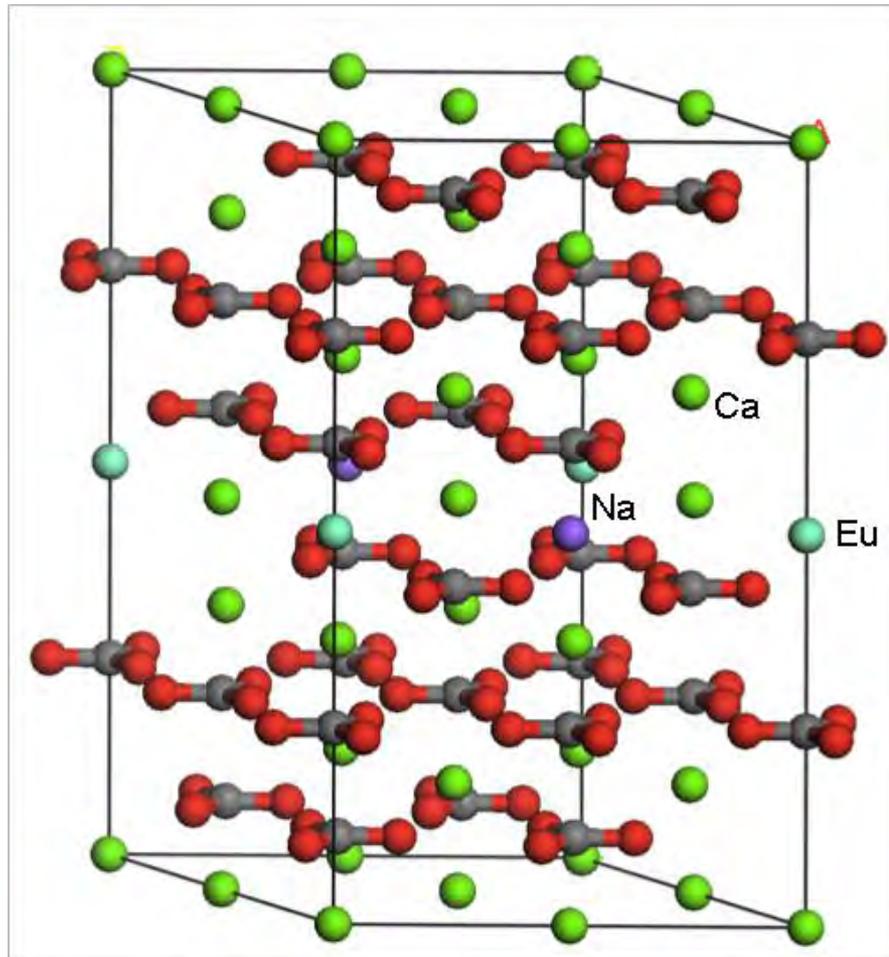
Cm Anregungsspektrum



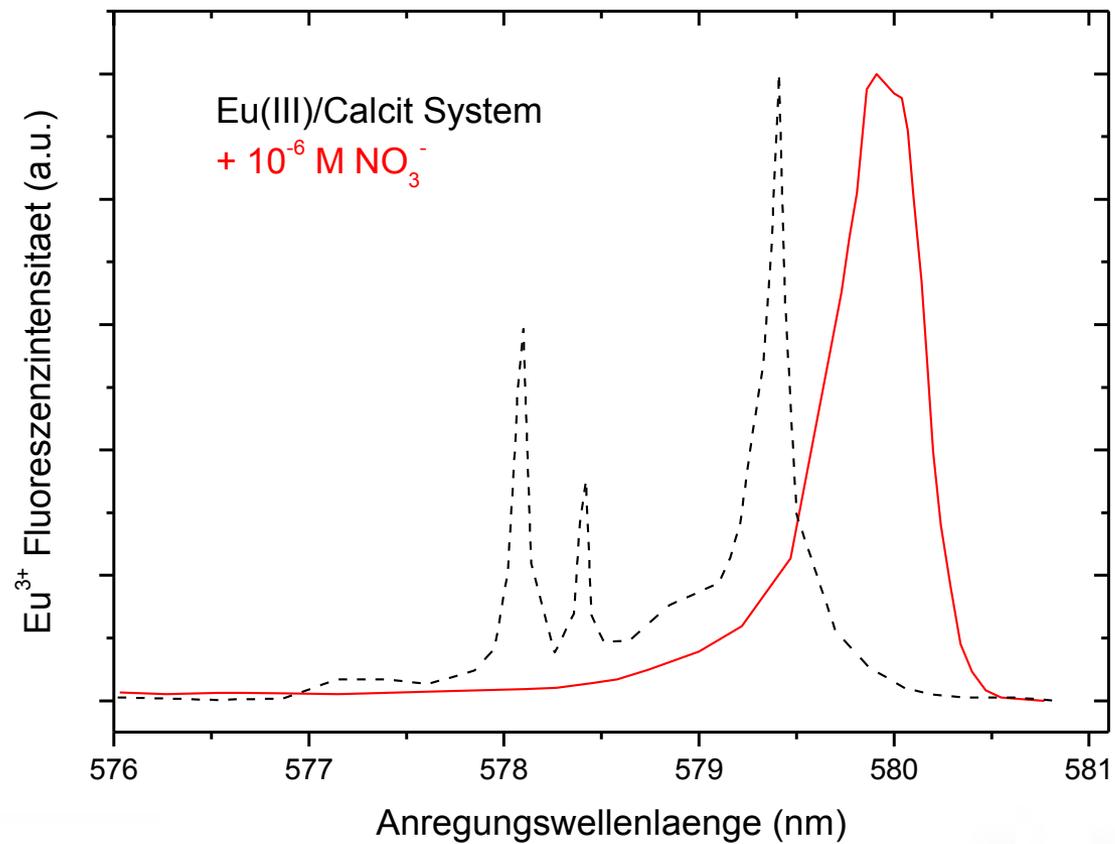
Cm Anregungsspektrum



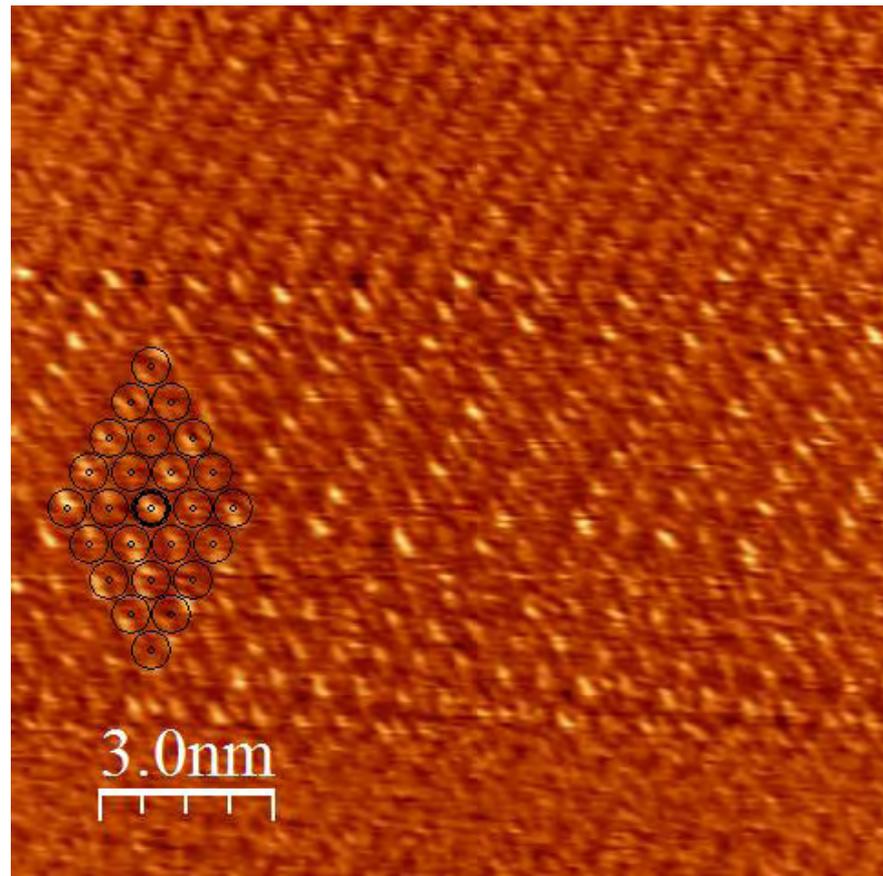




Eu(III)/Calcit in Gegenwart von Spuren von Nitrat (10^{-6}M)

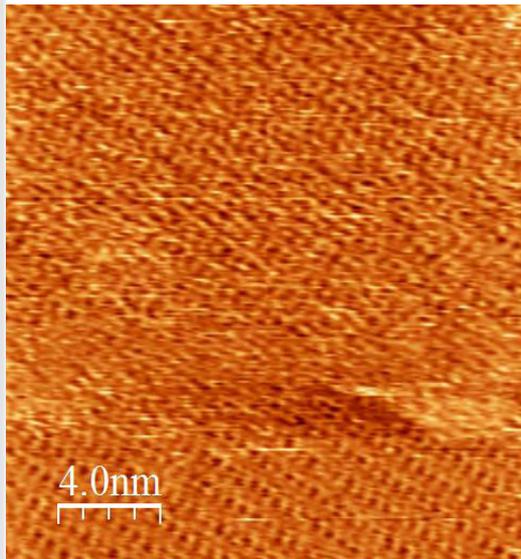


Hochauflösendes AFM: Calcitoberfläche

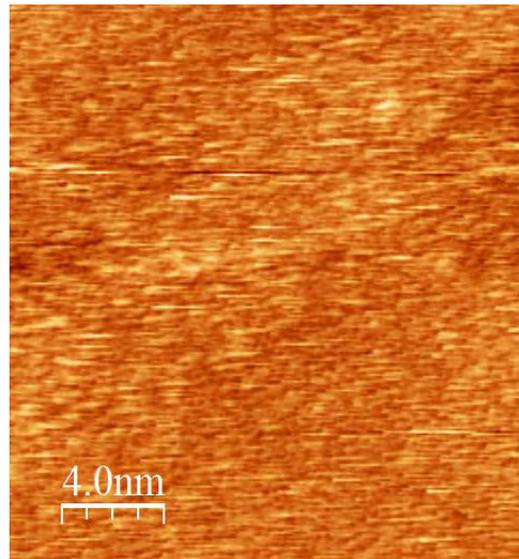


Calcit in Gegenwart von Spuren von Nitrat

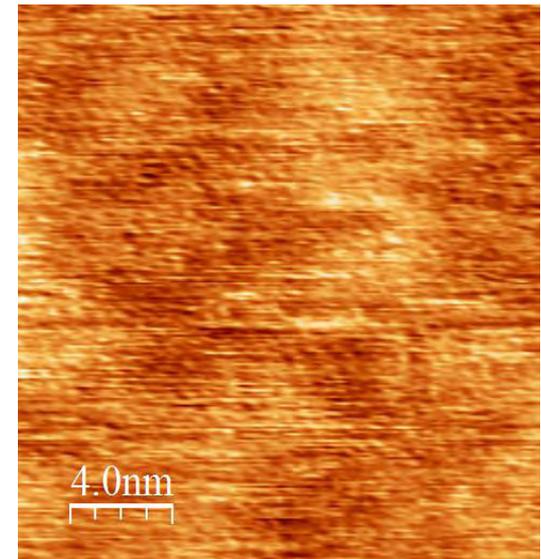
Calcit in äquilibrierter
 CaCO_3 Lösung



Calcit +
 10^{-7} M NaNO_3



Calcite +
 10^{-3} M NaNO_3



Work packages:

A) Dreiwertige Actinide: Pu, Am, Cm (Einbau in und Wechselwirkung mit Phosphaten, Carbonaten, Eisen(hydr)oxiden).

B) Vierwertige Actinide: Th, U, Np, Pu (Einbau in und Wechselwirkung mit Silicaten, Sulfaten, Carbonaten, Sulfiden, Eisen(hydr)oxiden, LDH-Phasen, Phosphaten).

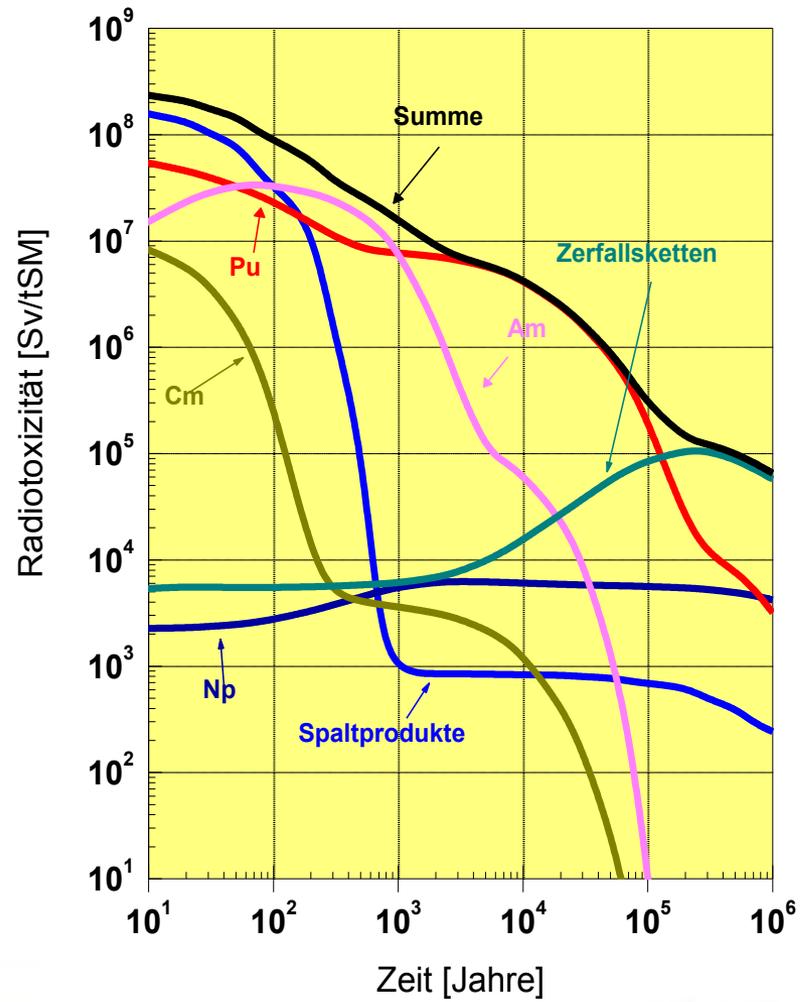
C) Radium und Spaltprodukte: Ra, Se(IV), Se(VI), Tc (Einbau in und Wechselwirkung mit Sulfaten, Sulfiden, LDH Phasen, Carbonaten).

Work packages:

A) Dreiwertige Actinide: Pu, Am, Cm (Einbau in und Wechselwirkung mit Phosphaten, Carbonaten, Eisen(hydr)oxiden).

B) Vierwertige Actinide: Th, U, Np, Pu (Einbau in und Wechselwirkung mit Silicaten, Sulfaten, Carbonaten, Sulfiden, Eisen(hydr)oxiden, LDH-Phasen, Phosphaten).

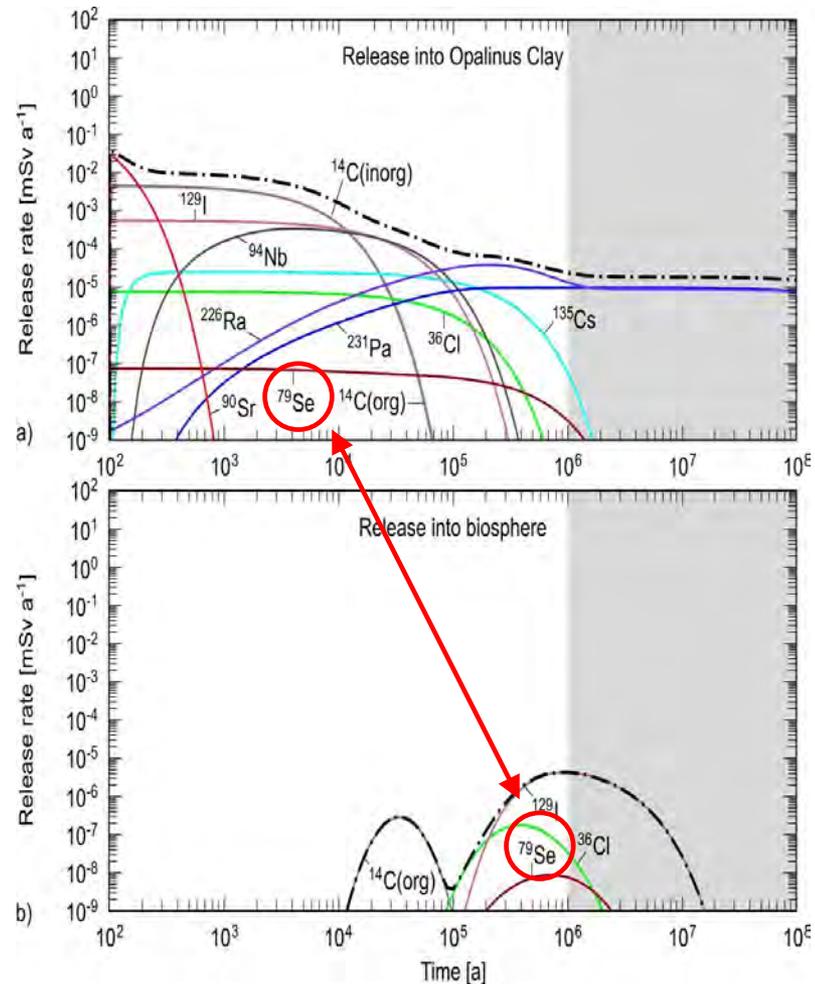
C) Radium und **Spaltprodukte**: Ra, **Se(IV)**, **Se(VI)**, Tc (Einbau in und Wechselwirkung mit Sulfaten, Sulfiden, LDH Phasen, Carbonaten).



