



## DECKBLATT

EU 138	Projekt	PSP-Element	Obj. Kenn.	Aufgabe	UA	Lfd. Nr.	Rev.
	N A A N	N N N N N N N N N N	N N N N N N	X A A X X	A A	N N N N	N N
	9K	352141.30	-	MR	RB	0007	00

Titel der Unterlage: Nuklidmigration (Np, Pu, Am, Tc) im Deckgebirge des Endlagerortes Konrad, RCM 03585	Seite:
	I.
	Stand: Dezember 1985

Ersteller: Technische Universität München	Textnummer:
--	-------------

Stempelfeld:

PSP-Element TP.....9K/212855	zu Plan-Kapitel: 3.9.5
------------------------------	------------------------

	PL	PL

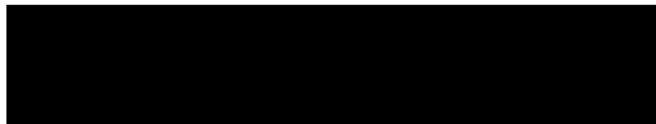
Diese Unterlage unterliegt samt Inhalt dem Schutz des Urheberrechts sowie der Pflicht zur vertraulichen Behandlung auch bei Beförderung und Vernichtung und darf vom Empfänger nur auftragsbezogen genutzt, vervielfältigt und Dritten zugänglich gemacht werden. Eine andere Verwendung und Weitergabe bedarf der ausdrücklichen Zustimmung der PTB.



Institut für Radiochemie der  
Technischen Universität München

RCM 03585

NUKIDMIGRATION ( Np, Pu, Am, Tc) IM  
DECKGEBIRGE DES ENDLAGERORTES KONRAD



Dezember 1985

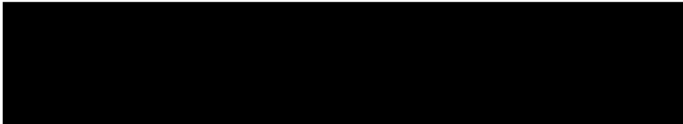
Dieser Bericht wurde am Institut für Radiochemie der Technischen Universität München unter Leitung von Priv. Doz. [REDACTED] erstellt. Der Bericht ist eine interne Arbeitsunterlage und ist vertraulich zu behandeln. Eine Weitergabe an Dritte bedarf der schriftlichen Einwilligung der Physikalisch-Technischen Bundesanstalt in Braunschweig.

Auftragnehmer: Technische Universität München  
Institut für Radiochemie

Projektleiter:



Bearbeiter:



Thema: Nuklidmigration (Np, Pu, Am, Tc) im Deckgebirge  
des Endlagerortes Konrad

Berichtszeitraum: 01.07.1983 - 31.12.1985 (kumulativer Bericht)

München, Dezember 1985

Der Bericht wurde im Auftrag der PHYSIKALISCH TECHNISCHEN BUNDESANSTALT (PTB) erstellt. Die PTB behält sich alle Rechte vor. Insbesondere darf dieser Bericht nur mit Zustimmung der PTB zitiert, ganz oder teilweise vervielfältigt bzw. Dritten zugänglich gemacht werden.

## ZUSAMMENFASSUNG

Es wurden Untersuchungen zur Ermittlung des Migrationsverhaltens von Neptunium, Plutonium, Americium und Technetium im Deckgebirge des Endlagers für radioaktive Abfälle "Konrad" durchgeführt. Hierfür wurden die Sorptionskoeffizienten der genannten Elemente in Batch-Versuchen mit den Nukliden  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und  $^{99}\text{Tc}$  und für den Standort "Konrad" repräsentativen Gesteinsproben und Grund- bzw. Modellwässer bestimmt. Weitere Sorptionsexperimente unter Variation verschiedener Versuchsparameter, wie Kontaktdauer, pH-Werte, NaCl-Konzentration und Komplexbildner dienten der Absicherung der ermittelten Sorptionsdaten. Aussagen zur Eintringtiefe der Radionuklide in die Gesteinsoberflächen wurden durch Diffusionsversuche erhalten. Vergleichsweise wurden Säulendurchlaufversuche durchgeführt aus denen Kapazitätsfaktoren für die Gesteinsproben erhalten werden können.

INHALTSVERZEICHNIS

	Seite	
1	Einleitung und Aufgabenstellung	1
2	Charakterisierung der Versuchsproben	2
2.1	Bestand an Probematerialien	2
2.2	Zuordnung der Gesteinsproben zu den Wässern	3
3	Übersicht über den Stand der Experimente	4
3.1	Vorbereitung für Sorptionsuntersuchungen	4
3.2	Sorptionsuntersuchungen	8
3.3	Diffusionsuntersuchungen	14
3.4	Säulenversuche	14
4	Ergebnisse der Sorptionsuntersuchungen	15
4.1	Grundwasseranalysen	15
4.2	Vorbereitung der Löslichkeitsbestimmungen und Sorptionsexperimente	15
4.3	Radiometrische Konzentrationsbestimmung	17
4.4	Löslichkeitsbestimmungen	19
4.4.1	Löslichkeitsbestimmungen des $^{237}\text{Np}$	19
4.4.2	Löslichkeitsbestimmungen des $^{238}\text{Pu}$	23
4.4.3	Löslichkeitsbestimmungen des $^{241}\text{Am}$	23
4.4.4	Zur Löslichkeit von $^{99}\text{Tc}$	24
4.5	Stabilitätsuntersuchungen	25
4.6	Sorptionsexperimente	27
4.6.1	Nachweisgrenzen und Fehlerbetrachtung	30
4.6.2	Zeitabhängigkeit der Sorption	35
4.6.3	Abhängigkeit vom Staubanteil der Gesteinsprobe	35
4.6.4	Variation des Lösungsvolumen-Feststoffoberflächenverhältnisses V/A	35

	Seite	
4.6.5	Variation des Lösungsvolumen-Feststoffmassever- hältnisses V/m	38
4.6.6	Einfluß durch Verwendung unterschiedlicher Wässer	39
4.6.7	Abhängigkeit von der NaCl-Konzentration der Aus- gangslösung	41
4.6.8	Abhängigkeit von der NaHCO <sub>3</sub> -Konzentration der Ausgangslösung	42
4.6.9	Abhängigkeit von Komplexbildnern in der Ausgangslösung	42
4.6.9.1	Experimente mit Koge-Proben	42
4.6.9.2	Experimente mit Sorp-Proben	43
4.6.10	Abhängigkeit von dem pH-Wert der Ausgangslösung	44
4.6.11	Abhängigkeit vom Eh-Wert	44
4.6.12	Abhängigkeit von der Temperatur	45
4.6.13	Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration	47
4.6.14	Einfluß von Kolloidbildung	48
5	Ergebnisse der Diffusionsuntersuchungen	50
6	Ergebnisse der Säulenexperimente	69
6.1	Säulenumlaufversuche	69
6.2	Säulendurchlaufversuche	69
6.3	Kolloideffekt bei Säulenexperimenten	82
7	Literatur	83
8	Tabellen	86

