



# Impact of the heterogeneity of the sandy Opalinus clay facies at the Mont Terri underground research laboratory on radionuclide migration

Naila Ait-Mouheb<sup>1</sup>, Yuankai Yang<sup>1</sup>, Luc R. Van Loon<sup>2</sup>, Martin A. Glaus<sup>2</sup>, Guido Deissmann<sup>1</sup>, and Dirk Bosbach<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Institute of Energy and Climate Research (IEK-6): Nuclear Waste Management and Reactor Safety, Forschungszentrum Jülich GmbH, 52425 Jülich, Germany

<sup>2</sup>Laboratory for Waste Management, Paul Scherrer Institute, 5232 Villigen PSI, Switzerland

**Correspondence:** Naila Ait-Mouheb (n.ait.mouheb@fz-juelich.de)

Published: 10 November 2021

**Abstract.** The assessment of the safety of a deep geological repository (DGR) for high-level radioactive wastes over assessment time scales of up to 1 million years requires an in-depth understanding of the multi-scale coupled processes that affect the repository system evolution over time, to reduce uncertainties and conservatism in safety analyses. This is in particular required with respect to the challenges of a comparative assessment of different repository concepts in different host rocks within the process of a site selection for a DGR for heat-generating radioactive wastes in Germany. The collaborative project “Integrity of nuclear waste repository systems – Cross-scale system understanding and analysis (iCross)” conducted jointly by five research centres of the Helmholtz Association and co-funded by the Initiative and Networking Fund of the Helmholtz Association and the Federal Ministry of Education and Research (BMBF) has been initiated with the overall objective to improve the understanding of coupled thermal-hydraulic-mechanical-chemical-(micro)biological (THMCB) processes and to develop simulation tools that enable a holistic close to reality description of the long-term evolution of the repository system.

Geological formations, such as those foreseen as potential host rocks for DGRs, and their surroundings are heterogeneous on various length scales ranging from nanometers to kilometers. Therefore, the aim of this work in the context of iCross is to evaluate the effects of mineralogical, geochemical and microstructural heterogeneities of repository host rocks on radionuclide transport in the repository far field, using the sandy facies of the Opalinus clay (SF-OPA) from the Mont Terri underground research laboratory (St. Ursanne, Switzerland) as an example. Here, we address in particular the migration behaviour of Ra-226 as an important radionuclide to be considered in safety cases for deep geological disposal of spent nuclear fuel. To assess the impact of the heterogeneities in SF-OPA on radionuclide transport, a complementary approach combining microstructural characterisation methods, experimental techniques for the determination of transport parameters of the rock matrix and the mobility of Ra-226 with innovative developments in reactive transport modelling on the pore and continuum scales was pursued. One of the results was that although the limited clay content in SF-OPA decreases the total amount of Ra bound to the illite phase, the solid solutions of sulphate and carbonate compensate for this and provide a major fixation mechanism.

**Kurzfassung.** Die Bewertung der Sicherheit eines tiefengeologischen Endlagers für hochradioaktive Abfälle über Bewertungszeiträume von bis zu einer Million Jahren erfordert ein umfassendes Verständnis der multi-skaligen gekoppelten Prozesse, die die zeitliche Entwicklung des Endlagersystems beeinflussen, um Ungewissheiten und Konservativitäten in Sicherheitsanalysen zu reduzieren. Dies ist insbesondere im Hinblick auf die Herausforderungen einer vergleichenden Bewertung verschiedener Endlagerkonzepte in unterschiedlichen Wirtsgesteinen im Rahmen des Standortauswahlverfahrens für ein Endlager für wärmeentwickelnde radioaktive

Abfälle in Deutschland erforderlich. Das gemeinsam von fünf Forschungszentren der Helmholtz-Gemeinschaft durchgeführte und vom Impuls- und Vernetzungsfonds der Helmholtz-Gemeinschaft sowie dem Bundesministerium für Bildung und Forschung (BMBF) kofinanzierte Verbundprojekt „Integrity of nuclear waste repository systems – cross-scale system understanding and analysis (iCross)“ wurde mit dem Ziel initiiert, das Verständnis gekoppelter THM/CB-Prozesse (d. h. gekoppelter thermisch-hydraulisch-mechanisch-chemisch-(mikro)biologische Prozesse) zu verbessern und Simulationswerkzeuge zu entwickeln, die eine ganzheitliche „realitätsnahe“ Beschreibung der langfristigen Entwicklung eines Endlagersystems ermöglichen.

Geologische Formationen, wie sie als potenzielle Wirtsgesteine für Endlager vorgesehen sind, und ihre Umgebung weisen Heterogenitäten auf unterschiedlichen Längenskalen auf, von der Nanometer- bis zur Kilometerskala. Ziel dieser Arbeit im Rahmen von iCross ist es daher, die Auswirkungen mineralogischer, geochemischer und mikrostruktureller Heterogenitäten von Endlager-Wirtsgesteinen auf den Radionuklidtransport im Endlagerfernfeld zu bewerten, am Beispiel der sandigen Fazies des Opalinustons (SF-OPA) aus dem Untertagelabor Mont Terri (St. Ursanne, Schweiz). Dabei befassen wir uns insbesondere mit dem Migrationsverhalten von Ra-226, einem Radionuklid, das bei Sicherheitsnachweisen für die tiefengeologische Endlagerung abgebrannter Kernbrennstoffe eine wesentliche Rolle spielt. Um die Auswirkungen der Heterogenitäten des SF-OPA auf den Radionuklidtransport zu bewerten, wurde ein komplementärer Ansatz verfolgt, der mikrostrukturelle Charakterisierungsmethoden, Experimente zur Bestimmung von Transportparametern der Gesteinsmatrix und der Mobilität von Ra-226 mit innovativen Entwicklungen auf dem Gebiet der reaktiven Stofftransportmodellierung auf dem Poren- und Kontinuumsmaßstab kombiniert. Eines der Ergebnisse war, dass der niedrigere Tongehalt im SF-OPA zwar die Gesamtmenge des an Illit gebundenen Ra begrenzt, wobei die Bildung von festen Lösungen mit Sulfat und Karbonat dies kompensieren und einen wichtigen Fixierungsmechanismus für Ra darstellen.

**Financial support.** This research has been supported by the Bundesministerium für Bildung und Forschung (grant no. 02NUK053 A) and the Helmholtz Association (grant no. SO-093).