Selen in ILW Endlagern

☐ ^{79}Se – Anteil im ILW und Freisetzung (zementierte Abfälle, Nahfeld).

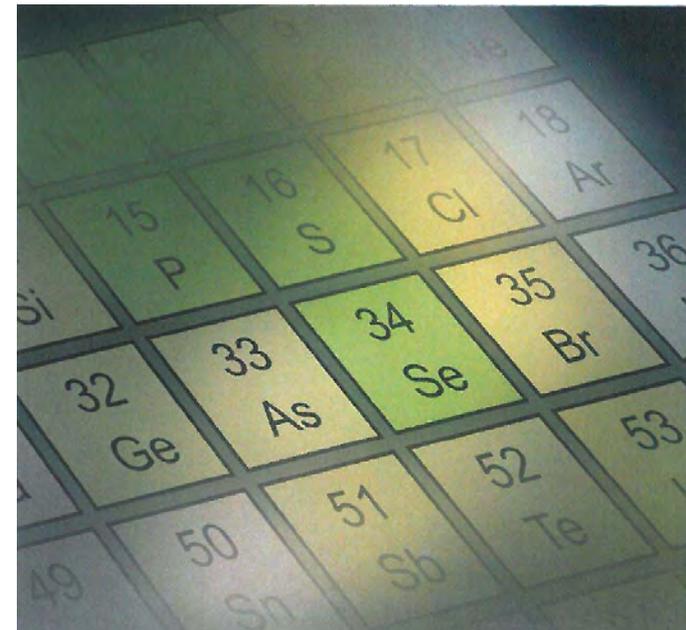
☐ ^{79}Se – schwache Rückhaltung im Bereich des Fernfeldes (OPA).



Einbau und Stabilität von des Radionuklids Selen in Eisensulfide und Eisenoxide

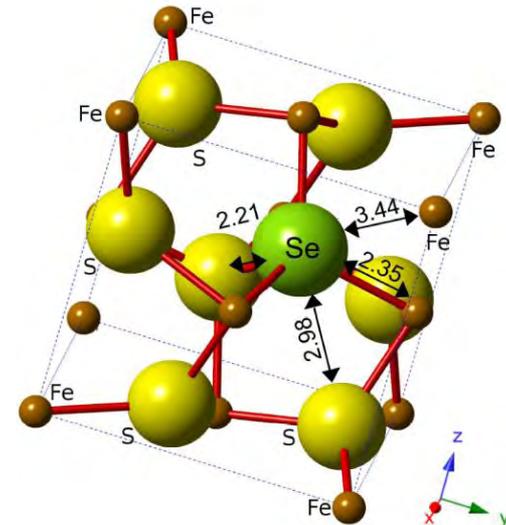
- **Spaltprodukt $^{79}\text{Selen}$**
 - Einfluss auf die Endlagersicherheit
 - **Lange Halbwertszeit (327.000 Jahre)**
 - **Hohe Mobilität in oxidierter Form**
 - Komplexes geochemisches Verhalten

- **Wechselwirkung mit Eisenmineralen**
 - Eisensulfide und –oxihydroxide sind sowohl als primäre als auch als sekundäre Mineralphasen in der näheren Umgebung von Endlagern zu erwarten



Wechselwirkung zwischen Selen und synthetisierten Eisensulfiden

- **Stand der Forschung**
 - Se ist in hohen Konzentrationen in vielen Sulfiden eingebaut (in Pyrit bis zu 760 ppm)
 - Pyrit ist das häufigste Eisensulfid in der Erdkruste mit bis zu 5 Gew.-% in endlager-relevanten geologischen Formationen
 - Struktureller Einbau von Se^{2-} in Pyrit und Mackinawit durch spontane Präzipitation bei hohen Übersättigungszuständen
 - Nicht-struktureller Einbau in Pyrit als Se^0 während Kristallwachstum bei leichter Übersättigung
- **Fragestellung**
 - Verhalten von strukturell und nicht-strukturell eingebautem Se unter variablen Eh/pH-Bedingungen
- **Vorgehensweise**
 - Synthetisierung Se-dotierter Pyrite
 - Spektroskopische Charakterisierung der Se-Speziation in Pyrit und thermodynamische Modellierung der Speziesumwandlungen
 - Vergleich mit natürlichen und synthetisierten Pyriten



EXAFS-Ergebnisse:
Struktur von Se-dotiertem Pyrit.

Work packages:

A) Dreiwertige Actinide: Pu, Am, Cm (Einbau in und Wechselwirkung mit Phosphaten, Carbonaten, Eisen(hydr)oxiden).

B) Vierwertige Actinide: Th, U, Np, Pu (Einbau in und Wechselwirkung mit Silicaten, Sulfaten, Carbonaten, Sulfiden, Eisen(hydr)oxiden, LDH-Phasen, Phosphaten).

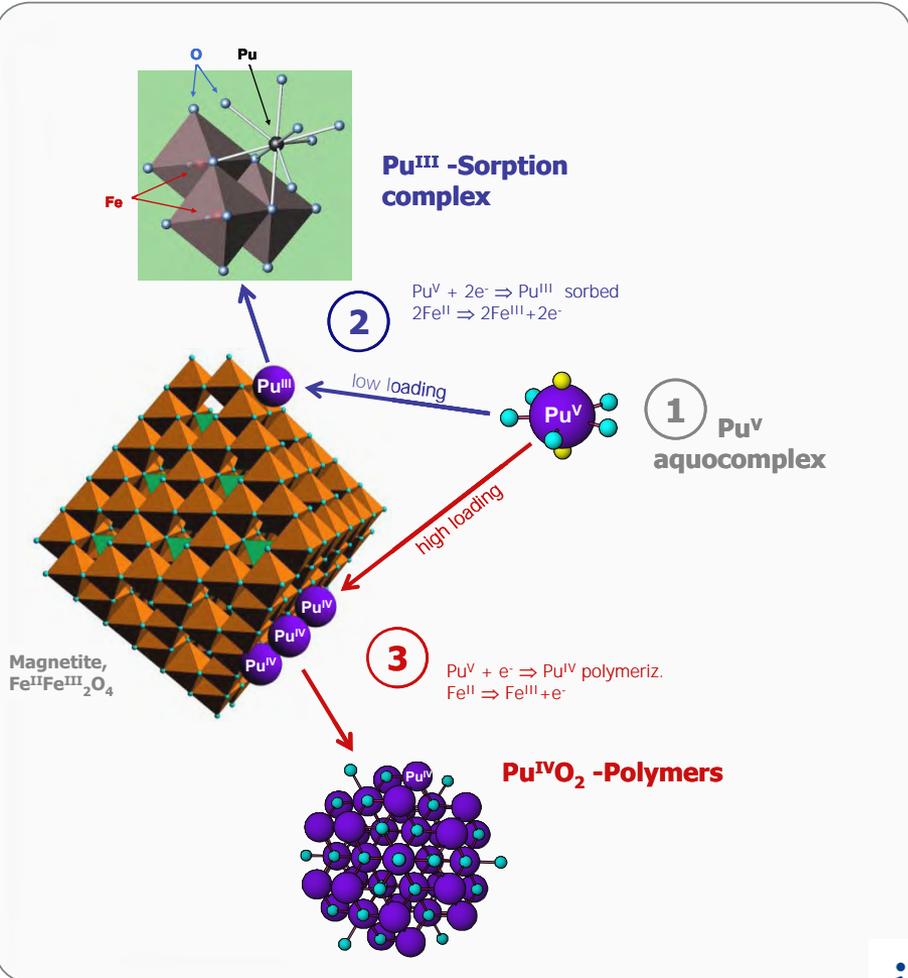
C) Radium und Spaltprodukte: Ra, Se(IV), Se(VI), Tc (Einbau in und Wechselwirkung mit Sulfaten, Sulfiden, LDH Phasen, Carbonaten).

Work packages:

A) Dreiwertige Actinide: Pu, Am, Cm (Einbau in und Wechselwirkung mit Phosphaten, Carbonaten, Eisen(hydr)oxiden).

B) Vierwertige Actinide: Th, U, Np, Pu (Einbau in und Wechselwirkung mit Silicaten, Sulfaten, Carbonaten, Sulfiden, Eisen(hydr)oxiden, LDH-Phasen, Phosphaten).

C) Radium und Spaltprodukte: Ra, Se(IV), Se(VI), Tc (Einbau in und Wechselwirkung mit Sulfaten, Sulfiden, LDH Phasen, Carbonaten).



Redoxchemie in anoxischer Umgebung eines nuklearen Endlagers :

Plutonium Reduktion in Gegenwart von korrodierenden Stahloberflächen

Ist der strukturelle Einbau ebenfalls möglich?

R. Kirsch et al., *Environ. Sci. Technol.* **45**, 7267–7274 (2011)

Plutonium(III) Einbau in Magnetit?

1) Kopräzipitation von Pu(III) und Magnetit:

- Fe(II)/(III) Lösung (1.2 M, pH 1.5) plus Pu; Pu-Beladung 1000 ppm und 3500ppm.
- Zugegebenes Pu(V) - sofortige Reduktion zu Pu(III).

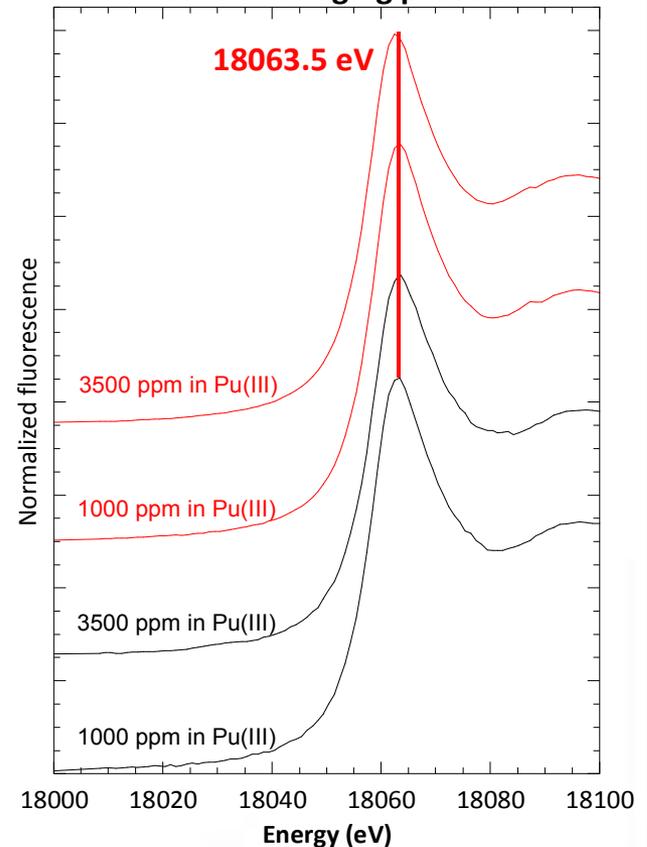
2) Alterung von Pu(III) Magnetit:

- Zugabe von 0.45 M Fe(II) zur Mineralsuspension
- 1 Woche rühren unter anoxischen Bedingungen

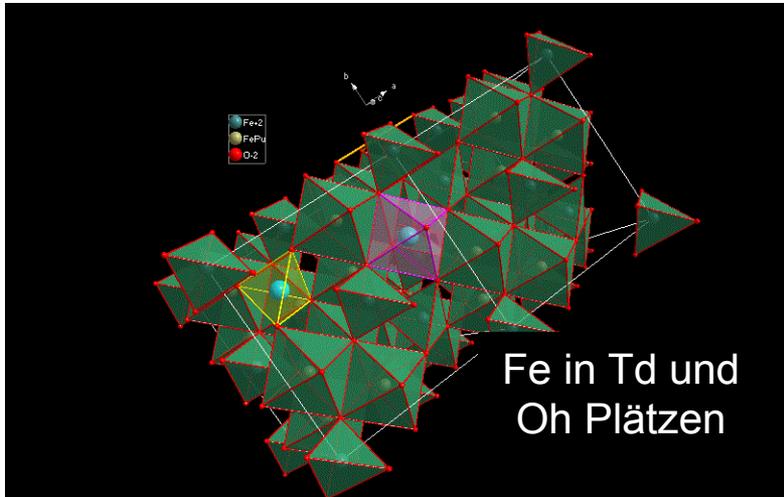
3) XAS Analyse bei 15 K:

- XANES zeigt charakteristische Linien von Pu(III) (18 063.5 eV)
- Kein Nachweis von Pu^{IV}O₂
- EXAFS

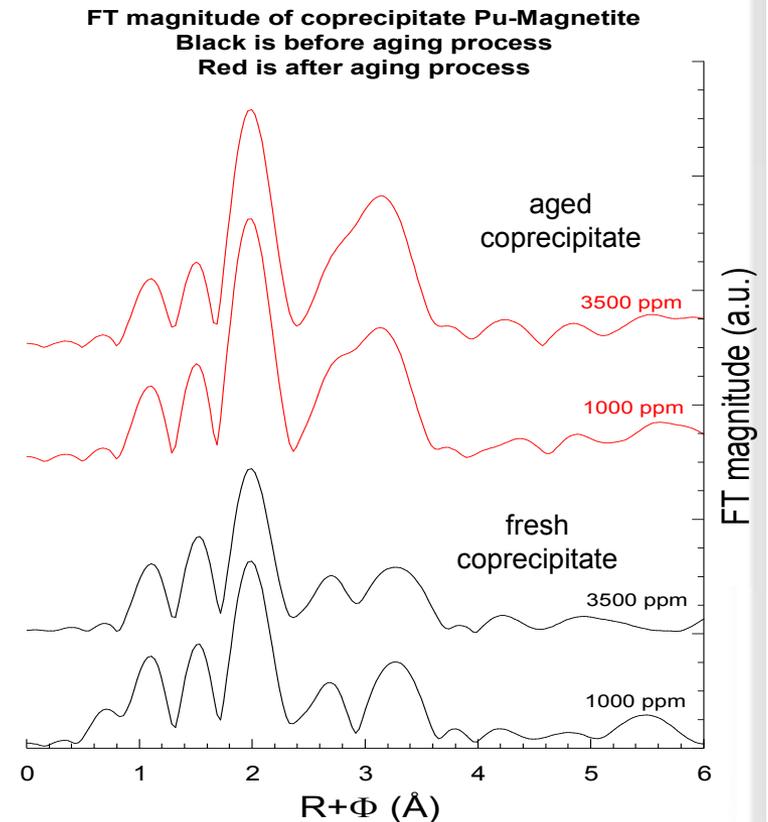
XANES of coprecipitate Pu-Magnetite
Black is before aging process
Red is after aging process



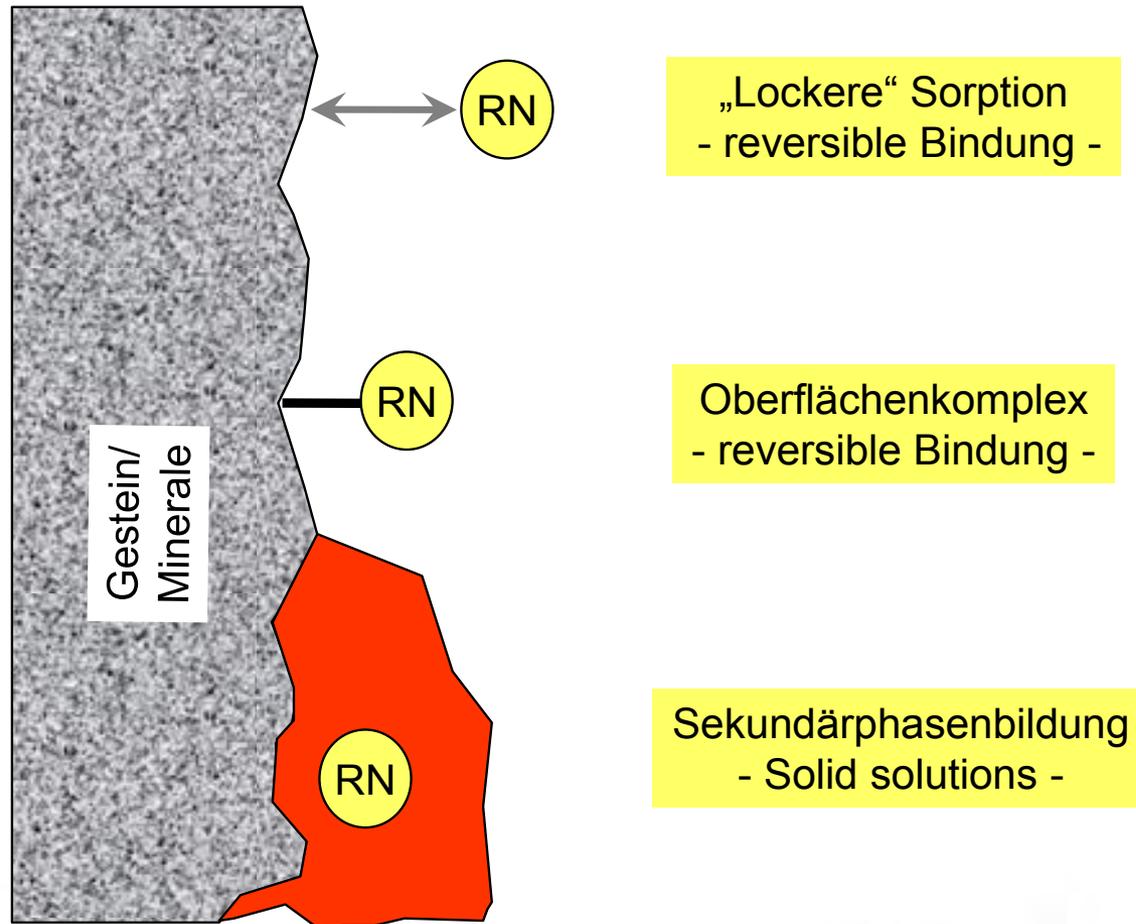
Plutonium(III) Einbau in Magnetit!