ABBILDUNGSVERZEICHNIS

	Seite
Abb. 4-1 Konditionierungsschema	16
Abb. 4-2 Flüssigszintillationsspektrum von $^{237}\text{Np}$ in Str.670-Wasser, unfiltrierte Probe	18
Abb. 4-3 Flüssigszintillationsspektrum von $^{237}\text{Np}$ in Str.670-Wasser, Probe über $0,45\ \mu\text{m}$ filtriert	18
Abb. 4-4 Löslichkeit von $\text{Np(V)}$ in Konrad-Wässern in Abhängigkeit vom pH der Wässer	21
Abb. 4-5 Löslichkeit von $\text{NpO}_2\text{OH}$ in Konrad-Wässern in Abhängigkeit vom Redoxpotential der Wässer	22
Abb. 4-6 Technetiumkonzentration in den für die Sorptionsexperimente verwendeten Wässern	24
Abb. 4-7 Sorptionskoeffizienten von $^{237}\text{Np}$ in Süßwasser	29
Abb. 4-8 Sorptionskoeffizienten von $^{237}\text{Np}$ in salinem Wasser	30
Abb. 4-9 Sorptionskoeffizienten von $^{238}\text{Pu}$ in Süßwasser	31
Abb. 4-10 Sorptionskoeffizienten von $^{238}\text{Pu}$ in salinem Wasser	32
Abb. 4-11 Sorptionskoeffizienten von $^{241}\text{Am}$ in Süßwasser	33
Abb. 4-12 Sorptionskoeffizienten von $^{241}\text{Am}$ in salinem Wasser	34
Abb. 4-13 $\log R_s - 1/T$ Abhängigkeit von $^{238}\text{Pu}$	46
Abb. 5-1 Teflon-Diffusionszelle	50
Abb. 5-2 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Söhlde-1-Wasser und dem Gestein Lamarcki Pläner	51
Abb. 5-3 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Söhlde-1-Wasser und dem Gestein U/M Cenoman	52
Abb. 5-4 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Kimmeridge	53
Abb. 5-5 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Hangendes Erz	54



	Seite
Abb. 5-6 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Liegendes Erz	55
Abb. 5-7 Diffusionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und den Gesteinen Erzkalke und Heersumer Schichten	56
Abb. 5-8 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Fladentonstein	57
Abb. 5-9 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Cornbrash	58
Abb. 5-10 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Hils-2-Wasser und dem Gestein Sorp 5	59
Abb. 5-11 Diffusionsexperiment mit $^{237}\text{Np}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 6	60
Abb. 5-12 Diffusionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , Ort-300-Wasser und den Gesteinen Sorp 7 und Sorp 10	61
Abb. 5-13 Diffusionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Söhlde-1-Wasser und dem Gestein Lamarcki Pläner	62
Abb. 5-14 Diffusionsexperiment mit $^{238}\text{Pu}$ , Söhlde-1-Wasser und dem Gestein U/M Cenoman	63
Abb. 5-15 Diffusionsexperiment mit $^{238}\text{Pu}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Cornbrash	64
Abb. 5-16 Diffusionsexperiment mit $^{238}\text{Pu}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 5	65
Abb. 5-17 Diffusionsexperiment mit $^{99}\text{Tc}$ , Hils-2-Wasser und dem Gestein Sorp 5	66
Abb. 5-18 Diffusionsexperiment mit $^{99}\text{Tc}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 7	67
Abb. 5-19 Diffusionsexperiment mit $^{99}\text{Tc}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 8	68
Abb. 6-1 Säulendurchlaufversuch mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Kimmeridge	71
Abb. 6-2 Säulendurchlaufversuch mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Hangendes Erz	72

	Seite
Abb. 6-3 Säulendurchlaufversuch mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Liegendes Erz	73
Abb. 6-4 Säulendurchlaufversuch mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Erzkalke	74
Abb. 6-5 Säulendurchlaufversuch mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Fladentonstein	75
Abb. 6-6 Säulendurchlaufversuch mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Heersumer Schichten	76
Abb. 6-7 Säulendurchlaufversuch mit $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Cornbrash	77
Abb. 6-8 Säulendurchlaufversuch mit $^{237}\text{Np}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 7	78
Abb. 6-9 Säulendurchlaufversuch mit $^{238}\text{Pu}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Kimmeridge	80
Abb. 6-10 Säulendurchlaufversuch mit $^{238}\text{Pu}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Cornbrash	81

TABELLENVERZEICHNIS

	Seite
Tab. 1-1 Sorptionskoeffizienten für $^{237}\text{Np}$ für unbeeinflusste Sediment/GrundwasserSysteme	87
Tab. 1-2 Sorptionskoeffizienten für $^{238}\text{Pu}$ für unbeeinflusste Sediment/GrundwasserSysteme	88
Tab. 1-3 Sorptionskoeffizienten für $^{241}\text{Am}$ für unbeeinflusste Sediment/GrundwasserSysteme	89
Tab. 1-4 Sorptionskoeffizienten für $^{99}\text{Tc}$ für unbeeinflusste Sediment/GrundwasserSysteme	89
Tab. 2-1 Zuordnung der Gesteine zu den Grundwässern	90
Tab. 2-2 Zuordnung der Konrad I- zu den Konrad II-Proben	91
Tab. 4.1-1 Physikalische Größen der Ausgangswässer	91
Tab. 4.1-2 Makro- und Spurenelementbestimmung in Söhle- und Quartärwasser	92
Tab. 4.1-3 Makro- und Spurenelementbestimmung in Modell- und Hilswasser	93
Tab. 4.1-4 Makro- und Spurenelementbestimmung in Sohle 5-, Str.670- und Ort-300-Wasser	94
Tab. 4.1-5 Analysen von konditionierten Konrad-Wässern	95
Tab. 4.4-1 Löslichkeit von $\text{NpO}_2\text{OH}$ in konditioniertem Hils-1-Wasser	96
Tab. 4.4-2 Löslichkeit von $\text{NpO}_2\text{OH}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Wässern	97
Tab. 4.4-3 Löslichkeit von $\text{NpO}_2\text{OH}$ in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern	98
Tab. 4.4-4 Löslichkeit von $\text{NpO}_2\text{OH}$ in konditioniertem "anaeroben" Wasser	99
Tab. 4.4-5 Löslichkeit von $\text{PuO}_2$ in den mit Koge-Proben konditionierten Wässern	100
Tab. 4.4-6 Löslichkeit von $\text{PuO}_2$ in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern	101
Tab. 4.4-7 Löslichkeit von $\text{Am}(\text{OH})_3$ in konditioniertem Wasser	101

