



Diffusive transport of uranium and americium through clay rock down to ultra-trace levels

Daniel Glückman¹, Karin Hain², Claudia Joseph¹, Volker Metz¹, Francesca Quinto¹, Peter Steier², and Horst Geckeis¹

¹Institute for Nuclear Waste Disposal, Karlsruhe Institute of Technology, Eggenstein-Leopoldshafen, 76344, Germany

²Faculty of Physics, University of Vienna, Vienna, 1090, Austria

Correspondence: Daniel Glückman (daniel.glueckman@kit.edu)

Published: 10 November 2021

Abstract. Clay rock is a potential host rock for the final disposal of nuclear waste in deep geological formations. In the scenario of ground water intrusion into the nuclear waste repository and subsequent corrosion of canisters and waste, possibly released actinides, such as uranium (U) and americium (Am), would be transported through the engineered barrier and clay host rock mainly by diffusion. Actinides are known to exhibit low solubility and are strongly sorbing under the reducing conditions of deep geological formations. Diffusion experiments are therefore difficult to perform due to analytical constraints. To our knowledge, the diffusion of U in clay rock has not been investigated below concentrations of 10^{-7} mol kg⁻¹ clay (e.g., Joseph et al., 2013) and for Am, no diffusion experiments have been performed in a clay rock, considered suitable as host rock, such as Opalinus clay (OPA).

This work aimed at the investigation of the diffusive behavior of U and Am down to ultra-trace concentrations ($\ll 10^{-7}$ mol kg⁻¹) in OPA. Laboratory-scale diffusion experiments were conducted with samples of OPA, obtained from the Mont Terri underground laboratory, Switzerland for up to 240 d. The OPA samples were placed in contact with synthetic pore water ($I = 0.22$ mol L⁻¹, pH = 7.24), spiked with 5×10^{-9} mol L⁻¹ of ²³³U and ²⁴³Am, respectively. After termination of the experiment, the OPA samples were segmented into thin layers of 20–400 μm. The obtained clay segments were analyzed for the ²³³U and ²⁴³Am content with accelerator mass spectrometry. Concentration profiles were determined down to 10^{-12} mol kg⁻¹ clay for ²³³U and 5×10^{-10} mol kg⁻¹ clay for ²⁴³Am. U showed a typical diffusion profile which can be interpreted by applying Fick's laws, while the Am profile was more complex, requiring further investigation of transport modes.

These results will provide relevant insights into the transport behavior of U and Am in OPA over a wide range of concentrations down to ultra-trace levels.

Kurzfassung. Tongestein ist ein potenzielles Aufnahmegestein für die Endlagerung von Atommüll in tiefen geologischen Formationen. Im Szenario des Eindringens von Grundwasser in das Endlager für nukleare Abfälle und der anschließenden Korrosion von Behältern und Abfällen würden möglicherweise freigesetzte Aktiniden, wie Uran (U) und Americium (Am), hauptsächlich per Diffusion durch die bauliche Barriere und das Aufnahmegestein aus Ton transportiert werden. Bekannt ist, dass Aktinide eine geringe Löslichkeit aufweisen und unter den reduzierenden Bedingungen tiefer geologischer Formationen stark sorbieren. Diffusionsexperimente sind daher aufgrund analytischer Beschränkungen schwierig durchzuführen. Unseres Wissens wurde die Diffusion von U in Tongestein nicht unterhalb von Konzentrationen von 10^{-7} mol kg⁻¹ Ton untersucht (z. B. Joseph et al., 2013), und für Am wurden bisher keine Diffusionsexperimente in einem als Aufnahmegestein infrage kommenden Tongestein – etwa in Opalinuston (OPA) – durchgeführt.

Ziel dieser Arbeit war die Untersuchung des Diffusionsverhaltens von U und Am bis in den Ultraspurenbereich ($\ll 10^{-7}$ mol kg⁻¹) in OPA. Bis zu 240 Tage lang wurden Diffusionsexperimente im Labormaßstab mit OPA-Proben durchgeführt, die aus dem unterirdischen Labor Mont Terri in der Schweiz stammen. Die OPA-Proben wurden mit synthetischem Porenwasser ($I = 0,22$ mol L⁻¹, pH = 7,24) in Verbindung gebracht, das mit

$5 \times 10^{-9} \text{ mol L}^{-1}$ von ^{233}U bzw. ^{243}Am versetzt war. Nach Beendigung des Experiments wurden die OPA-Proben in dünne Schichten von 20–400 μm zerlegt. Die erhaltenen Tonsegmente wurden mit Beschleuniger-Massenspektrometrie auf ihren Gehalt an ^{233}U und ^{243}Am untersucht. Es wurden Konzentrationsprofile bis zu $10^{-12} \text{ mol kg}^{-1}$ Ton für ^{233}U bzw. $5 \times 10^{-10} \text{ mol kg}^{-1}$ für ^{243}Am ermittelt. U zeigte ein typisches Diffusionsprofil, das sich anhand der Fick-Gesetze interpretieren lässt, während das Am-Profil komplexer war und eine weitere Untersuchung der Transportmodi erfordert.

Diese Ergebnisse werden wichtige Einblicke in das Transportverhalten von U und Am in OPA über einen weiten Konzentrationsbereich bis hin zu Ultraspuren-Ebenen liefern.

Acknowledgements. This work received partial funding from the German Federal Ministry for Education and Research through the iCross collaborative project under grant agreement 02NUK 053 C, and from the Helmholtz association under grant agreement SO-093.

Financial support. This research has been supported by the German Federal Ministry for Education and Research (grant no. 02NUK 053 C) and the Helmholtz association (grant no. SO-093).

References

Joseph, C., Van Loon, L. R., Jakob, A., Steudtner, R., Schmeide, K., Sachs, S., and Bernhard, G.: Diffusion of U(VI) in Opalinus Clay: Influence of temperature and humic acid, *Geochim. Cosmochim. Ac.*, 109, 74–89, <https://doi.org/10.1016/j.gca.2013.01.027>, 2013.