- Ungeordnete Pu-O Koordinationsschale KZ \approx 10
- 7-8 Fe Nachbarn
- Nach Alterung ist die Koordination sehr ähnlich der des Fe an den Oh Plätzen im Magnetit
- Pu(III) ist im Magnetit strukturell eingebaut
- Hinweis auf einen effektiven Rückhalte Mechanismus!



Radionuklidrückhaltung durch Sorption



Danksagung 1

Johannes Bauer, Dirk Bosbach, Felix Brand, Hilde Curtius, Thomas Dumas, Rosa Galán, Sascha Hofmann, Thomas Neumann, Manolo Prieto, Henar Rojo, Andreas Scheinost, Moritz Schmidt, Jan Tits, Viktor Vinograd, Björn Winkler

Danksagung 2

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium
für Bildung
und Forschung

Transmutationsrelevante
Transmutationsrelevante kernphysikalische Untersuchungen
Einsatz moderner technologischer
langlebiger Aktinide
und numerischer Methoden



Status des Verbundprojekts 02NUK13

Arnd Junghans

Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

10. Projektstatusgespräch

PTKA-WTE

Karlsruhe

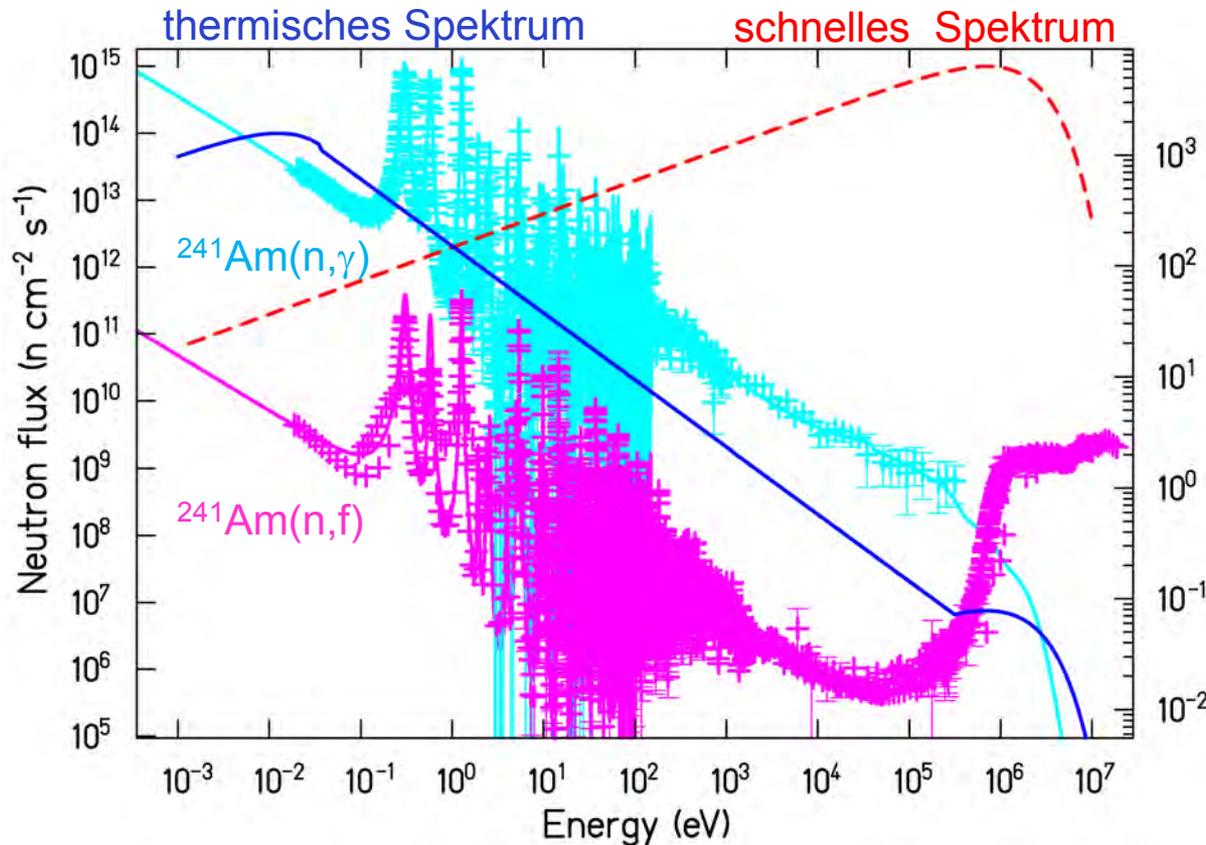
13.11.-14.11.2012



www.hzdr.de/TRAKULA



Neutroneneinfang – Neutroneninduzierte Spaltung



Im thermischen Spektrum ist der Neutroneneinfang gegenüber der Spaltung bevorzugt.

Im schnellen Spektrum ist die Spaltung gegenüber dem Neutroneneinfang bevorzugt.

$^{241}\text{Am}(n,\gamma)$ JEFF-3.1 Evaluation; Exp.(EXFOR): M. Jandel (2008), G. Vanpraet (1985), N. Shinohara (1997),...

$^{241}\text{Am}(n,f)$ JEFF-3.1 Evaluation, Exp.(EXFOR): B. Jurado (2007), J.W.T. Dabbs (1983), H.H. Knitter (1979), P.E. Vorotnikov (1986), ...

Transmutationsrelevante Kerndaten

Table 32. Summary of Highest Priority Target Accuracies for Fast Reactors

		Energy Range	Current Accuracy (%)	Target Accuracy (%)
U238	σ_{inel}	6.07 \div 0.498 MeV	10 \div 20	2 \div 3
	σ_{capt}	24.8 \div 2.04 keV	3 \div 9	1.5 \div 2
Pu241	σ_{fiss}	1.35MeV \div 454 eV	8 \div 20	2 \div 3 (SFR,GFR, LFR) 5 \div 8 (ABTR, EFR)
Pu239	σ_{capt}	498 \div 2.04 keV	7 \div 15	4 \div 7
Pu240	σ_{fiss}	1.35 \div 0.498 MeV	6	1.5 \div 2
	ν	1.35 \div 0.498 MeV	4	1 \div 3
Pu242	σ_{fiss}	2.23 \div 0.498 MeV	19 \div 21	3 \div 5
Pu238	σ_{fiss}	1.35 \div 0.183 MeV	17	3 \div 5
Am242m	σ_{fiss}	1.35MeV \div 67.4keV	17	3 \div 4
Am241	σ_{fiss}	6.07 \div 2.23 MeV	12	3
Cm244	σ_{fiss}	1.35 \div 0.498 MeV	50	5
Cm245	σ_{fiss}	183 \div 67.4 keV	47	7
Fe56	σ_{inel}	2.23 \div 0.498 MeV	16 \div 25	3 \div 6
Na23	σ_{inel}	1.35 \div 0.498 MeV	28	4 \div 10
Pb206	σ_{inel}	2.23 \div 1.35 MeV	14	3
Pb207	σ_{inel}	1.35 \div 0.498 MeV	11	3
Si28	σ_{inel}	6.07 \div 1.35 MeV	14 \div 50	3 \div 6
	σ_{capt}	19.6 \div 6.07 MeV	53	6

→ Schnelles Neutronenspektrum

→ U,Pu + Minore Aktiniden
Konstruktionsmaterialien &
Kühlmittel

- neutroneninduzierte Spaltung
- Neutroneneinfang
- inelastische Neutronenstreuung

→ EURATOM FP7 Projects
ANDES, EUF RAT, ERINDA

<http://www.nea.fr/html/science/wpec/volume26/volume26.pdf>
and the NEA High Priority Request List





Förderschwerpunkt des BMBF

- Grundlagenforschung Energie 2020+
Bekanntmachung vom 27.05.2008
- **Arbeiten zur Verringerung der endzulagernden Abfallstoffe**
- **Verbundprojekte mit Universitäten**
- **Kompetenzerhalt**
- **Internationale Zusammenarbeit**

Verbundprojektpartner:



Klaus Eberhardt, *Univ. Mainz*
Roman Gernhäuser, *TU München*
Arnd Junghans, *HZDR Dresden*
Ralf Nolte, *PTB Braunschweig*
Peter Reiter, *Univ. Köln*
Kai Zuber, *TU Dresden*



Nachwuchsförderung

- 286 Personenmonate ab dem 01.10.2009
(ca. 8 Nachwuchswissenschaftler bis 30.09.2012)
- Bereich: Kernphysik, Kernchemie
- Internationale Kooperation:
JRC-IRMM Geel
(Toni Kögler, Ralph Massarczyk, Robert John)
ILL Grenoble
(Ralph Massarczyk, Robert John)



www.erinda.org

Proj. Coord. Arnd Junghans





Graduiertenseminare zum Kompetenzerhalt in der nuklearen Sicherheits- und Strahlenforschung

- 1) Experimental systems and methods for transmutation research
PTB Braunschweig 04.10.-06.10.2010 (30 Teilnehmer)
- 2) Theoretical fundamentals for nuclear processes in heavy nuclei,
Universität Köln 14.03.-16.03.2011 (28 Teilnehmer)
- 3) SSRDM Summer school for Radiation Detection & Measurements
TU München, UC Berkeley, Univ. Tokyo, MPI Physik
(14 TRAKULA Teilnehmer)
- 4) Radiochemistry of the actinides
Universität Mainz 21.05.-23.05.2012(14 Teilnehmer)
- 5) WE Heraeus-Seminar
„Nuclear Physics Data for the transmutation of Nuclear Waste“
25.02.- 27.02.2013 Bad Honnef

Themengebiete (Arbeitsprogramme)

- 1) Herstellung und experimentelle Nutzung schneller Neutronen zum Studium von transmutationsrelevanten Kernreaktionen
- 2) Spektroskopie von Kern-Gammastrahlung und Entwicklung von hochauflösenden Detektoren zum präzisen Nachweis radioaktiver Reaktionsprodukte.
- 3) Herstellung und Nutzung von homogenen, dünnen Aktinidentargets zur Messung der neutroneninduzierten Spaltung
- 4) Graduiertenseminare zum Kompetenzerhalt in der nuklearen Sicherheit und Strahlenforschung



Herstellung und Nutzung schneller Neutronen

- 1) Messung von neutroneninduzierter Spaltung $^{235,238}\text{U} + ^{239,242}\text{Pu}$,
inelastischer Streuung totalen Neutronenquerschnitten
Roland Beyer, Toni Kögler, Dr. Zoltan Elekes, HZDR
PTB: Effektivitätsbestimmung und Kalibration
- 2) Messung langlebiger Alphaaktivität im Untergrundlabor „Felsenkeller“
Felix Krüger, TUD, A. Vascon, Univ. Mainz
- 3) Nachweis zeitkorrelierter assoziierter Teilchen als
Neutronenflussstandard
Dr. Martin Erhard, PTB
- 4) Beschleunigermassenspektrometrie langlebiger Radionuklide
Karin Hain, TU München

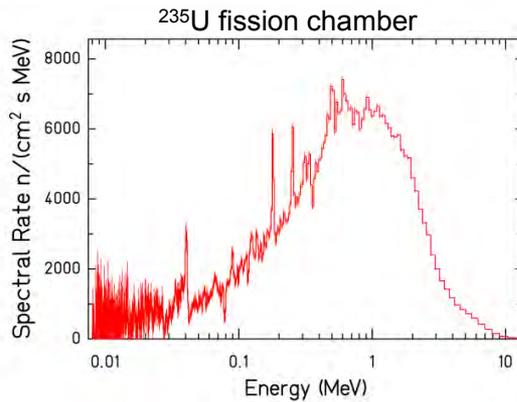
Messungen am HZDR

- Inelastische Neutronenstreuung an Fe und Na
- Totale Wirkungsquerschnitte Ta, Au
- Neutroneninduzierte Spaltung ^{242}Pu

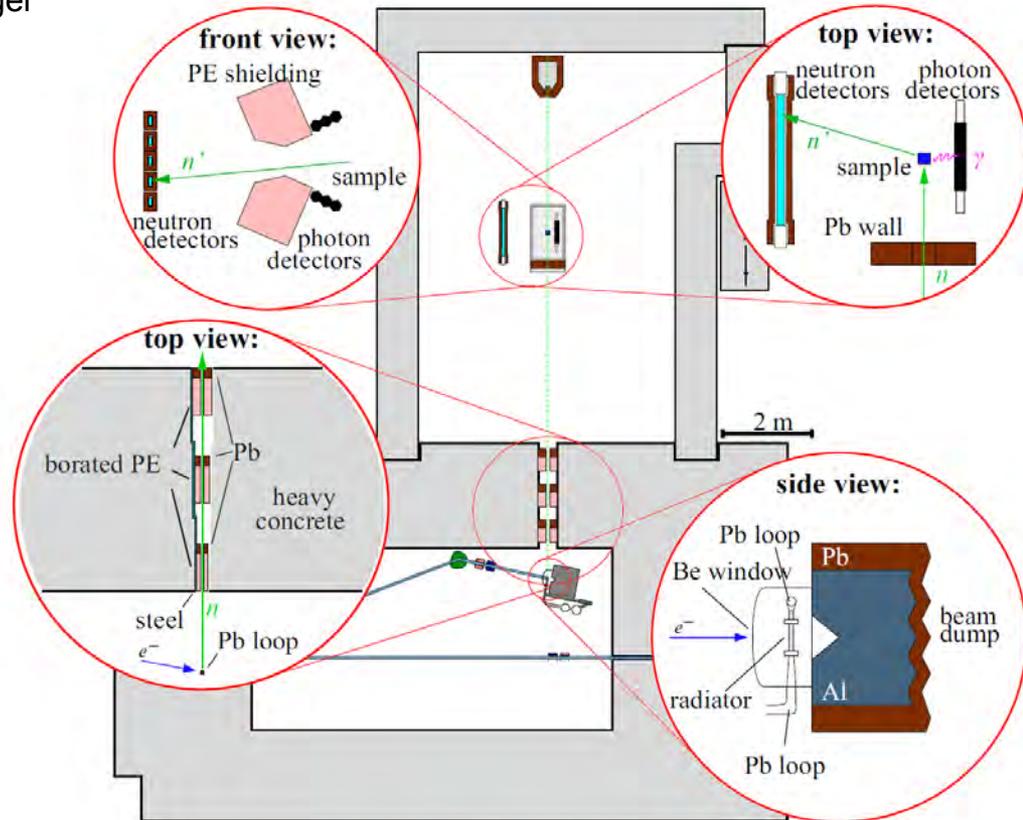
Photoneutronenquelle nELBE

Weltweit einzige schnelle Neutronenquelle
an einem supraleitenden Beschleuniger

Im Aufbau:
LaBr₃
Detektor-Array



Characteristic parameters:	
• repetition rate:	101 or 202 kHz
• flight path:	5 - 11 m
• source strength:	ca. $1.6 \cdot 10^{11}$ n/s
• intensity @ target:	ca. $2.5 \cdot 10^4$ n/cm ² s
• energy range:	10 keV - 10 MeV
• energy resolution:	< 1 %



*Floor plan of the new nELBE neutron source
and low scattering experimental hall.*

The nELBE Neutron Time of Flight Facility
A. R. Junghans, et al., *J. Korean Phys. Soc.* **59**, 1593-1596 (2011)

nELBE am Zentrum für Hochleistungsstrahlenquellen



Flüssigbleikreislauf als
Photoneutronenquelle



Flugzeithalle: Länge 9 m, Breite, Höhe 6 m

Fertigstellung Elektronenstrahlführung:
Frühjahr 2013

Neutron total cross sections ^{197}Au , $^{\text{nat}}\text{Ta}$

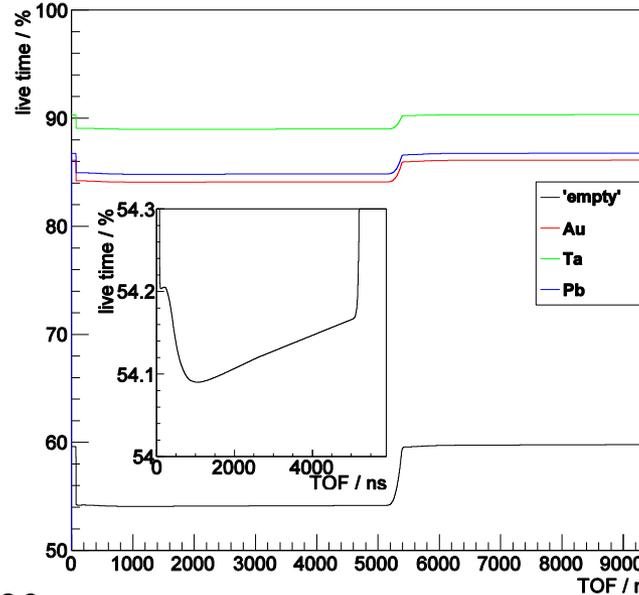
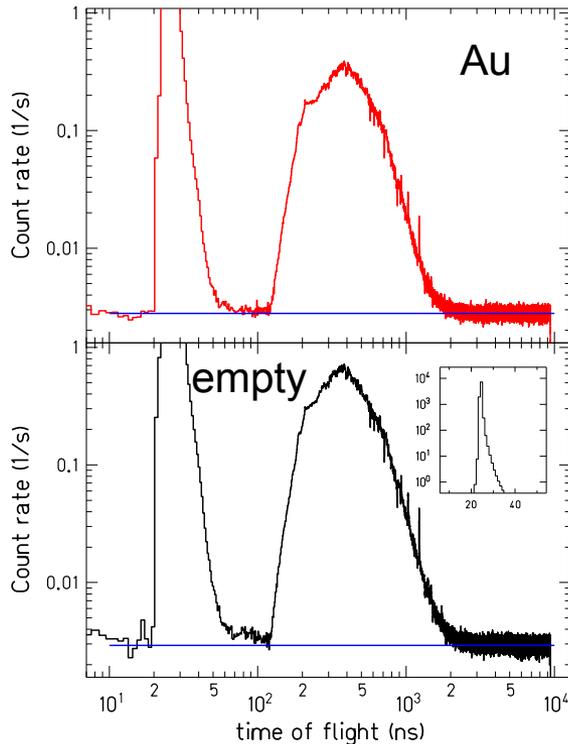
- ^{197}Au activation standard. → Neutron total cross section 5 – 200 keV on [NEA High Priority Request List](#). Overlapping measurement from 200 keV – 2.5 MeV recommended
- $^{\text{nat}}\text{Ta}$ fast neutron cross section evaluation*
Total neutron cross section 50 keV – 10 MeV measurement recommended.