## VII

	Seite
Tab. 4.4-8 Löslichkeit von $\text{NpO}_2$ in nicht-konditioniertem Söhlde-1- und Str.670-Wasser	102
Tab. 4.4-9 Löslichkeit von $\text{NpO}_2\text{OH}$ in nicht-konditioniertem Söhlde-1- und konditioniertem Modellwasser	102
Tab. 4.4-10 Löslichkeit von $\text{PuO}_2$ in nicht-konditioniertem Wasser	103
Tab. 4.4-11 Löslichkeit von $\text{AmO}_2$ in nicht-konditioniertem Wasser	103
Tab. 4.5-1 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Quartär-Wässern	104
Tab. 4.5-2 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in den mit Koge-Proben konditionierten bidest. Wässern	104
Tab. 4.5-3 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Söhlde-1-Wässern	105
Tab. 4.5-4 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Hils-1-Wässern	105
Tab. 4.5-5 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Str.670-Wässern	106
Tab. 4.5-6 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern	106
Tab. 4.5-7 Stabilitätsuntersuchungen des $^{238}\text{Pu}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Quartär-Wässern	107
Tab. 4.5-8 Stabilitätsuntersuchungen des $^{238}\text{Pu}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Söhlde-Wässern	107
Tab. 4.5-9 Stabilitätsuntersuchungen des $^{238}\text{Pu}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Hils-1-Wässern	108
Tab. 4.5-10 Stabilitätsuntersuchungen des $^{238}\text{Pu}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Str.670-Wässern	108
Tab. 4.5-11 Stabilitätsuntersuchungen des $^{238}\text{Pu}$ in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern	109
Tab. 4.5-12 Stabilitätsuntersuchungen des $^{241}\text{Am}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Quartär-Wässern	109

	Seite
Tab. 4.5-13 Stabilitätsuntersuchungen des $^{241}\text{Am}$ in den mit Koge-Proben konditionierten bidest. Wässern	110
Tab. 4.5-14 Stabilitätsuntersuchungen des $^{241}\text{Am}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Söhlde-1-Wässern	110
Tab. 4.5-15 Stabilitätsuntersuchungen des $^{241}\text{Am}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Hils-1-Wässern	111
Tab. 4.5-16 Stabilitätsuntersuchungen des $^{241}\text{Am}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Str.670-Wässern	111
Tab. 4.5-17 Stabilitätsuntersuchungen des $^{99}\text{Tc}$ in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern	112
Tab. 4.5-18 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ und $^{238}\text{Pu}$ in den mit Koge-Proben konditionierten Söhlde-1-Wässern mit verschiedenen NaCl-Gehalten	113
Tab. 4.5-19 Stabilitätsuntersuchungen des $^{241}\text{Am}$ in den mit Koge-Proben konditionierten bidest. Wässern mit verschiedenen NaCl-Gehalten	113
Tab. 4.5-20 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in den mit Koge-Proben konditionierten "anaeroben" Wässern	114
Tab. 4.5-21 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in den mit Sorp-Proben konditionierten "anaeroben" Wässern	114
Tab. 4.5-22 Stabilitätsuntersuchungen des $^{99}\text{Tc}$ in den mit Sorp-Proben konditionierten "anaeroben" Wässern	115
Tab. 4.5-23 Stabilitätsuntersuchungen des $^{237}\text{Np}$ in Söhlde-1-Wasser, Temperaturabhängigkeit	115
Tab. 4.5-24 Stabilitätsuntersuchungen des $^{238}\text{Pu}$ in Söhlde-1-Wasser, Temperaturabhängigkeit	116
Tab. 4.6-1 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und den Quartär-Proben in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	116
Tab. 4.6-2 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , den F-Fractionen und bidest. Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	117
Tab. 4.6-3 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , den F-Fractionen und Söhlde-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	117

	Seite
Tab. 4.6-4 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , den F-Fractionen und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	118
Tab. 4.6-5 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , den F-Fractionen und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	118
Tab. 4.6-6 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und den Sorp-Proben in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	119
Tab. 4.6-7 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und den Quartär-Proben in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	120
Tab. 4.6-8 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , den F-Fractionen und Söhlde-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	120
Tab. 4.6-9 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , den F-Fractionen und Modellwasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	121
Tab. 4.6-10 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , den F-Fractionen und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	122
Tab. 4.6-11 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , den F-Fractionen und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	123
Tab. 4.6-12 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und den Sorp-Proben in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	123
Tab. 4.6-13 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ und den Quartär-Proben in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	124
Tab. 4.6-14 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ , den F-Fractionen und bidest. Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	124
Tab. 4.6-15 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ , den F-Fractionen und Söhlde-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	125
Tab. 4.6-16 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ , den F-Fractionen und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	125
Tab. 4.6-17 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ , den F-Fractionen und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	126
Tab. 4.6-18 Sorptionsexperimente mit $^{99}\text{Tc}$ und den Sorp-Proben in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	126
Tab. 4.6-19 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , den G-Fractionen und Söhlde-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	127

	Seite
Tab. 4.6-20 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , den G-Fractionen und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	127
Tab. 4.6-21 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , den G-Fractionen und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	128
Tab. 4.6-22 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , den G-Fractionen und Söhlde-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	128
Tab. 4.6-23 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , den G-Fractionen und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	129
Tab. 4.6-24 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , den G-Fractionen und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	129
Tab. 4.6-25 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ , den G-Fractionen und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit	130
Tab. 4.6-26 Vergleich der Sorptionskoeffizienten von $^{237}\text{Np}$ an Fein- und Grobfraktion der Gesteine	130
Tab. 4.6-27 Vergleich der Sorptionskoeffizienten von $^{238}\text{Pu}$ an Fein- und Grobfraktion der Gesteine	131
Tab. 4.6-28 Vergleich der Sorptionskoeffizienten von $^{241}\text{Am}$ an Fein- und Grobfraktion der Gesteine	131
Tab. 4.6-29 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Söhlde-1-Wasser, V/m-Variation	132
Tab. 4.6-30 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Str.670-Wasser, V/m-Variation	132
Tab. 4.6-31 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Kimmeridge und Str.670-Wasser, V/m-Variation	133
Tab. 4.6-32 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Liegendes Erz und Str.670-Wasser, V/m-Variation	133
Tab. 4.6-33 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Cornbrash und Str.670-Wasser, V/m-Variation	134
Tab. 4.6-34 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Variation des NaCl-Gehaltes	134
Tab. 4.6-35 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Variation des NaCl-Gehaltes	135