Transmission experiment at nELBE in Aug. 2011

$$T = \frac{R_{in}}{R_{out}} = \exp(-nl\sigma_{tot})$$

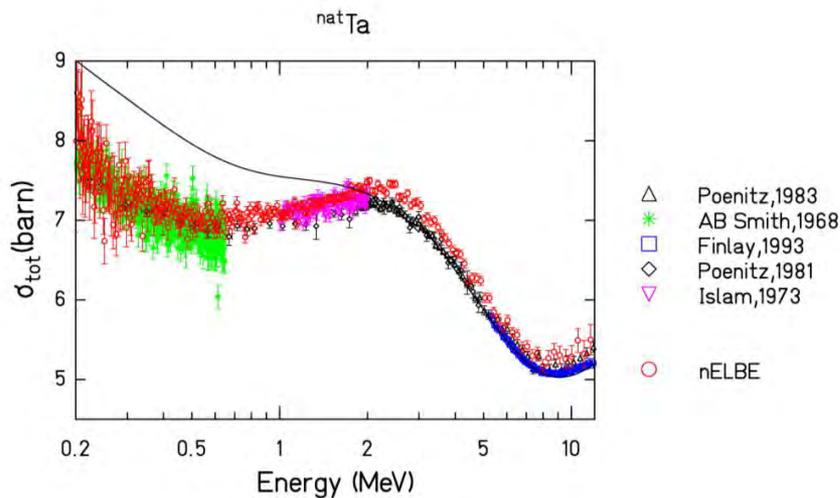
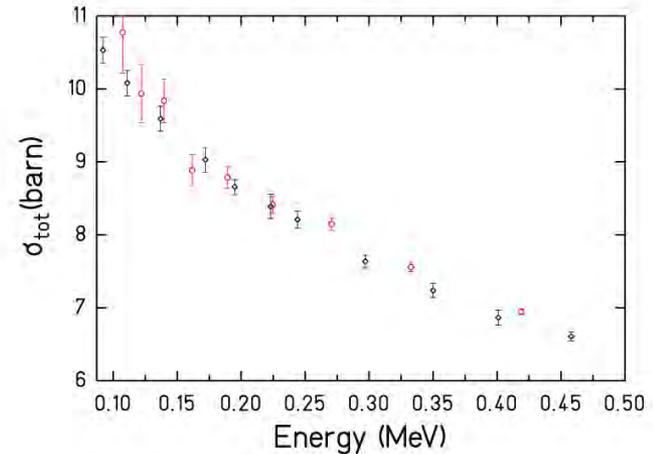
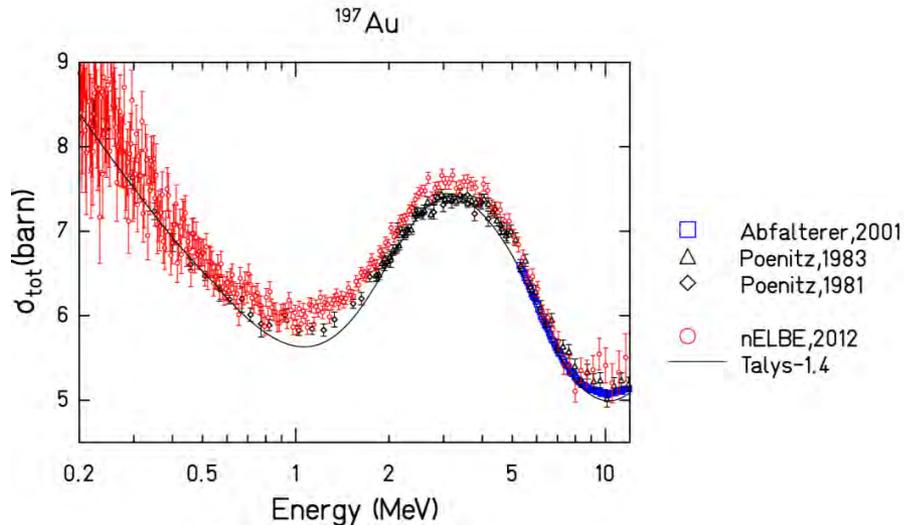
dead time measured per event

→ time of flight dependent dead time correction



* A. B. Smith. *Ann. Nucl. Ene.* 32 (2005) 1926

Neutron total cross sections ^{197}Au , ^{181}Ta



nELBE Transmissionsmessungen

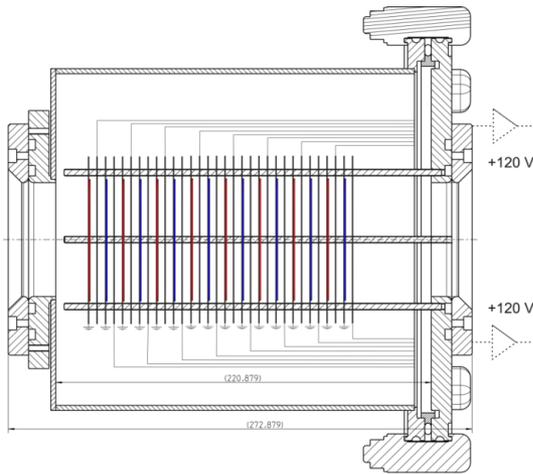
Energiebereich: 0.1 MeV – 10 MeV

Typische Auflösung: 0.6%

Statistische Unsicherheit: 1-2%

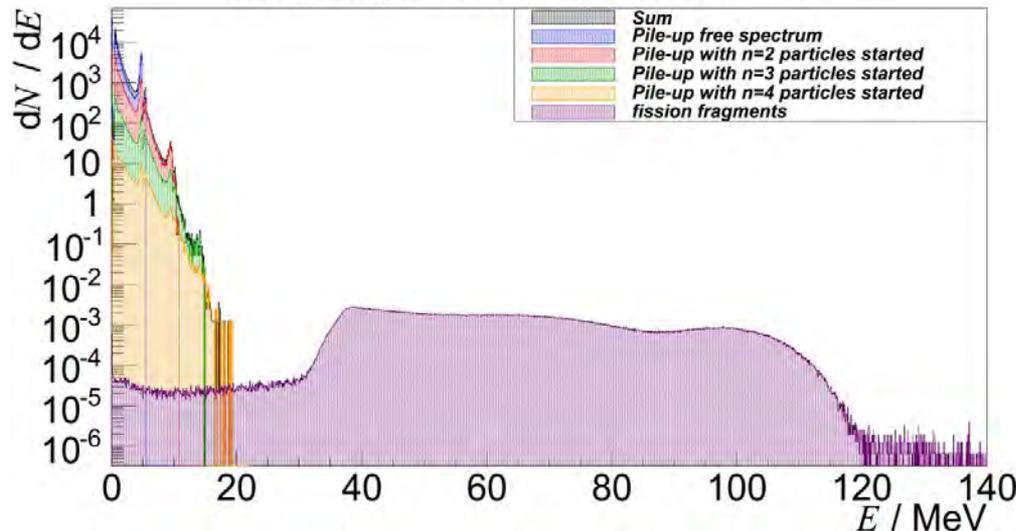
Relevanter Energiebereich für
Theoretische Interpretation abgedeckt.
Daten vergleichbar gut mit
Los Alamos und Argonne Experimenten

242Pu Fission experiment



- neutron induced cross section of ^{242}Pu by time-of-flight measurement relative to ^{235}U
- Fast Parallel Plate Fission Ionisation chamber, digital data acquisition
- GEANT 4 Simulation for detector response
- Target production at Univ. Mainz
- Target handling + preparations Radiochemistry at HZDR

PuO2 || P10 || distance target-electrodes = 5 mm



total activity: 18 MBq
 75 mg on 8 deposits
 140-150 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$

TCAP: Time Correlated Associated Particle method

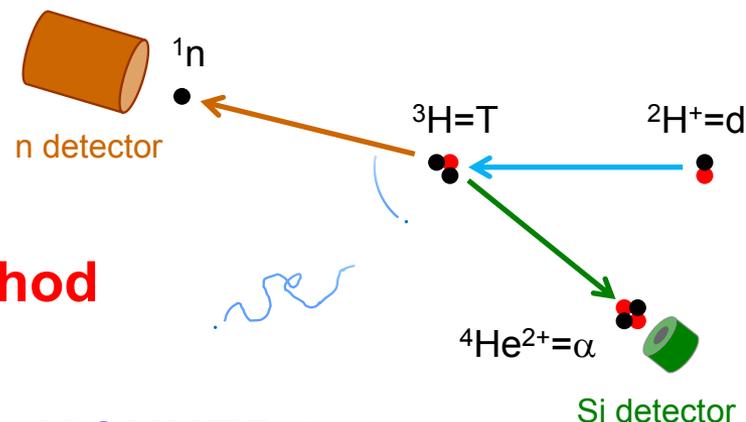
- n and charged particle detected in coincidence
- n fluence determined by counting charged particles

Fluence standard independent of

+ angular distribution and

+ reference cross sections

Simulation by **Monte Carlo method** requires **proper ion transport**



→ Adaption of the **MCNPX** patch **MCUNED** to the needs of the **TCAP** experiment:
collaboration with **P. Sauvan**



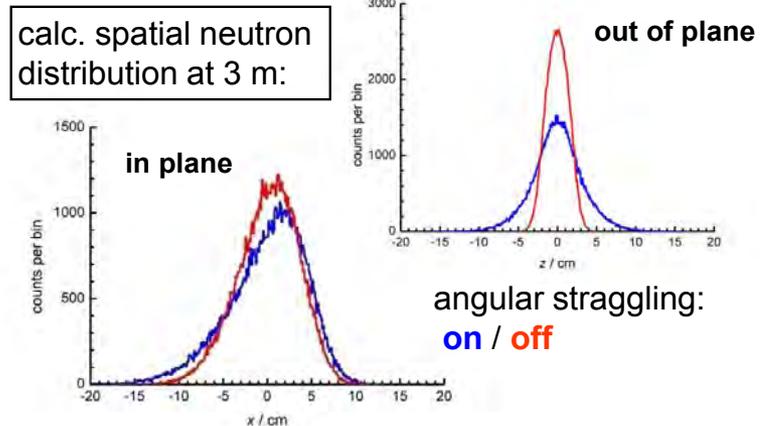
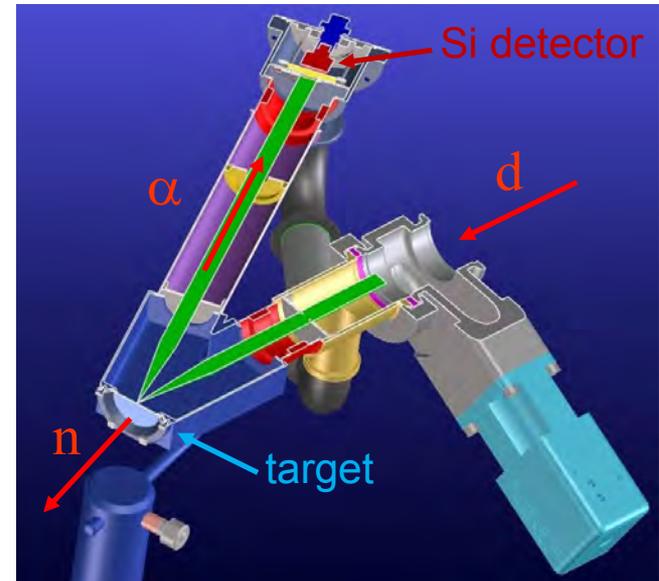
(Universidad Nacional de Educación a Distancia (UNED),
Madrid, Spain)

T(d,n)⁴He TCAP Experiment

- **Dedicated MC simulation**
 - Energy-dependence of kinematics (thick target!)
 - Angular straggling
- ⇒ $\Theta_\alpha = 150^\circ$ preferable to older 90° design
- Investigation of a D_2^+ beam
 - Design by PTB workshop completed
 - Most 'OEM' parts and Ti(T) target purchased
 - Construction to be finished before 06/2013

Future work:

- **Cold test: well-characterised ²⁴¹Am source needed!**
- **Operation with Ti(T) target 06/2013**



Messung langlebiger Alphaaktivität: Felix Krüger

- Half life of long lived alpha emitters
- $E_{\alpha} < 2.5 \text{ MeV}$
- $T_{1/2} > 10^{15}$ years or rare abundance

¹⁴⁷ Tb	¹⁴⁸ Tb	¹⁴⁹ Tb	¹⁵⁰ Tb	¹⁵¹ Tb	¹⁵² Tb	¹⁵³ Tb	¹⁵⁴ Tb	¹⁵⁵ Tb
¹⁴⁶ Gd	¹⁴⁷ Gd	¹⁴⁸ Gd	¹⁴⁹ Gd	¹⁵⁰ Gd	¹⁵¹ Gd	¹⁵² Gd	¹⁵³ Gd	¹⁵⁴ Gd
¹⁴⁵ Eu	¹⁴⁶ Eu	¹⁴⁷ Eu	¹⁴⁸ Eu	¹⁴⁹ Eu	¹⁵⁰ Eu	¹⁵¹ Eu	¹⁵² Eu	¹⁵³ Eu
¹⁴⁴ Sm	¹⁴⁵ Sm	¹⁴⁶ Sm	¹⁴⁷ Sm	¹⁴⁸ Sm	¹⁴⁹ Sm	¹⁵⁰ Sm	¹⁵¹ Sm	¹⁵² Sm
¹⁴³ Pm	¹⁴⁴ Pm	¹⁴⁵ Pm	¹⁴⁶ Pm	¹⁴⁷ Pm	¹⁴⁸ Pm	¹⁴⁹ Pm	¹⁵⁰ Pm	¹⁵¹ Pm
¹⁴² Nd	¹⁴³ Nd	¹⁴⁴ Nd	¹⁴⁵ Nd	¹⁴⁶ Nd	¹⁴⁷ Nd	¹⁴⁸ Nd	¹⁴⁹ Nd	¹⁵⁰ Nd

Isotope	E_{α} / keV	$T_{1/2} / \text{a}$	nat. abundance
¹⁴⁷ Sm	2310.46 (96)	$1.06 \cdot 10^{11}$ (2)	15.0 %
¹⁴⁴ Nd	1905.20 (171)	$2.29 \cdot 10^{15}$ (16)	23.8 %
¹⁴⁸ Sm	1986.08 (98)	$7 \cdot 10^{15}$ (3)	11.3 %
¹⁵² Gd	2203.30 (143)	$1.08 \cdot 10^{14}$ (8)	0.2 %