	Seite
Tab. 4.6-36 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ und Variation des NaCl-Gehaltes	135
Tab. 4.6-37 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und $^{238}\text{Pu}$ , Variation des $\text{NaHCO}_3$ -Gehaltes	136
Tab. 4.6-38 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Söhlde-1-Wasser, Variation der Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen	136
Tab. 4.6-39 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Str.670-Wasser, Variation der Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen	137
Tab. 4.6-40 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Söhlde-1-Wasser, Variation der Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen	137
Tab. 4.6-41 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Str.670-Wasser, Variation der Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen	138
Tab. 4.6-42 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Sorp 5, Variation der Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen	139
Tab. 4.6-43 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Sorp 7, Variation der Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen	140
Tab. 4.6-44 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Sorp 9, Variation der Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen	141
Tab. 4.6-45 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Sorp 10, Variation der Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen	142
Tab. 4.6-46 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Söhlde-1-Wasser, Variation des pH-Wertes	143
Tab. 4.6-47 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Str.670-Wasser, Variation des pH-Wertes	143
Tab. 4.6-48 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Söhlde-1-Wasser, Variation des pH-Wertes	144
Tab. 4.6-49 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Str.670-Wasser, Variation des pH-Wertes	144
Tab. 4.6-50 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Koge-Proben unter anaeroben Bedingungen	145
Tab. 4.6-51 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und Sorp-Proben unter anaeroben Bedingungen	146



	Seite
Tab. 4.6-52 Sorptionsexperimente mit $^{99}\text{Tc}$ und Sorp-Proben unter anaeroben Bedingungen	146
Tab. 4.6-53 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , Rhotomagensis Pläner und Söhle-1-Wasser, Variation der Temperatur	147
Tab. 4.6-54 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Rhotomagensis Pläner und Söhle-1-Wasser, Variation der Temperatur	147
Tab. 4.6-55 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Lamarcki Pläner und Söhle-1-Wasser, Variation der Temperatur	148
Tab. 4.6-56 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Kimmeridge und Str.670-Wasser, Variation der Temperatur	148
Tab. 4.6-57 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Heersumer Schichten und Str.670-Wasser, Variation der Temperatur	149
Tab. 4.6-58 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , U/M Cenoman und Str.-670-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	149
Tab. 4.6-59 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , Kimmeridge und Str.-670-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	150
Tab. 4.6-60 Sorptionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ , Kimmeridge und Str.-670-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	150
Tab. 4.6-61 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Lamarcki Pläner und Söhle-1-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	151
Tab. 4.6-62 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Lamarcki Pläner und Söhle-1-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	151
Tab. 4.6-63 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , Kimmeridge und Str.-670-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	152
Tab. 4.6-64 Sorptionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und Sorp-Proben, Variation der Radionuklidkonzentration	152
Tab. 4.6-65 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ , Lamarcki Pläner und Söhle-1-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	153
Tab. 4.6-66 Sorptionsexperimente mit $^{241}\text{Am}$ , Kimmeridge und Str.670-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	153
Tab. 4.6-67 Sorptionsexperimente mit $^{99}\text{Tc}$ , Sorp 5 und Hils-2-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	154

	Seite
Tab. 4.6-68 Sorptionsexperimente mit $^{99}\text{Tc}$ , Sorp 7 und Ort-300-Wasser, Variation der Radionuklidkonzentration	154
Tab. 4.6-69 Kolloiduntersuchungen an $^{237}\text{Np}$ im Eluat der Säulen. Konzentration in Abhängigkeit von der Filterporengröße	155
Tab. 4.6-70 Kolloiduntersuchungen an $^{239}\text{Pu}$ in Quartär-, Söhlde-1- und Str.670-Wasser. Konzentration in Abhängigkeit von der Filterporengröße	155
Tab. 4.6-71 Kolloiduntersuchungen an $^{239}\text{Pu}$ und $^{241}\text{Am}$ in Quartär-, Söhlde-1- und Str.670-Wasser. Sorptionskoeffizienten in Abhängigkeit von der Filterporengröße	156
Tab. 4.6-72 Kolloiduntersuchungen an $^{241}\text{Am}$ in Söhlde-1- und Str.-670-Wasser. Konzentration in Abhängigkeit von der Filterporengröße	157
Tab. 4.6-73 Kolloiduntersuchungen an $^{241}\text{Am}$ in Quartär-, Söhlde-1- und Str.670-Wasser. Konzentration in Abhängigkeit von der Filterporengröße	157
Tab. 5-1 Sorption des $^{238}\text{Pu}$ in salinem Modellwasser an Teflon	158
Tab. 5-2 Diffusionsexperimente mit Koge-Proben	158
Tab. 5-3 Diffusionsexperimente mit Sorp-Proben	159
Tab. 5-4 Ergebnisse der Diffusionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und den Koge-Proben	160
Tab. 5-5 Ergebnisse der Diffusionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ und den Koge-Proben	161
Tab. 5-6 Ergebnisse der Diffusionsexperimente mit $^{237}\text{Np}$ und den Sorp-Proben	162
Tab. 5-7 Ergebnisse der Diffusionsexperimente mit $^{238}\text{Pu}$ , $^{99}\text{Tc}$ und den Sorp-Proben	163
Tab. 6-1 Ergebnisse der Säulenexperimente	164

## 1 EINLEITUNG UND AUFGABENSTELLUNG

Zum Planfeststellungsverfahren der PTB für das Endlager für radioaktive Abfälle, Schachtanlage Konrad, wurden Untersuchungen zur Barriere Wirkung des Deckgebirges der Schachtanlage durchgeführt. Das Ziel der Arbeiten am Institut für Radiochemie der TU München war die Untersuchung des Sorptions-/Desorptionsverhaltens der Radionuklide  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  und  $^{99}\text{Tc}$  an repräsentativen Gesteinen für den Standort der Schachtanlage Konrad. Diese Untersuchungen wurden hauptsächlich in Form von Batch-Experimenten durchgeführt. Ergänzende Messungen dynamischer Verfahren, wie Diffusions- und Säulenversuche für die ausgewählten Nuklide wurden ebenfalls durchgeführt, die der Absicherung der von Batchversuchen gewonnenen Daten dienen sollen.

Die von der FU-Berlin sowie von der Firma ECS gelieferten Gesteinsproben und Grundwässer hatten vorher nicht miteinander in Berührung gestanden und mußten nach einem vorgegebenen Schema zur Einstellung des geochemischen Gleichgewichts zwischen Gestein und Wasser in Kontakt gebracht, d. h. konditioniert werden.

Durch Äquilibration mit den o. g. Radionukliden und radiometrische Konzentrationsbestimmung war deren Löslichkeit in den verschiedenen konditionierten Grundwässern zu bestimmen. Mit den auf diese Weise mit den Nukliden konditionierten Grundwässern und den mit Grundwässern konditionierten Gesteinen wurden die Sorptions-/Desorptionsuntersuchungen durchgeführt. Dabei war der Einfluß folgender Parameter einzubeziehen:

- Kontaktzeit
- Lösungsvolumen-Feststoff-Oberflächenverhältnis
- Lösungsvolumen-Feststoff-Masseverhältnis (V/m)
- NaCl-Konzentration
- $\text{NaHCO}_3$ -Konzentration
- Komplexbildnerkonzentration
- pH-Wert

- Redoxpotentiale der Lösung
- Umgebungstemperatur
- Konzentration der Radionuklide
- Kolloideinfluß

Aus den Ergebnissen dieser Untersuchungen sollen, unter Berücksichtigung der Ergebnisse aus ähnlichen Gorleben-Untersuchungen, belastungsfähige Migrationsdaten abgeleitet werden.