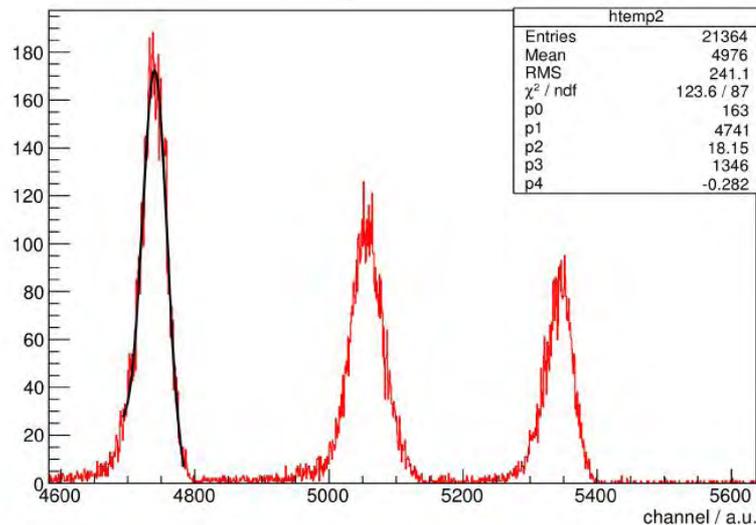
Doppel – Frisch-Gitter Ionisationskammer
aus aktivitätsarmen Materialien aufgebaut

Digitale Datenaufnahme
Pulsformanalyse erlaubt Abtrennung von
Untergrundsignalen

Energiekalibration mit Eichstrahler
Energieauflösung 0.9 % bei 5.1 MeV



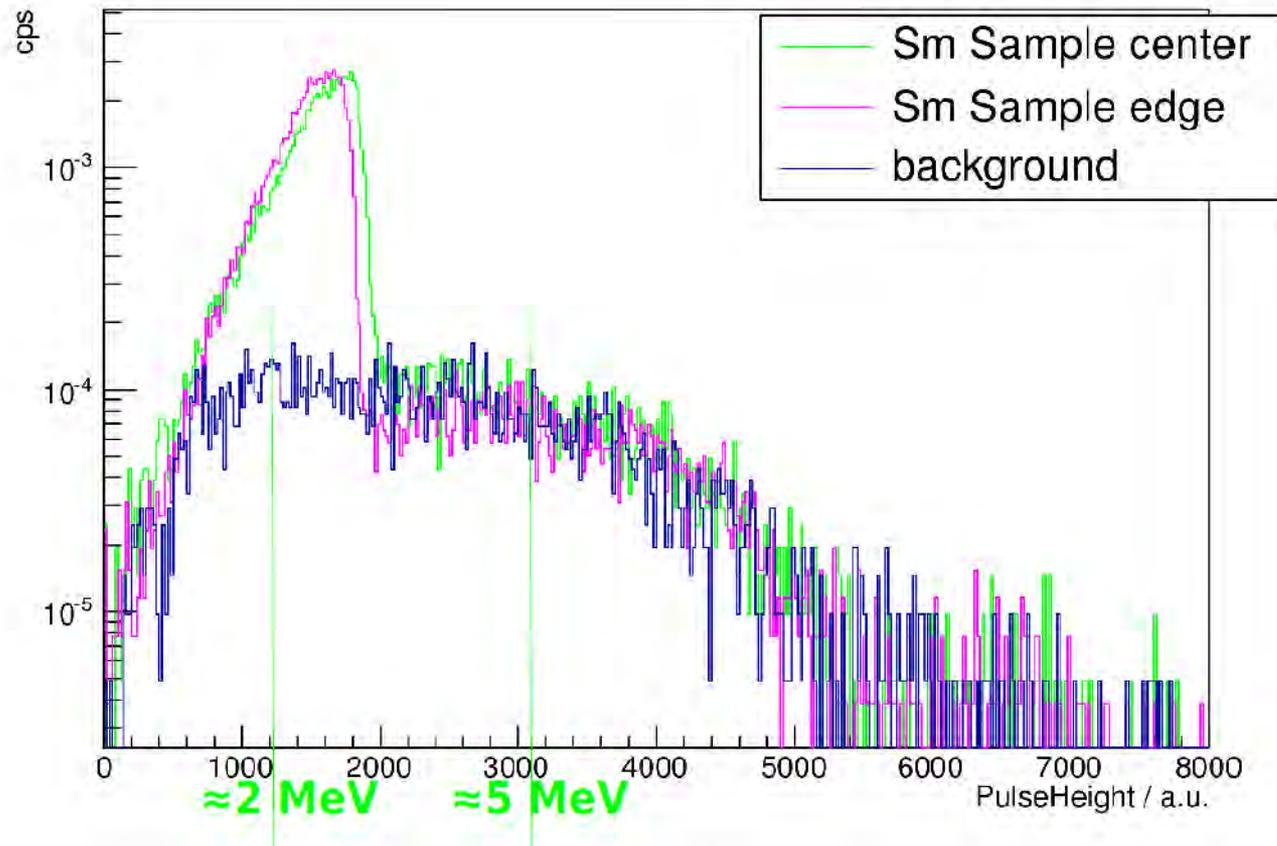
PulseHeight $U_A = 1400 \text{ V} / U_G = 900 \text{ V}$



Testmessungen mit ^{147}Sm Proben
(A. Vascon, Univ. Mainz)
Effizienz und Totzeitbestimmung
Untergrundmessungen



Pulsformanalyse von ^{147}Sm



Theoretische Energieauflösung erreicht.

Untergrundzählrate ist tolerabel.

Optimierung der Pulsformanalyse + Messung von Halbwertszeiten

Measurements of $^{93}\text{Zr}/\text{Zr}$



Lehrstuhl E12



Challenging background situation:

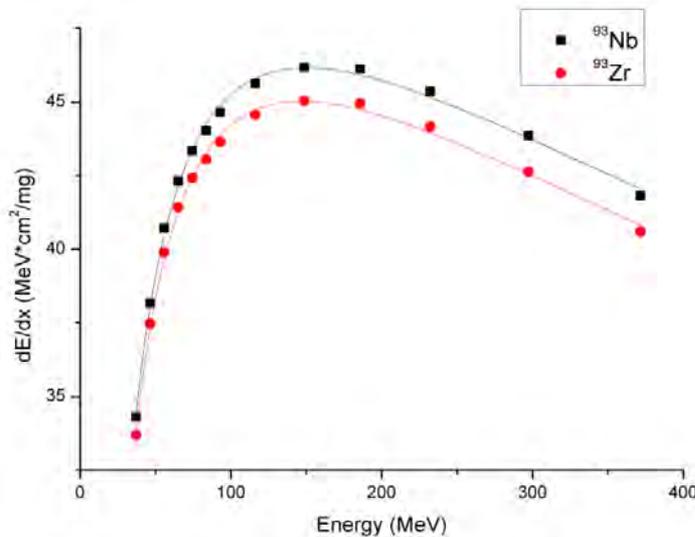
Use of passive absorber inserted in front of TOF path for separation of isobars

Nb 93 16.13 m 100	Nb 94 5.28 m $2 \cdot 10^4$ a	Nb 95 35.5 h 34.97 d
Zr 92 17.15	Zr 93 $1.5 \cdot 10^6$ a	Zr 94 17.38
Y 91 49.7 m 58.5 d	Y 92 3.54 h	Y 93 10.1 h

Use of 3 velocity filters for isotopic background suppression

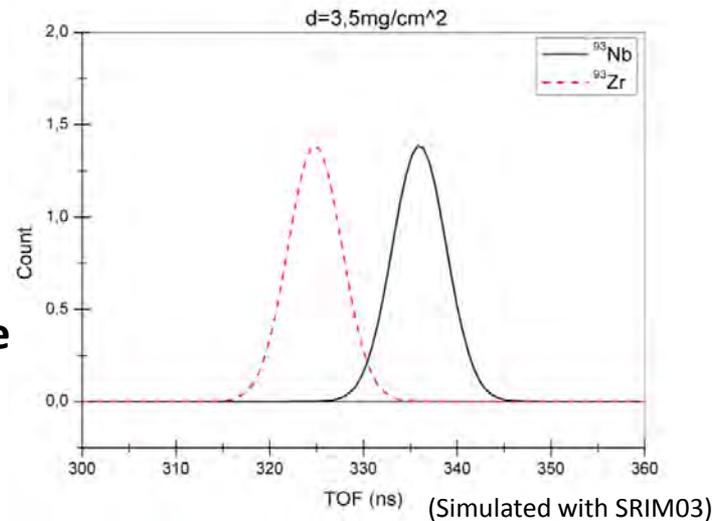


General idea: different energy loss in the passive absorber due to different atomic number



measure

 difference
 in TOF



First results



Lehrstuhl E12

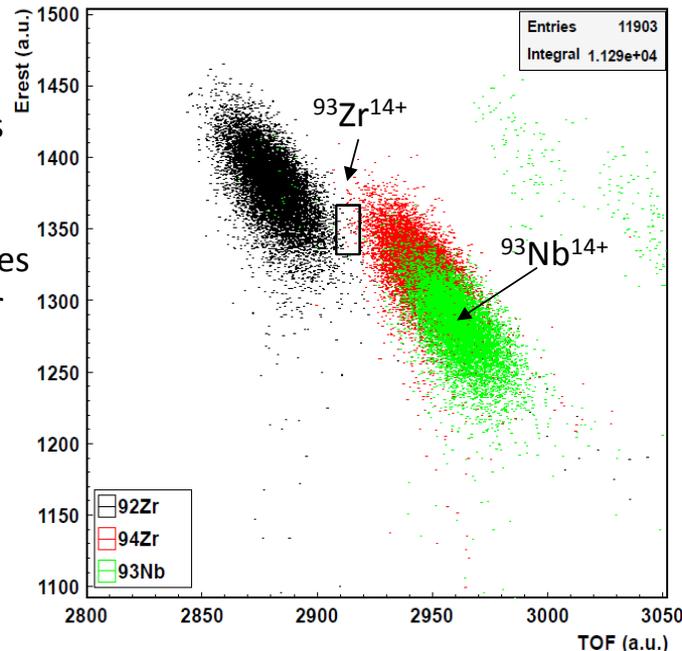


Last ^{93}Zr beamtime: optimal material and thickness of the passive absorber could be determined!

Passive absorber: 8 SiN foils
($\approx 2.4 \text{ mg/cm}^2$)

Blank measurement:

- Superimposed are spectra with settings on $m=92$, $m=94$ & $m=93$
- Black square indicates region of interest for ^{93}Zr events



→ Isobar ^{93}Nb very well separated from region of interest

→ An detection limit of ^{93}Zr was calculated:

$$^{93}\text{Zr}/\text{Zr} > 5.7 \cdot 10^{-9}$$

→ Additionally, 2 standard samples were prepared

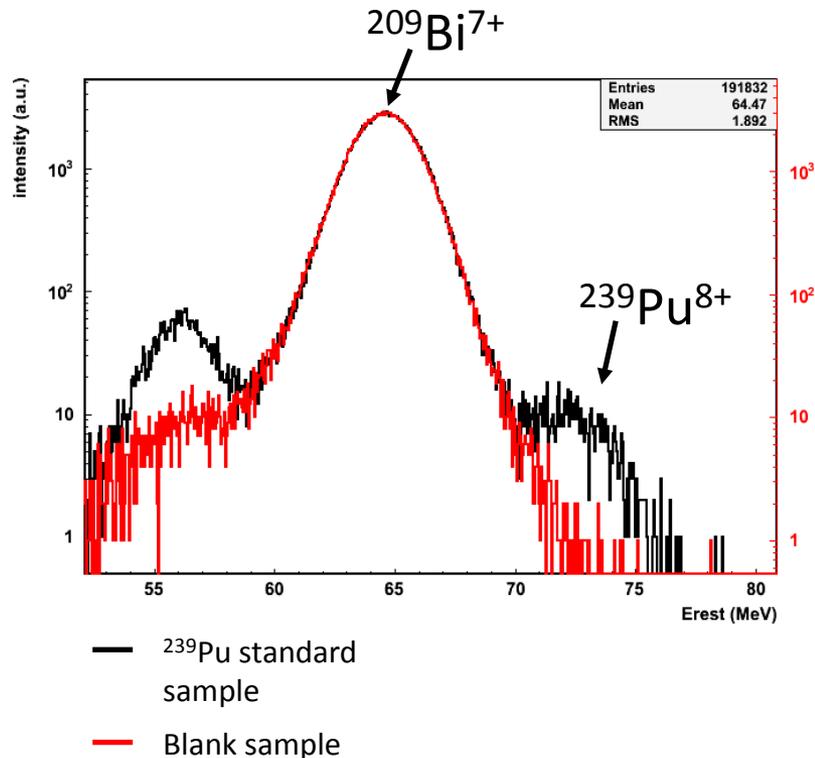
Detection of ^{239}Pu



Lehrstuhl E12



First test experiments:

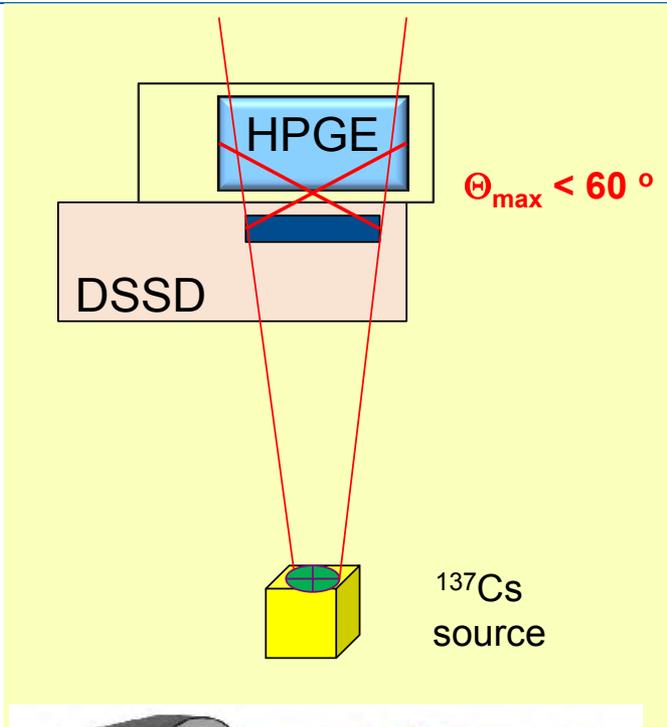


- An initially 0.6 mg Fe_2O_3 sample spiked with $7 \cdot 10^9$ atoms of ^{239}Pu has been measured with the Time-of-Flight setup.
- The spectra were calibrated with a macroscopic beam of ^{197}Au , ^{209}Bi and ^{238}U .
- ^{239}Pu events were clearly identified.
- $^{209}\text{Bi}^{7+}$ background can be avoided, if spectra are calibrated with $^{232}\text{Th}^{8+}$ instead.
- Currently, new standard samples are produced to determine the detection efficiency of the setup.

Spektroskopie von Kern-Gammastrahlung und Entwicklung von hochauflösenden Detektoren zum präzisen Nachweis radioaktiver Reaktionsprodukte

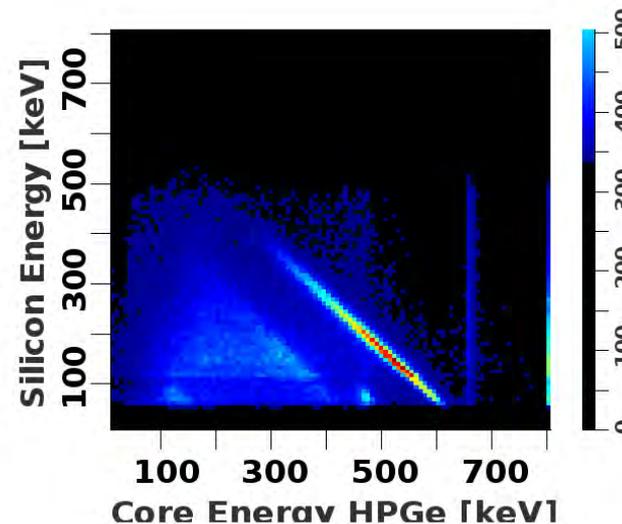
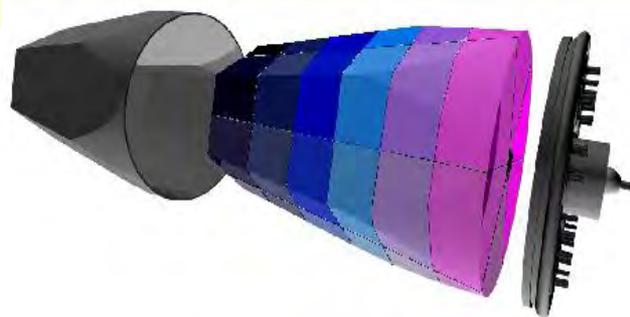
1. Experimentelle Tests der Compton Kamera
Max Winkel, TUM
2. Bildgebung mit einer Compton Kamera basierend auf einem hochsegmentierten HPGe und einem DSSD Detektor
Lars Levandowski, David Schneiders, Andreas Vogt, Univ. Köln
3. Untersuchungen zur Kerndipolstärke aus Gammaskpektren von (n,γ) and (γ, γ) Reaktionen
Ralph Massarczyk, Robert John, Georg Schramm HZDR

Setup of a new Compton Camera



Camera Setup

- Primary Detector: double-sided Si-strip DSSD
- Secondary Detector: HPGe 36fold segmented
- ^{137}Cs source of 3mm diameter
- Coincidence rate: ~ 5 Hz
- Energy anti-correlation line clearly visible;
- Good energy resolution in both detectors
- 60 keV trigger threshold