Die Sorptionsdaten der einzelnen Radionuklide für die unbeeinflussten Sediment/Grundwasser-Systeme sind in den Tabellen 1-1 bis 1-4 zusammengefaßt. Diese Daten bilden die Basis für die Modellrechnungen zur Radionuklidenausbreitung der betreffenden Radionuklide.

## 2 CHARAKTERISIERUNG DER VERSUCHSPROBEN

### 2.1 Bestand an Probenmaterialien

Bis Ende 1983 waren 10 Gesteinsproben in je 3 Kornfraktionen sowie einer Staubfraktion und eine Probe "Versatzmaterial" in der Fraktion 0.2 - 2 mm Korngröße geliefert worden (Tabelle 2-1, Koge 1-11). Mitte Mai 1984 wurde die Gesteinsprobe Cornbrash geliefert; ca. 150 g der Fraktion 0.2 - 2 mm, sowie ein nußgroßer Stein. Anfang August erhielten wir die Proben Quartär, sandig und Quartär, bindig (Tabelle 2-1, Koge 12 - 14). In der Zeit von März bis Juni 1985 wurden Gesteinsproben aus der Tiefenbohrung Konrad 101 geliefert (Tabelle 2-1, Sorp 1 bis Sorp 9) sowie eine Probe aus dem Grubengebäude (Tabelle 2-1, Sorp 10).

An Grundwässern waren bis Ende 1983 das nichtsaline Söhlde-1-Wasser und die salinen Wässer Sohle-5-Wasser, Hils-1-Wasser und Str.670-Wasser geliefert worden. Ende Juni 1984 erfolgte die Lieferung des nichtsalinen Quartär-Wassers. Am Anfang der Untersuchungen wurde folgende Rezeptur für ein salines Modellwasser (MW 1) vorgeschlagen:

Rezeptur für MW 1: 163 g/l NaCl, 550 mg/l KCl, 36 g/l CaCl<sub>2</sub>, 9.3 g/l MgCl<sub>2</sub>, 1.04 g/l CaSO<sub>4</sub> und 120 mg/l NaHCO<sub>3</sub>.

Für die Versuche mit den Gesteinsproben aus der Tiefenbohrung wurde bis Anfang März 1985 das nichtsaline Söhle-2-Wasser und die salinen Wässer Hils-2-Wasser und Ort-300-Wasser geliefert. Weiter wurde eine Rezeptur für ein nichtsalines Modellwasser MW 2 vorgeschlagen:

Rezeptur für MW 2: 1040 mg/l NaCl, 654.8 mg/l NaHCO<sub>3</sub>, 14.2 mg/l KCl, 3.5 mg/l K<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>, 360.4 mg/l CaCl<sub>2</sub>, 104.7 mg/l MgSO<sub>4</sub> und 6.3 mg/l MnCl<sub>2</sub>.

## 2.2 Zuordnung der Gesteinsproben zu den Wässern

Für die Koge-Gesteinsproben (Tabelle 2-1) war ursprünglich vorgesehen, das Hils-1-Wasser oder MW 1 den Gesteinsproben aus den salinen Schichten zuzuordnen. Den Gesteinsproben aus den nichtsalinen Schichten sollte eventuell destilliertes Wasser zugeordnet werden. Nach dem Auffinden von Wasser in der Strecke 670 wurde das Hils-1-Wasser durch dieses Str.670-Wasser ersetzt. Für die Gesteinsproben aus den nichtsalinen Schichten wurde ebenfalls ein passendes Wasser, das Söhle-1-Wasser, gewonnen. Im März 84 wurde auf der Besprechung in Braunschweig beschlossen, die Probe U/M Cenoman sowohl dem salinen als auch dem nichtsalinen Wasser zuzuordnen. Den Gesteinsproben aus dem Quartär ist nur Wasser aus dem Quartär zugeordnet. Hieraus ergibt sich die in Tabelle 2-1 dargestellte Zuordnung von Wässern und Gesteinsproben, die 26 kombinierte Versuchsproben ergeben.

Bei der Besprechung in Braunschweig im März 84 war weiter vereinbart worden, daß Proben, die bereits mit Hils-1-Wasser angesetzt waren, weiter bearbeitet werden sollten. Für neue Versuche mit Proben aus dem salinen Bereich sollte dagegen ausschließlich das Str.670-Wasser Verwendung finden. Das Modellwasser MW 1 sollte nicht weiter verwendet werden und damit bleibt die Verwendung von Modellwasser nur für Versatzmaterial.

Die Zuordnung der Sorp-Gesteinsproben zu den Wässern wie sie von der PTB vorgeschlagen wurde ist ebenfalls aus der Tabelle 2-1 ersichtlich. Tabelle 2-2 zeigt die Zuordnung von Koge-Proben zu Sorp-Proben (nach Angaben der PTB).

### 3 ÜBERSICHT ÜBER DEN STAND DER EXPERIMENTE

Im folgenden wird eine Übersicht über durchgeführte Versuche gegeben. Für die Gesteine wird dabei die in Tabelle 2-1 angegebene interne Bezeichnung verwendet.

#### 3.1 Vorbereitung für Sorptionsuntersuchungen

3.1.1 Konditionierung einzelner Wässer mit der Staubfraktion der zugeordneten Gesteine zur Einstellung des geochemischen Gleichgewichts (>4 Wochen)

---

Quartärwasser	mit Koge 13 und Koge 14
bidest. Wasser	mit Koge 1-4
Söhlde-1-Wasser	mit Koge 1-4
MW 1	mit Koge 8
Hils-1-Wasser	mit Koge 5-7 und Koge 9-11
Str.670-Wasser	mit Koge 4-12
0.01 M NaCl	mit Koge 1-4, Koge 6 und Koge 11
0.1 M NaCl	mit " " " "
1.0 M NaCl	mit " " " "
4.6 M NaCl	mit Koge 6 und Koge 11
5.4 M NaCl	mit Koge 1-4
Söhlde-2-Wasser	mit Sorp 1
MW 2	mit Sorp 2
Hils-2-Wasser	mit Sorp 3-5
Ort-300-Wasser	mit Sorp 6, 7, 9 und 10

---

### 3.1.2 Konditionierung der Gesteine mit nach 3.1.1 konditionierten Wässern (>4 Wochen)

---

Koge 13 u. 14	Fraktion F	mit konditioniertem Quartär-Wasser
Koge 1-4,	Fraktion F, M, G	mit konditioniertem Söhlde-1-Wasser
Koge 1-4,	Fraktion F	mit konditioniertem bidest. Wasser
Koge 5-7,	Fraktion F, M, G	mit konditioniertem Hils-1-Wasser
Koge 9-11,	Fraktion F, M, G	mit konditioniertem Hils-1-Wasser
Koge 4,	Fraktion F	mit konditioniertem Str.670-Wasser
Koge 5-7,	Fraktion F, M, G	mit konditioniertem Str.670-Wasser
Koge 8,	Fraktion F	mit konditioniertem Str.670-Wasser
Koge 9-11,	Fraktion F, M, G	mit konditioniertem Str.670-Wasser
Koge 12,	Fraktion F	mit konditioniertem Str.670-Wasser
Koge 1-4,	Fraktion F	mit kond. 0.01, 0.1, 1.0 und 5.4 M NaCl
Koge 6 u. 11,	Fraktion F	mit kond. 0.01, 0.1, 1.0 und 4.6 M NaCl
Sorp 1	Fraktion M	mit konditioniertem Söhlde-2-Wasser
Sorp 2	Fraktion M	mit konditioniertem MW 2
Sorp 3-5	Fraktion M	mit konditioniertem Hils-2-Wasser
Sorp 6 u. 7	Fraktion M	mit konditioniertem Ort-300-Wasser
Sorp 9 u. 10	Fraktion M	mit konditioniertem Ort-300-Wasser

---

3.1.3 Äquilibrierung der Nuklide mit nach 3.1.1 konditionierten Wässern für Löslichkeitsbestimmungen und Sorptionsuntersuchungen unter aeroben Bedingungen

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	äquilibriert mit
Quartär	Koge 13 u. 14	Np* Pu* Am
bidest.	Koge 1-4	Np* - Am
Söhlde 1	Koge 1-4	Np* Pu* Am*
MW 1	Koge 8	Np* Pu* Am
Hils 1	Koge 5-7	Np* Pu Am
Hils 1	Koge 9-11	Np* Pu Am
Str.670	Koge 4	Np* Pu* -
Str.670	Koge 5-7	Np* Pu* Am*
Str.670	Koge 9-11	Np* Pu* Am*
Str.670	Koge 8 u. 12	Np* Pu* -
0.01 M NaCl	Koge 2-4	Np* Pu* -
0.1 M NaCl	Koge 2-4	Np* Pu* -
1.0 M NaCl	Koge 2-4	Np* Pu* -
5.4 M NaCl	Koge 2-4	Np* Pu* -
0.01 M NaCl	Koge 6 u. 11	- - Am
0.1 M NaCl	Koge 6 u. 11	- - Am
1.0 M NaCl	Koge 6 u. 11	- - Am
4.6 M NaCl	Koge 6 u. 11	- - Am
Söhlde 2	Sorp 1	Np* Pu* -
MW 2	Sorp 2	Np* - -
Hils 2	Sorp 3 u. 4	Np* - -
Hils 2	Sorp 5	Np* Pu* Tc
Ort 300	Sorp 6	Np* - -
Ort 300	Sorp 7 u. 10	Np* Pu* Tc
Ort 300	Sorp 9	Np* Pu* -

\* Löslichkeitsbestimmungen und Sorptionsexperimente; Zugabe als  $\text{NpO}_2\text{OH}$ ,  $\text{PuO}_2$  bzw.  $\text{Am}(\text{OH})_3$  im Überschuß. Übrige Proben nur Sorptionsuntersuchungen; Zugabe der Nuklide in untergesättigter Konzentration.



3.1.4 Äquilibrierung der Nuklide mit nach 3.1.1 konditionierten Wässern für Löslichkeitsbestimmungen und Sorptionsuntersuchungen unter anaeroben Bedingungen

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	äquilibriert mit
Söhlde 1	Koge 4	Np* -
Str.670	Koge 4-6	Np* -
Str.670	Koge 11	Np* -
Hils 2	Sorp 5	Np* Tc
Ort 300	Sorp 7	Np* Tc
Ort 300	Sorp 9-10	Np* -

\* Löslichkeitsbestimmungen und Sorptionsexperimente; Zugabe als  $\text{NpO}_2\text{OH}$  im Überschuß. Übrige Proben nur Sorptionsuntersuchungen; Zugabe der Nuklide in untergesättigter Konzentration.

3.1.5 Löslichkeitsbestimmungen in nichtkonditionierten Wässern unter aeroben Bedingungen

Wasser	Aktinoidverbindung			
	$\text{NpO}_2\text{OH}$	$\text{NpO}_2$	$\text{PuO}_2$	$\text{AmO}_2$
Söhlde 1	$\text{NpO}_2\text{OH}$	$\text{NpO}_2$	$\text{PuO}_2$	$\text{AmO}_2$
Hils 1	"	-	"	"
Str.670	"	$\text{NpO}_2$	"	"
MW 1	"	-	"	"

## 3.2 Sorptionsuntersuchungen

## 3.2.1 Sorptionsexperimente mit den Feinfraktionen der nichtsalinen Proben unter aeroben Bedingungen (je drei Parallelversuche)

Gestein	Söhlde-1-			bidest.-		Quartär-		
	Wasser			Wasser		Wasser		
Koge 1	Np	Pu	Am	Np	Am	-	-	-
Koge 2	Np	Pu	Am	Np	Am	-	-	-
Koge 3	Np	Pu	Am	Np	Am	-	-	-
Koge 4	Np	Pu	Am	Np	Am	-	-	-
Koge 13	-	-	-	-	-	Np	Pu	Am
Koge 14	-	-	-	-	-	Np	Pu	Am

## 3.2.2 Sorptionsexperimente mit den Feinfraktionen der salinen Proben unter aeroben Bedingungen (je drei Parallelversuche)

Gestein	Hils-1-Wasser			Str.670-Wasser			MW 1
	Koge 4	-	-	-	Np	Pu	
Koge 5	Np	Pu	-	Np	Pu	Am	Pu
Koge 5*	-	Pu	-	-	-	-	-
Koge 6	Np	Pu	Am	Np	Pu	Am	Pu
Koge 7	Np	Pu	Am	Np	Pu	Am	Pu
Koge 7*	-	Pu	Am	-	-	-	-
Koge 8	-	-	-	Np	Pu	-	Pu
Koge 9	Np	Pu	-	Np	Pu	Am	Pu
Koge 10	Np	Pu	-	Np	Pu	Am	Pu
Koge 11	Np	Pu	Am	Np	Pu	Am	Pu
Koge 12	-	-	-	Np	Pu	-	-

\* Gestein nicht gewaschen, Staub- und Feinfraktion

3.2.3 Sorptionsexperimente mit den Mittelfractionen der Proben aus der Tiefenbohrung unter aeroben Bedingungen (je drei Parallelversuche)

Gestein	Wasser	Nuklid		
Sorp 1	Söhlde 2	Np	-	-
Sorp 2	MW 2	Np	-	-
Sorp 3	Hils 2	Np	-	-
Sorp 4	Hils 2	Np	-	-
Sorp 5	Hils 2	Np	Pu	Tc
Sorp 6	Ort 300	Np	-	-
Sorp 7	Ort 300	Np	Pu	Tc
Sorp 9	Ort 300	Np	Pu	-
Sorp 10	Ort 300	Np	Pu	-