Online picture reconstruction:

cut on Compton scattering events

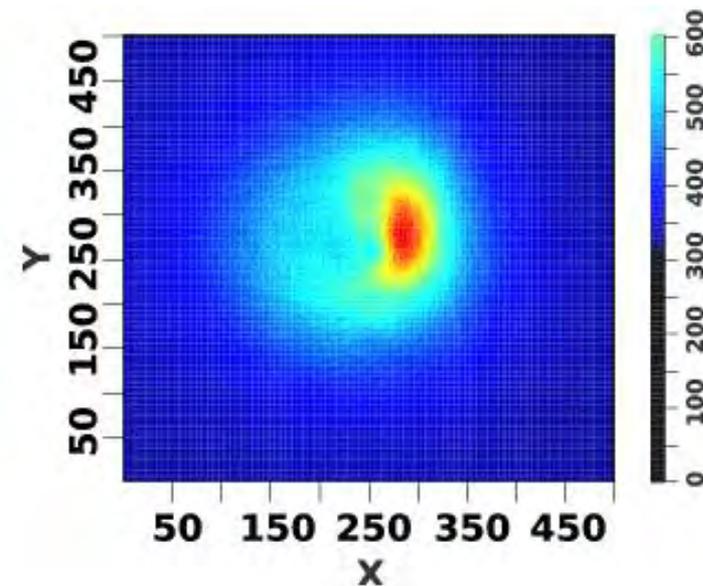
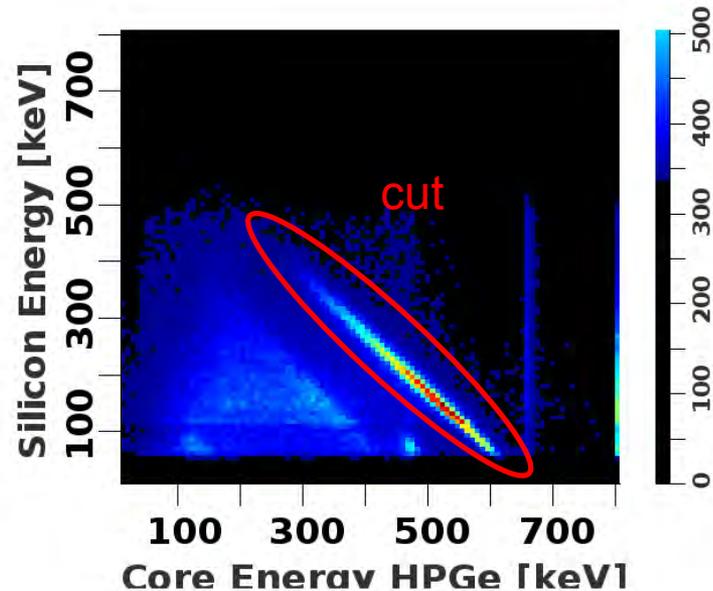
Scattering angle from energy deposit

determine Si position

calculate Ge hit position by pulse shape analysis

reconstruct image plane

work still ongoing



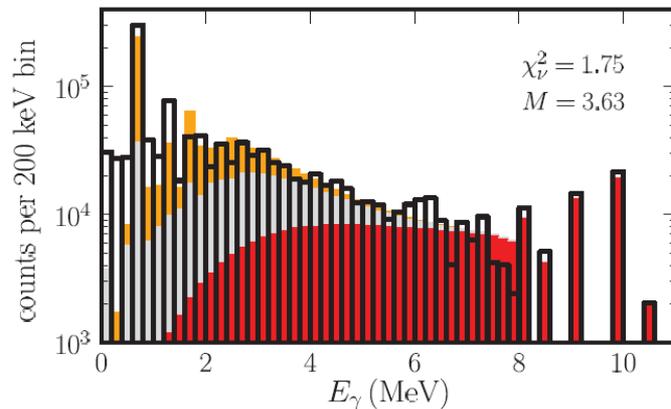
Combined analysis of Neutron capture and Photon scattering: $^{77}\text{Se}(n,\gamma)$ and $^{78}\text{Se}(\gamma,\gamma)$



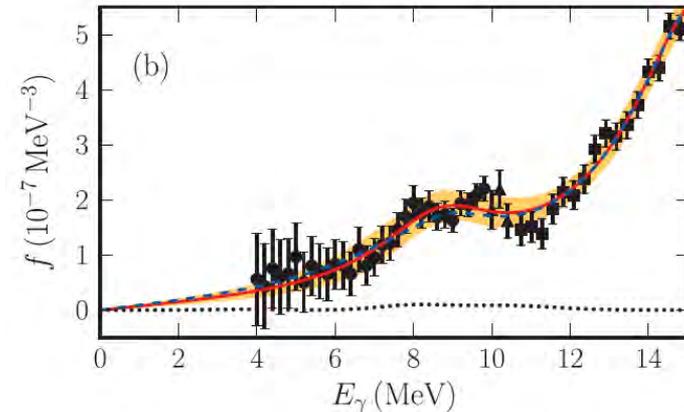
Spin distributions and level density are similar in both experiments. A consistent description of photon absorption and radiative decay using the same photon strength functions (TLO, A.R. Junghans et al., 2007) and level densities for the two reactions is found.

➔ **More reliable description of neutron capture processes.**

Georg Schramm, diploma in physics 2011, distinguished with the Ehrenfried Walter von Tschirnhaus certificate of Technical University Dresden



Experimental (black) and simulated spectra of primary (red), secondary (gray) and higher-order (yellow) γ rays following neutron capture. The strength function used was deduced from photon-scattering (right panel).



Experimental and iteratively simulated strength functions (solid lines). The present photon-scattering data obtained at ELBE (black circles) were combined with (γ,n) data (black squares).

Dipole strength in ^{78}Se below the neutron separation energy from a combined analysis of $^{77}\text{Se}(n,\gamma)$ and $^{78}\text{Se}(\gamma,\gamma')$ experiments

G. Schramm, R. Massarczyk et al., Phys. Rev. C 85 014311 (2012)





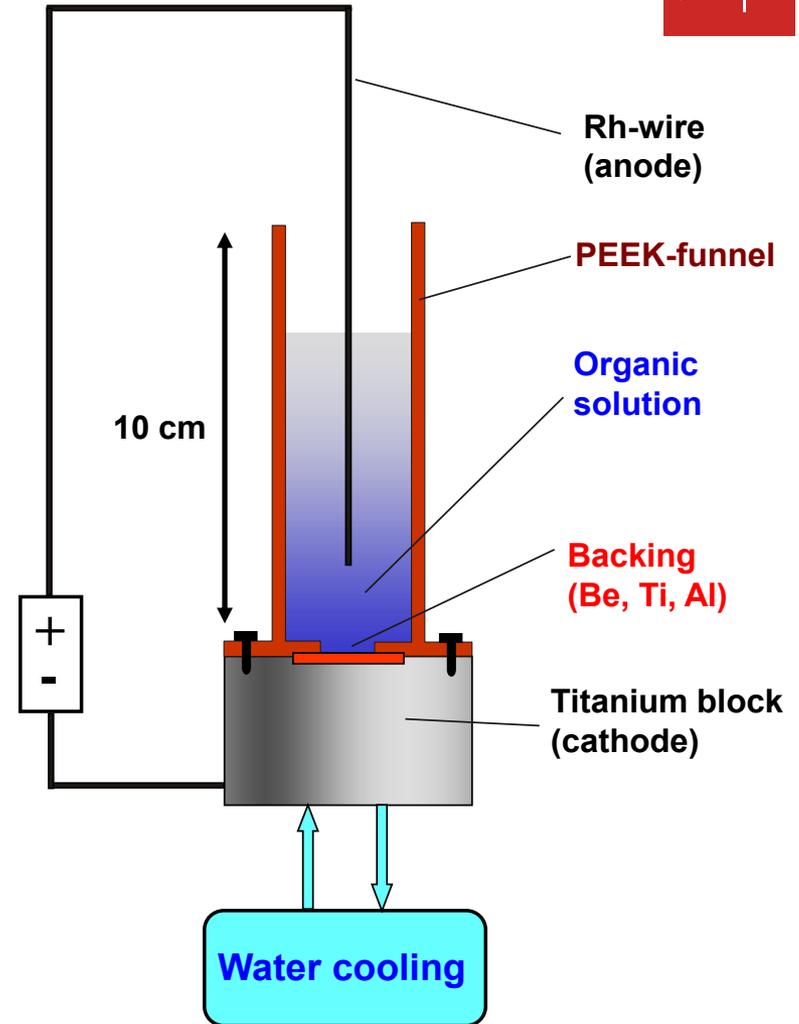
Herstellung und Nutzung von homogenen, dünnen Aktinidentargets zur Messung der neutroneninduzierten Spaltung

1. Herstellung von großflächigen Lanthaniden und Aktinidentargets durch Elektrodeposition
Alessio Vascon, Verena Nagel,
Johannes Gutenberg Universität , Mainz

Production and use of thin actinide targets

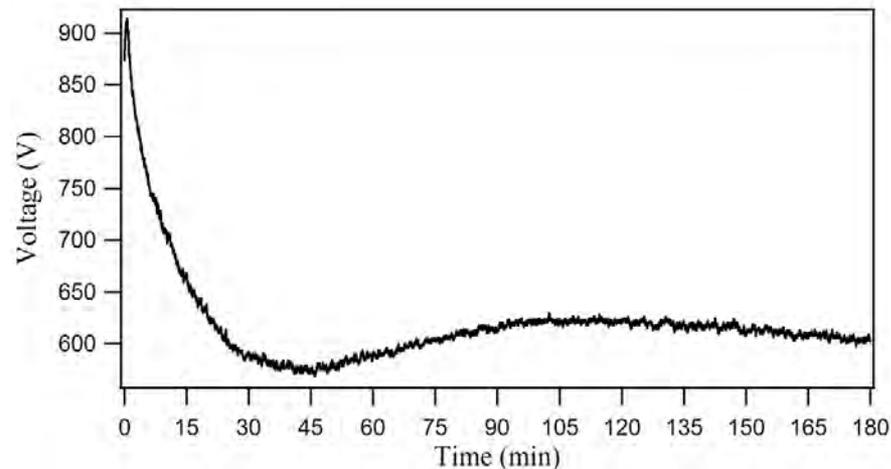
- Deposition from organic media as a molecule (nitrate \Rightarrow oxide)
- Solvent: isopropanol or isobutanol
- Deposition time: 0.5 h – 14 h
- Current density: mA/cm²
- Voltage: 100 V - 1200 V
- Chemical purification prior to deposition possible
- Recovery and chemical purification of used target material
- Small and simple set-up
- Components easy to replace in order to avoid cross-contamination

Deposition yield: up to 90%
Target thickness: mg/cm² possible



Investigation of fundamental aspects of molecular plating

- electrochemistry of constant current density molecular plating



- analytical description of molecular plating process

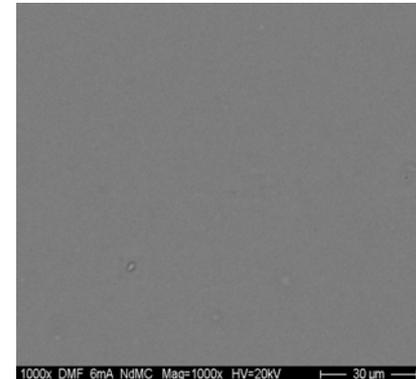
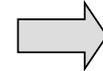
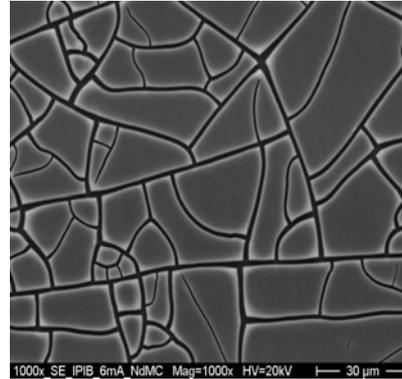
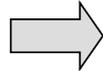
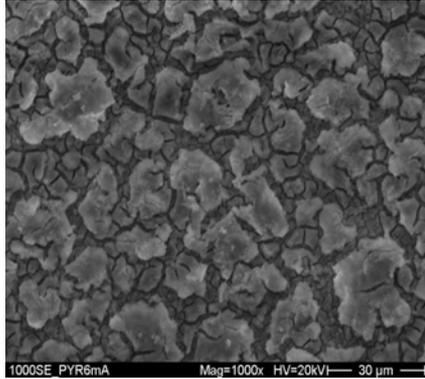
$$V = j \cdot l \cdot 10^3 \sum_i \frac{1}{\nu_i \cdot c_i \cdot \Lambda_i}$$

A. Vascon et al., Nucl. Instrum. Meth. A 696 (2012) 180-191

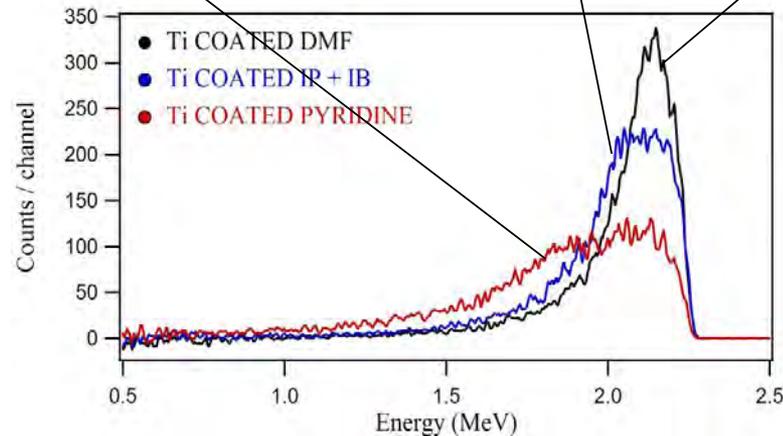
A. Vascon et al., Nucl. Instrum. Meth. A 655 (2011) 72-79.

Quality improvement of deposited layers

- production of smooth crack-free Sm layers



- characterizations investigating improved layer quality

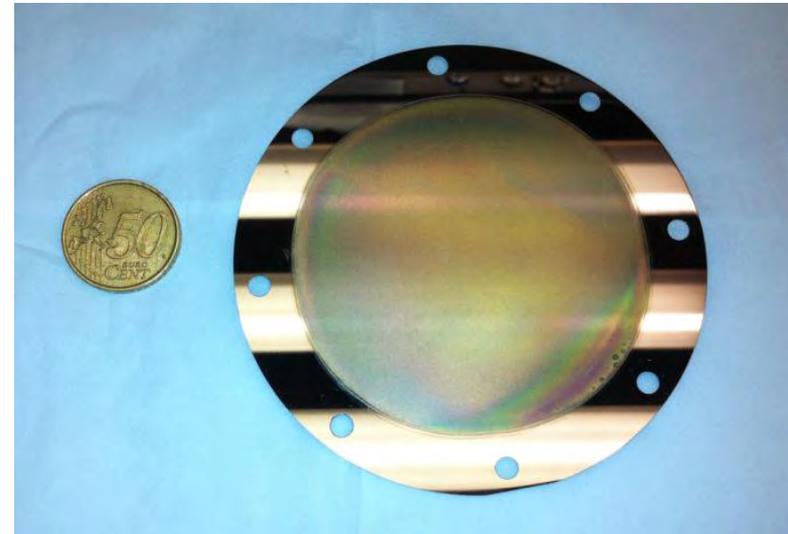
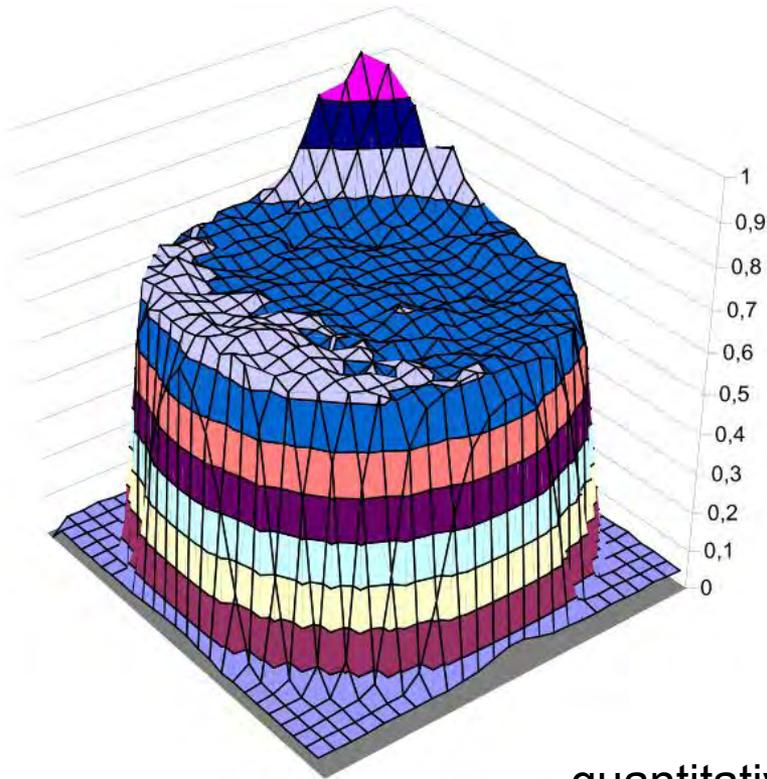