3.2.4 Sorptionsexperimente mit den Grobfraktionen der nichtsalinen Proben unter aeroben Bedingungen (je drei Parallelversuche)

Gestein	Söhlde-1-Wasser	
Koge 1	Np	Pu
Koge 2	Np	Pu
Koge 3	Np	Pu
Koge 4	Np	Pu

### 3.2.5 Sorptionsexperimente mit den Grobfraktionen der salinen Proben unter aeroben Bedingungen (je drei Parallelversuche)

Gestein	Hils-1-Wasser		Str.670-Wasser		
Koge 5	-	Pu	Np	Pu	-
Koge 6	Np	Pu	Np	-	Am
Koge 7	Np	Pu	Np	Pu	Am
Koge 9	-	-	Np	Pu	-
Koge 10	-	-	Np	Pu	-
Koge 11	Np	Pu	Np	Pu	Am

### 3.2.6 Einfluß des V/m-Verhältnisses auf die Sorption

Proben: Koge 5, Koge 7 und Str.670-Wasser

Nuklide:  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$

Proben: Koge 12, Str.670-Wasser

Nuklid:  $^{238}\text{Pu}$

Proben: Koge 2, Koge 4 und Söhlde-1-Wasser

Nuklid:  $^{237}\text{Np}$

V/m: 3.2, 7.3, 28 und 140

je 2 bzw. 3 Parallelproben

### 3.2.7 Einfluß der NaCl-Konzentration auf die Sorption

Proben: Koge 1, Koge 2, Koge 4 und Söhlde-1-Wasser

NaCl-Konzentrationen: 5.4, 1.0, 0.1 und 0.01 mol/l

Nuklide:  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$

Proben: Koge 6, Koge 11 und bidest. Wasser  
 NaCl-Konzentrationen: 4.6, 1.0, 0.1 und 0.01 mol/l  
 Nuklid:  $^{241}\text{Am}$   
 je 3 Parallelproben

### 3.2.8 Einfluß der Carbonatkonzentration auf die Sorption

Proben: Koge 1 und Söhlde-1-Wasser  
 $\text{NaHCO}_3$ -Konzentrationen:  $10^{-1}$ ,  $10^{-2}$  und  $10^{-3}$  mol/l  
 Nuklide:  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$   
 je 3 Parallelproben

### 3.2.9 Einfluß von Komplexbildnern auf die Sorption

Proben: Koge 1, Koge 3 und Söhlde-1-Wasser  
 Koge 5 und Str.670-Wasser  
 Komplexbildner: EDTA, Natriumcitrat, Natriumlaurylsulfat und  
 Maranilpaste  
 Konzentrationen:  $10^{-3}$ ,  $10^{-4}$ ,  $10^{-5}$  und  $10^{-6}$  mol/l  
 Nuklide:  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$

#### 3.2.9.1 Einfluß von Komplexbildnern auf die Sorption

Proben: Sorp 5 und Hils-2-Wasser  
 Sorp 7, Sorp 9, Sorp 10 und Ort-300-Wasser  
 Komplexbildner: EDTA, Natriumcitrat und Maranilpaste  
 Konzentrationen:  $10^{-2}$ ,  $10^{-3}$ ,  $10^{-4}$ ,  $10^{-5}$  und  $10^{-6}$  mol/l  
 Nuklid:  $^{238}\text{Pu}$

### 3.2.10 Einfluß des pH-Wertes der Ausgangslösung auf die Sorption

Proben: Koge 4 und Söhlde-1-Wasser

Koge 9 und Str.670-Wasser

pH-Werte der Ausgangslösungen: 4 bis 9. Pro Probe 3 pH-Werte

Nuklide:  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$

je 3 Parallelproben

### 3.2.11 Einfluß der Temperatur auf die Sorption

Proben: Koge 2 und Söhlde-1-Wasser

Temperaturen: 8, 23 und 50 °C

Nuklid:  $^{237}\text{Np}$

Proben: Koge 2, Koge 3 und Söhlde-1-Wasser

Koge 5 ,Koge 11 und Str.670-Wasser

Temperaturen: 8, 23 und 50 °C

Nuklid:  $^{238}\text{Pu}$

je 3 Parallelproben

### 3.2.12 Einfluß der Radionuklidkonzentration auf die Sorption

Proben: Koge 4, Koge 5 und Str.670-Wasser

Verdünnung 1:1, 1:5, 1:10 und 1:40

Nuklid:  $^{237}\text{Np}$

V/m: 3 und 15

je 2 Parallelproben

Proben: Koge 3 und Söhlde-1-Wasser

Koge 5 und Str.670-Wasser

Verdünnung: 1:1, 1:10 und 1:100

Nuklide:  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$

je 2 Parallelproben

Proben: Sorp 5 und Hils-2-Wasser  
Sorp 7, Sorp 9, Sorp 10 und Ort-300-Wasser  
Verdünnung: 1:1, 1:10 und 1:100  
Nuklid:  $^{238}\text{Pu}$

Proben: Sorp 5 und Hils-2-Wasser  
Sorp 7 und Ort-300-Wasser  
Verdünnung: 1:1, 1:10, 1:100 und 1:1000  
Nuklid:  $^{99}\text{Tc}$   
je 3 Parallelproben

### 3.2.13 Einfluß des Eh-Wertes auf die Sorption

Proben: Koge 4, Koge 5, Koge 6, Koge 11 und Str.670-Wasser  
Nuklid:  $^{237}\text{Np}$

Proben: Sorp 5 und Hils-2-Wasser  
Sorp 7, Sorp 9, Sorp 10 und Ort-300-Wasser  
Nuklid:  $^{237}\text{Np}$

Proben: Sorp 5 und Hils-2-Wasser, Sorp 7 und Ort-300-Wasser  
Nuklid:  $^{99}\text{Tc}$   
je 3 Parallelproben

### 3.2.14 Einfluß von Kolloiden auf die Sorption

Proben: Sorp 5 und Hils-2-Wasser  
Sorp 7, Sorp 9, Sorp 10 und Ort-300-Wasser  
Filtration über 450, 30 und 2 nm  
Nuklid:  $^{238}\text{Pu}$

## 3.3 Diffusionsuntersuchungen nach schwedischem Modell

Gesteinsprobe	Wasser	Element	Zahl der Proben
Koge 3 u. 4	Söhlde 1	Neptunium	2
Sorp 1	Söhlde 2	Neptunium	1
Sorp 2	MW 2	Neptunium	1
Sorp 3 bis Sorp 5	Hils 2	Neptunium	3
Koge 5 bis 7 u. 9 bis 12	Str.670	Neptunium	8
Sorp 6 bis Sorp 10	Ort 300	Neptunium	7
Koge 3 u. 4	Söhlde 1	Plutonium	4
Sorp 5	Hils 2	Plutonium	1
Koge 5 bis 7 u. 9 bis 12	Str.670	Plutonium	8
Sorp 7 , Sorp 9 u. Sorp 10	Ort 300	Plutonium	3
Sorp 5	Hils 2	Technetium	1
Sorp 7 und Sorp 8	Ort 300	Technetium	2