A. Vascon et al., Nucl. Instrum. Meth. A (2012) submitted

A. Vascon et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. (2012) submitted

Production of smooth ^{nat}U layers for TRAKULA

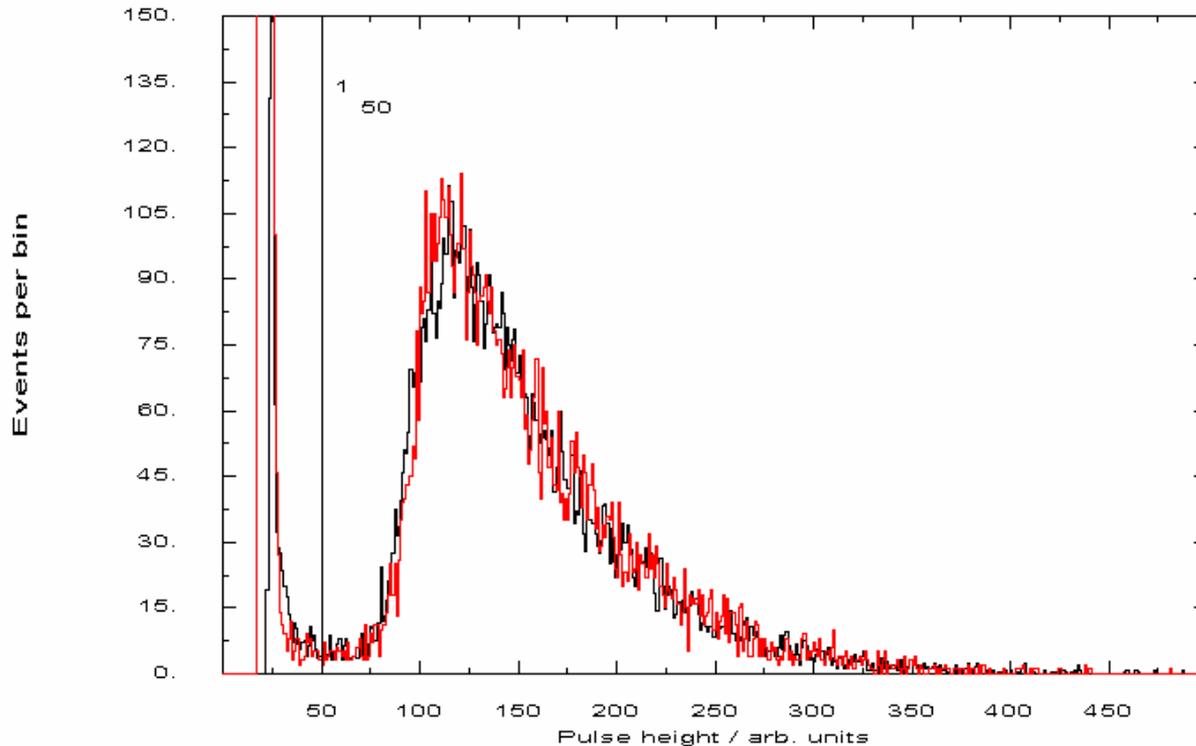
- test production of ^{nat}U large area targets on Ti coated Si wafers



quantitative deposition yield
(ca. 99%)

Alessio Vascon

PTB: ^{nat}U pulse height spectrum



Neues ^{nat}U target (rot) zeigt nahezu identisches Impulshöhenspektrum ,
wie das Transferinstrument H21 FC von PTB (schwarz)

R. Nolte, Unat-Report Dec. 2011

→ gute Qualität des ^{nat}U targets

Publikationen und Abschlussarbeiten:

A. Vascon et al., Nucl. Instrum. Meth. A 696 (2012) 180-191

A. Vascon et al., Nucl. Instrum. Meth. A 655 (2011) 72-79.

A. Vascon et al., Nucl. Instrum. Meth. A (2012) submitted

A. Vascon et al., J. Radioanal. Nucl. Chem. (2012) submitted

P. Ludwig: Search for Superheavy Elements in Nature with Accelerator Mass Spectrometry, Diplomarbeit TU München, 2010

B. Weiler: Development of a Compton Camera Using Highly Segmented Semiconductor Detectors, Diplomarbeit TU München, 2011

T. Faestermann et al.: Search for Primordial Heavy and Superheavy Elements; Int. Conf. on 'Advances in Radioactive Isotope Science' Leuven, Belgium, June 2011

M.Schlarb et al., EPJ - A Volume 47, 131 (2011), DOI: 10.1140/epja/i2011-11131-3

M.Schlarb et al., EPJ - A Volume 47, 132, (2011) DOI: 10.1140/epja/i2011-11132-2

K. Hain, Accelerator Mass Spectrometry Relevant for Nuclear Waste Transmutation, Masterarbeit TU München, 2011

J. Lachner et al.: Attempt to detect primordial ^{244}Pu ; Phys. Rev. C 85 (2012)

L. Lewandowski, Koinzidenzmessungen und Ortsbestimmung mit einer Compton-Kamera, Bachelorarbeit, Universität zu Köln, 16. Mai 2012

G. Schramm et al., Dipole strength in ^{78}Se below the neutron separation energy from a combined analysis of $^{77}\text{Se}(n,\gamma)$ and $^{78}\text{Se}(\gamma,\gamma')$ experiments, Phys. Rev. C 85 014311 (2012)

G. Schramm, Diplomarbeit, 2011, TU Dresden

R. Massarczyk, Diplomarbeit 2010, TU Dresden

A. R. Junghans, et al., The nELBE Neutron Time of Flight Facility, J. Korean Phys. Soc. 59, 1593-1596 (2011)

A. R. Junghans et al., The Energy Dependence of the Electric Dipole Strength in Heavy Nuclei, J. Korean Phys. Soc. 59, 1872-1875 (2011)

R. Beyer et al., "Measurement of the inelastic neutron scattering cross section of ^{56}Fe ", EPJ web of conferences 8 (2010) 07007

R. Beyer et al., Fast neutron inelastic scattering at the nELBE facility, Journal of Instrumentation 7 C02020 (2012) .

P. Schillebeeckx et al., Nuclear Data Sheets (2012), in press.



Ausblick

- Spaltkammer + Alphaspektroskopie im Aufbau
nELBE Anlage im Aufbau
Neutronenstrahlzeit ab Frühjahr 2013 (HZDR)
Zur Zeit: $^{77}\text{Se}(n,\gamma)$ Flugzeitexperiment am IRMM
- Aktinidentargets in Produktion (Univ. Mainz)
- TCAP Kammer konstruiert, Messung in Vorbereitung (PTB)
- Compton Kamera komplett aufgebaut.
Optimierung der Bildgebung (TU München, Univ. Köln)
- Beschleunigermassenspektrometrie erste Ergebnisse für ^{93}Zr
Vorbereitungen für ^{239}Pu (TU München)
- Frisch Gitter Ionisationskammer mit ^{147}Sm getestet
Vorbereitung für Messung langlebiger α -Aktivität (TU Dresden)

525. Wilhelm und Else Heraeus-Seminar

"Nuclear Physics Data for the Transmutation of Nuclear Waste"

February 25-27

Bad Honnef, Germany



Anmeldungen von interessierten Nachwuchswissenschaftlern sind willkommen

Topics

Innovative Systems for the transmutation of nuclear waste

Nuclear Data Evaluations and Requirements

Nuclear reaction theory and models

Latest developments in nuclear data measurements

<http://www.hzdr.de/db/Cms?pNid=2982>





Ende des Vortrags

- Nachfolgend nicht gezeigte Ergebnisse

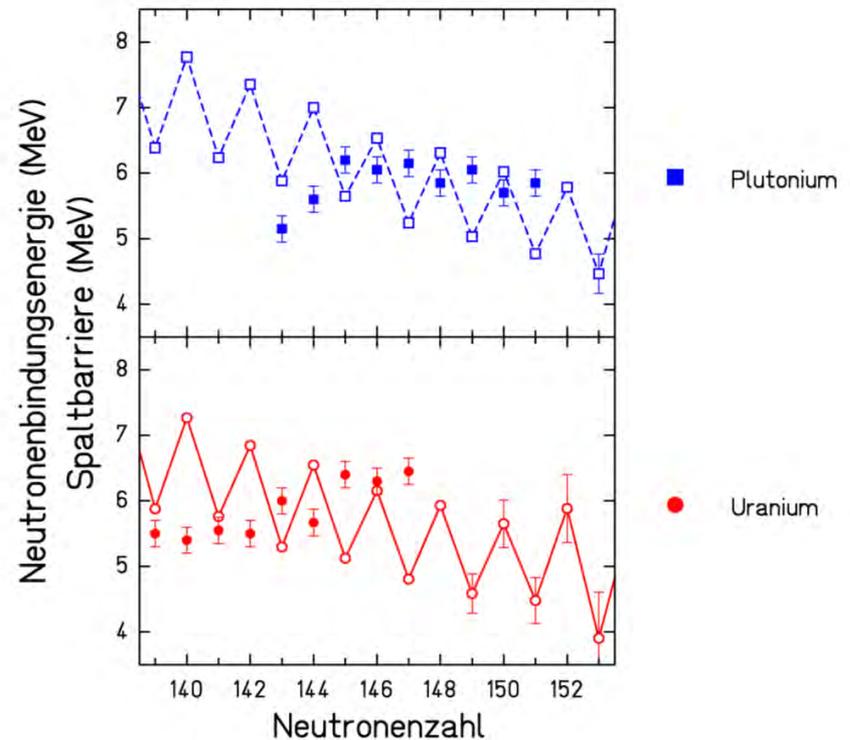


List of invited lecturers

Hamid Aït Abderrahim	SCK-CEN	Belgium
Roberto Capote-Noy	IAEA	Austria
Klaus Eberhardt	Univ. Mainz	Germany
Jutta Escher	LLNL	United States of America
Thomas Faestermann	TU München	Germany
Jean-Paul Grouiller	CEA	France
Frank Günsing	CEA	France
Robert Jaqmin	CEA	France
Arnd Junghans	HZDR	Germany
Beatriz Jurado	CEN Bordeaux-Gradignan	France
Bruno Merk	HZDR	Germany
Ralf Nolte	PTB	Germany
Arjan Plompen	IRMM	Belgium
Syed Qaim	FZJ	Germany
Ulrich Ratzinger	Univ. Frankfurt	Germany
Peter Reiter	Univ. Köln	Germany
Andrei Rineiski	KIT	Germany
Karl-Heinz Schmidt	CEN Bordeaux-Gradignan	France
Laurent Tassan-Got	IPN Orsay	France

Spaltbarkeit schwerer Kerne

- Oberhalb der Spaltbarriere kann Kernspaltung stattfinden.
 - Neutronenbindungsenergie bei Kernen mit gerader Neutronenanzahl N höher als bei ungeradem N
 → Gerade-Ungerade Effekt
 - $^{235}\text{U} + n$ (N = 143+1)
 Spaltbarriere niedriger als Neutronenbindungsenergie → Spaltung durch langsame Neutronen
 - $^{238}\text{U} + n$ (N = 146+1)
 Spaltbarriere höher als Neutronenbindungsenergie
 Spaltung nur durch schnelle Neutronen
- Ausreichend schnelle Neutronen können alle schweren Kerne spalten.

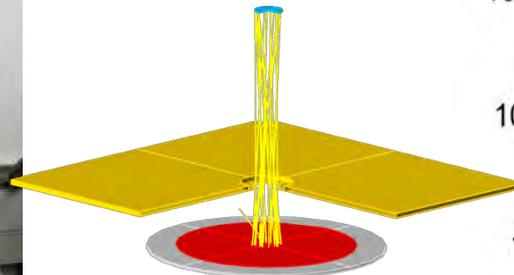


Targetcharakterisierung

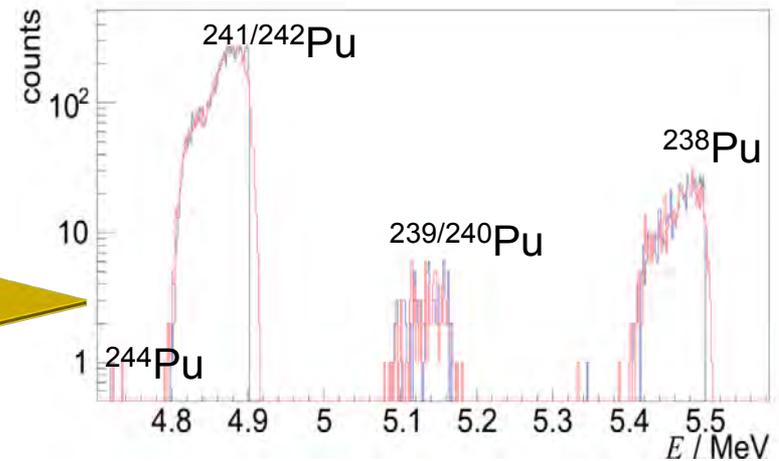
- Bestimmung der Anzahl der Atome und ihrer Verteilung durch orts aufgelöste Aktivitätsmessung
- ⇒ Kollimierte Geometrie mit ausreichendem Probenabstand
- Aktivitätsmessung für ^{235}U ungeeignet → Untersuchung mit 14 MeV n -Strahl bei PTB



Foto des α -Spektroskops am IRMM in Geel



GEANT4 Simulationsgeometrie



Simuliertes Spektrum der α -Spektroskopie des Plutonium-Targets → Bestimmung der Aktivität und damit der Schichtdicke

Modelling with MCUNED

MCUNED patch for MCNPX 2.7.0:

- transport of d down to 1 keV
- more effective variance reduction techniques
- coincident tallies of n and α particles

[P. Sauvan *et al.*, NIM A **614** (2010) 323]

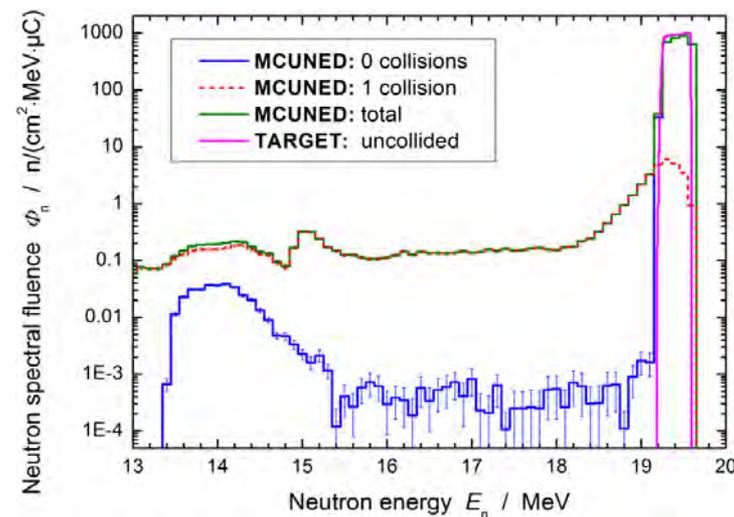
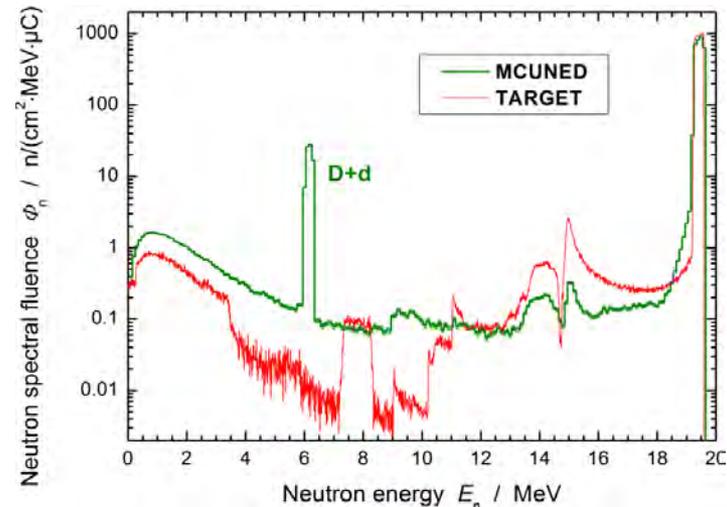
1st test of n production:

T(d,n) α ($E_d = 3$ MeV)

Target: **Ti(T)|Ag** H/Ti = 1.4
(2 mg/cm²|0.5 mm) (H: 99% T, 1% D)

→ comparison with
PTB TARGET code (H: 100% T)

next step:
modelling of **TCAP** experiment



Bund stockt bei Atomforschung auf

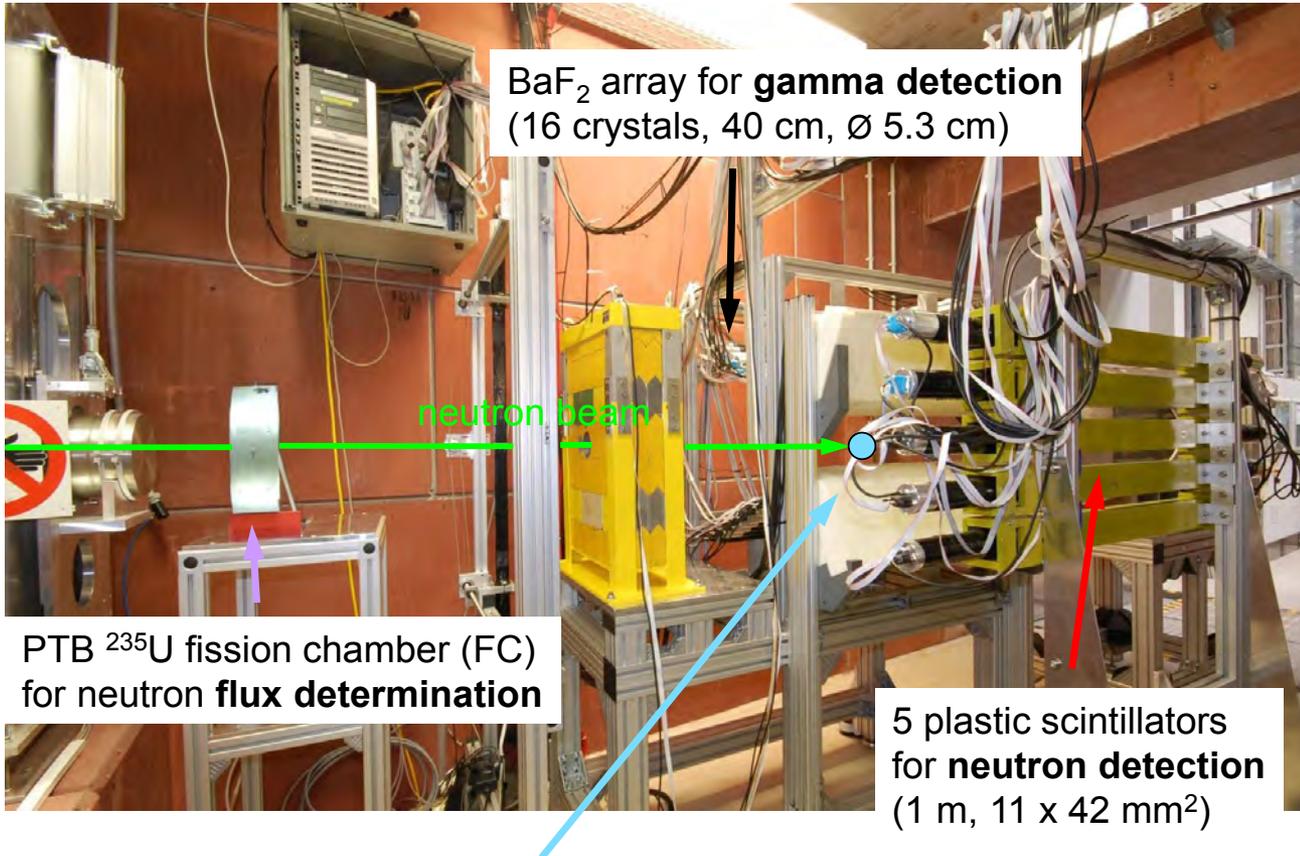
Schavan: 45 Millionen Euro im Jahr 2012

ten **OSNABRÜCK.** Die Bundesregierung wird die Mittel für Atomforschung trotz des Ausstiegs aus der Kernkraft noch steigern. In einem Interview mit unserer Zeitung erklärte Forschungsministerin Annette Schavan (CDU), derzeit würden Forschungseinrichtungen pro Jahr mit 32 Millionen Euro gefördert. Diese Summe steige im nächsten Jahr auf 35 Millionen Euro. Dazu kämen 10 Millionen Euro, die direkt in Forschungsprojekte fließen. „Atomforschung bleibt wich-

tig“, betonte die Ministerin. „Hochinteressant“ nannte sie das Verfahren der Transmutation, das radioaktive Stoffe wie Plutonium oder andere Langzeitstrahler entschärfe. Dies sei ein zentraler Ansatz, die Entsorgungsfrage zu lösen. „Ich warne aber vor vorschnellen Prognosen, wonach Atommüll in 20 Jahren nicht mehr strahlen wird“, sagte Schavan. *Seite 4*

„Transmutation is highly interesting, ... a central Ansatz for solving the question of final storage“

nELBE – double ToF (n,n' γ) experiment



BaF₂ array for **gamma detection**
(16 crystals, 40 cm, Ø 5.3 cm)

neutron beam

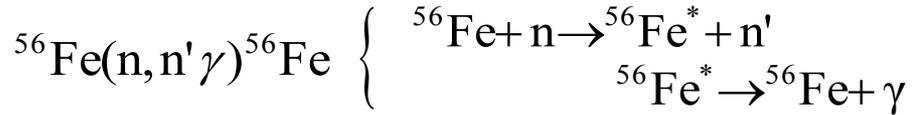
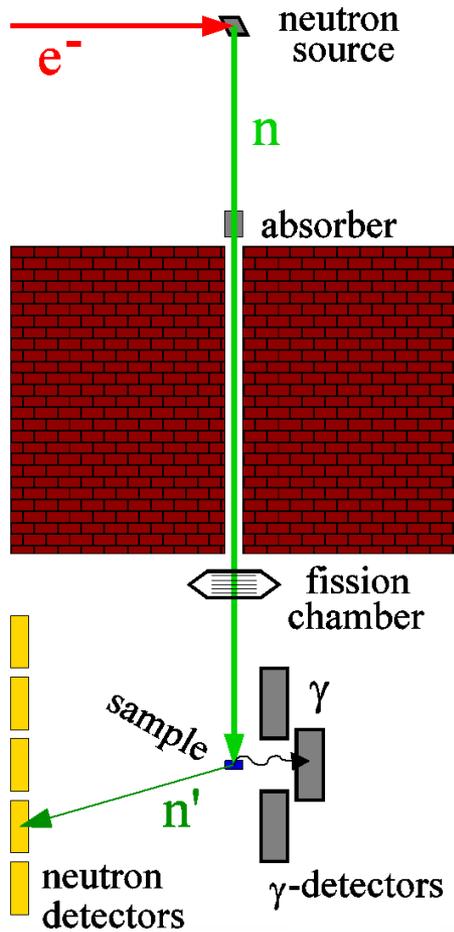
PTB ²³⁵U fission chamber (FC)
for neutron **flux determination**

5 plastic scintillators
for **neutron detection**
(1 m, 11 x 42 mm²)

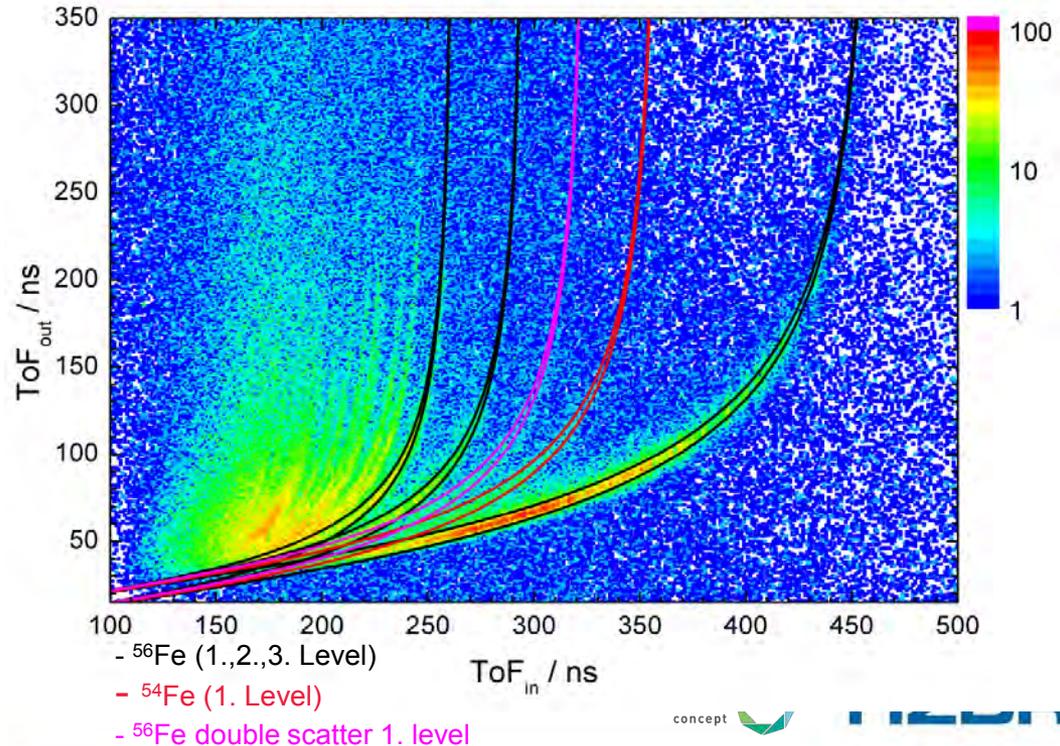
flight paths:
source - FC:
400 cm
source - sample:
600 cm
sample - BaF₂:
30 cm
sample - plastics:
100 cm

sample: ^{nat}Fe (99.8%) → 91.754% ⁵⁶Fe
mass: 19.82 g → 18.15 g ⁵⁶Fe

Experimental methods and results – Inelastic scattering

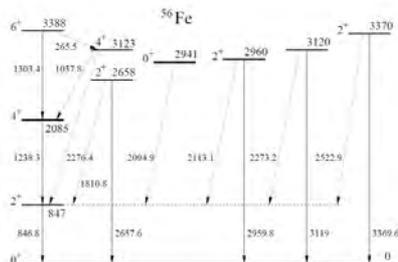
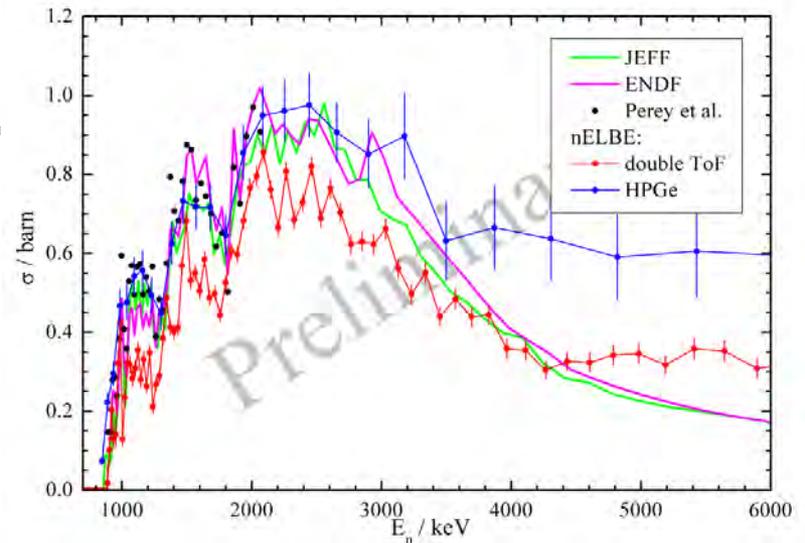
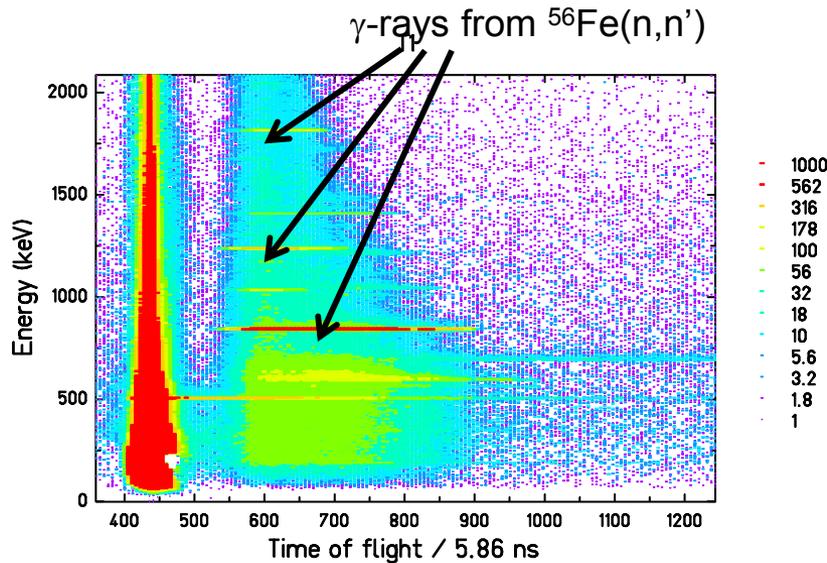


with sample (78 h live time)



Inelastic scattering cross section Fe and Na

- Measurement of the beam profile → Neutron flux density
- Plastic scintillator efficiency determined at PTB
- Check of normalisation time of flight measurement with HPGe detector



Fast neutron inelastic scattering at the nELBE facility
 R. Beyer et al., Journal of Instrumentation 7 C02020 (2012)



Anmeldung

Anmeldeformular:
<http://www.ptka.kit.edu/wte/>

Anmeldeformular bitte zurücksenden
oder faxen an: 0721 608 22377
Um Anmeldung bis zum 31.10.2012 wird
gebeten.

Die Teilnahme ist kostenlos.

Veranstaltungsort

KIT Campus Nord
Aula der FTU

Hinweise zur Anreise:
<http://www.kit.edu/besuchen/anfahrt.php>



Information

Organisation:

Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)
Karlsruher Institut für Technologie (KIT)
KIT Campus Nord
Hermann-von-Helmholtz-Platz 1
76344 Eggenstein-Leopoldshafen

Ansprechpartner:

Dr. Holger Bittendorf
Telefon: 0721 608 25792
E-Mail: holger.bittendorf@kit.edu
Dipl.-Ing. Michael Bühler
Telefon: 0721 608 24844
E-Mail: michael.buehler@kit.edu



www.ptka.kit.edu/wte



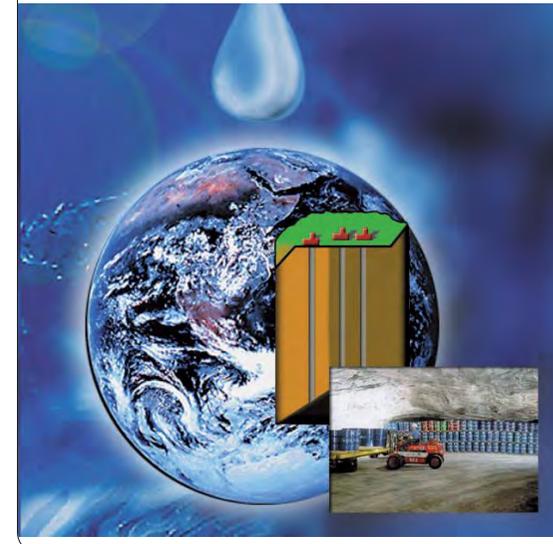
10. Projektstatusgespräch zu

BMWi- und BMBF-geförderten FuE-Projekten der Endlagerforschung und der Nuklearen Sicherheitsforschung

Karlsruhe

13.11. - 14.11.2012

Projektträger Karlsruhe
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)



KIT – Universität des Landes Baden-Württemberg und
nationales Forschungszentrum in der Helmholtz-Gemeinschaft

www.kit.edu

Programm

Dienstag, 13. November 2012

13:00 - 13:15

Begrüßung

Dr. U. Breuer, Vizepräsident, Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

13:15 - 14:00

Die vorläufige Sicherheitsanalyse Gorleben (VSG) – Methodik und bisherige Ergebnisse

Dr. G. Bracke, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH

14:00 - 14:45

Methodik zur Entwicklung eines Sicherheits- und Nachweiskonzeptes für ein HAW- Endlager im Ton

Dr. A. Lommerzheim, DBE TECHNOLOGY GmbH

14:45 - 15:30

ELSA Teil 1: Randbedingungen und Anforderungen bei Schächten für Endlager für hochradioaktive Abfälle

Prof. Dr. W. Kudla, TU Bergakademie Freiberg

15:30 - 16:00

Kaffeepause

16:00 - 16:30

Monitoring eines Endlagers für hochradioaktive Abfälle: Möglichkeiten und Grenzen

Dipl.-Geophys. M. Jobmann, DBE TECHNOLOGY GmbH

16:30 - 17:00

Die detaillierte Berechnung thermohaliner Strömungen in heterogenen, geklüftet porösen Medien mit d^3f und r^3t

Prof. Dr. G. Wittum, Johann Wolfgang Goethe-Universität Frankfurt am Main

17:00 - 17:30

Verbundprojekt: Vergleich aktueller Stoffgesetze anhand von Modellberechnungen zum thermo-mechanischen Verhalten und zur Verheilung von Steinsalz

Dr. A. Hampel, Wissenschaftlicher Berater

17:30 - 18:00

Ziele und Status des Projekts VIRTUS – Virtuelles Untertagelabor im Salz

Dipl.-Ing. T. Rothfuchs, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH

18:30 - 21:00

Empfang

Mittwoch, 14. November 2012

09:00 - 09:45

Mikrobielle Diversität im Tongestein (Opalinus-Ton) und Wechselwirkung dominanter Mikroorganismen mit Actiniden

Dr. H. Moll, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

09:45 - 10:30

Rückhaltung endlagerrelevanter Radionuklide im Natürlichen Tongestein und in salinaren Systemen

Prof. Dr. H. Geckeis, Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

10:30 - 11:00

Kaffeepause

11:00 - 11:45

ImmoRad – Langzeitsicherheit durch Immobilisierung langlebiger Radionuklide; Erste Ergebnisse

Dr. T. Stumpf, Karlsruher Institut für Technologie (KIT)

11:45 - 12:30

Status des Verbundprojekts 02NUK13: Transmutationsrelevante kernphysikalische Untersuchungen mit Einsatz moderner technologischer und numerischer Methoden

Dr. A. Junghans, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

12:30

Schlusswort

Ab 12:45

Mittags-Imbiss vom Buffet

13:15

Bustransfer zum Hauptbahnhof Karlsruhe