## 3.4 Säulenversuche

Gesteinsprobe	Wasser	Element
Koge 2 bis 4	Söhlde 1	Neptunium
Koge 5 bis 7 und 9 bis 12	Str.670	Neptunium
Sorp 7	Ort 300	Neptunium
Koge 5 und Koge 12	Str.670	Plutonium



## 4 ERGEBNISSE DER SORPTIONSUNTERSUCHUNGEN

### 4.1 Grundwasser-Analysen

Die physikalischen Größen der Ausgangswässer sind in Tabelle 4.1-1 aufgetragen. Die Makro- und Mikrobestandteile der verschiedenen Wässer wurden mittels ICP, NAA und HPIC analysiert. Die Analysenergebnisse der nicht konditionierten Konrad-Wässer sind in den Tabellen 4.1-2 bis 4.1-4 aufgeführt. Bei unterschiedlichen Ergebnissen der verschiedenen Analysemethoden für einzelne Elemente sind die vertrauenswürdigeren Werte in den Tabellen unterstrichen. Die Analysendaten für die Grundwasserinhaltsstoffe sollen dazu dienen, das Sorptions- sowie Löseverhalten der Aktinoide in diesen Medien zu interpretieren. Außerdem sollte im Bedarfsfall nach diesen Analysen synthetisches Wasser hergestellt werden.

Die Analysendaten der 10 Monate lang mit Gesteinsstaub konditionierten Söhldel-1- und bidest. Wässer (Tabelle 4.1-5) zeigen, daß die Konditionierung einen erheblichen Einfluß auf den Gehalt an Grundwasserinhaltsstoffen, z. B.  $\text{Ca}^{2+}$   $\text{Sr}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{3+}$ , hat. Zum Vergleich sind in der Tabelle die entsprechenden Analysendaten des nicht konditionierten Söhldel-1-Wassers mit aufgeführt. Der Ca-Gehalt liegt bei allen Proben mit Ausnahme von Lamarcki Pläner - bidest. Wasser in der vergleichbaren Größe und ist gegenüber dem Ausgangswert des Söhldel-1-Wassers mehr als die Hälfte niedriger. Der Na-Gehalt ist bei den Söhldel-1-Wässern fast unverändert gegenüber dem Ausgangswert. Die bidest. Wässer erreichen diesen Wert nicht. Die Mg, Sr und Ba-Werte sind je nach Probe und Wasser verschieden. Der Fe-Gehalt nimmt stets durch Ausfällung bis zur Löslichkeitskonzentration ab.

### 4.2 Vorbereitung der Löslichkeitsbestimmungen und Sorptionsexperimente

Da die Gesteinsproben, bis auf die Quartär-Proben im trockenen Zustand geliefert wurden und vorher keinen Kontakt zu Grundwässern hat-

## KONDITIONIERUNG

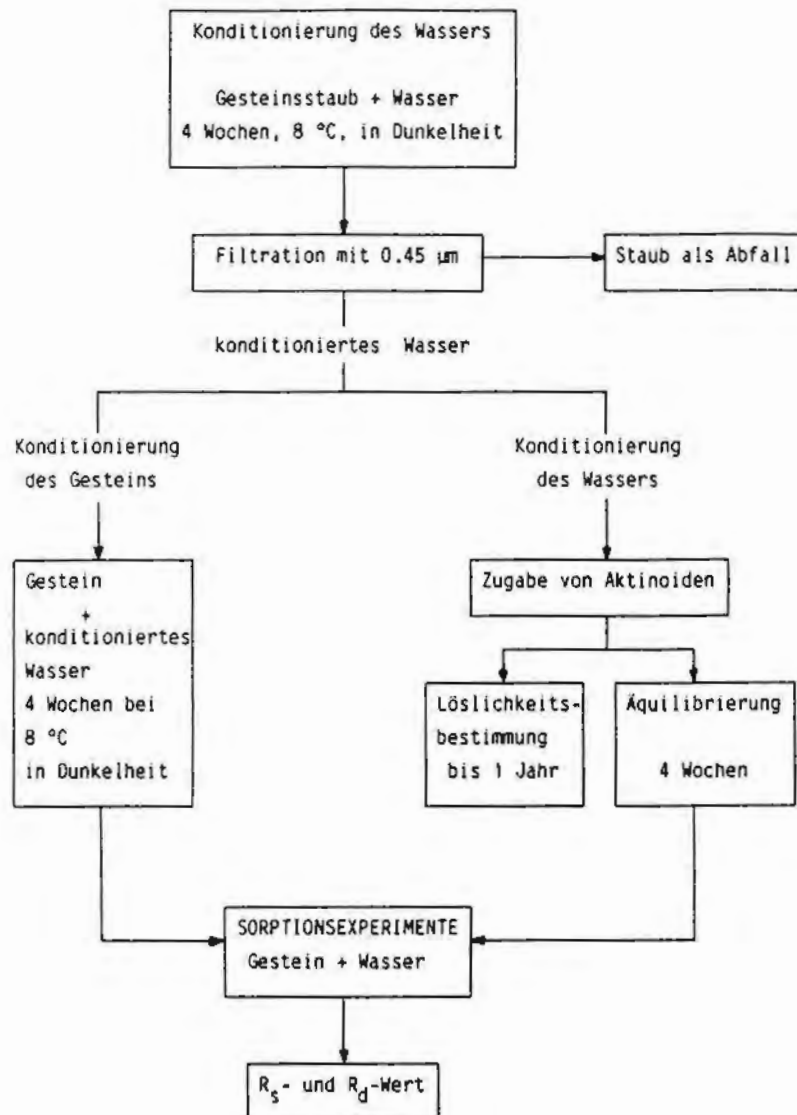


Abb. 4-1: Konditionierung

ten, war es erforderlich, sowohl die Gesteinsproben als auch die Grundwässer vor den eigentlichen Versuchen miteinander in Kontakt zu bringen und zu konditionieren. Für das Vorgehen bei der Konditionierung war ein vom Arbeitskreis bestimmtes Schema vorgegeben, nach dem alle an den Untersuchungen beteiligten Gruppen die Konditionierung vornehmen sollten. In Abbildung 4-1 ist der Verlauf der Konditionierung schematisch dargestellt. Nach Konditionierung der Wässer mit der

Staubfraktion (im Bedarfsfall auch mit den Feinfraktionen) der Gesteine über 4 Wochen erfolgte die Konditionierung der feinen sowie der größeren Gesteinsfraktionen. Gleichzeitig wurde zur Löslichkeitsbestimmung ein Teil der konditionierten Wässer mit Aktinoidoxiden oder -hydroxiden äquilibriert. Mit den konditionierten Gesteinen und den äquilibrierten Wässern wurden die Untersuchungen durchgeführt.

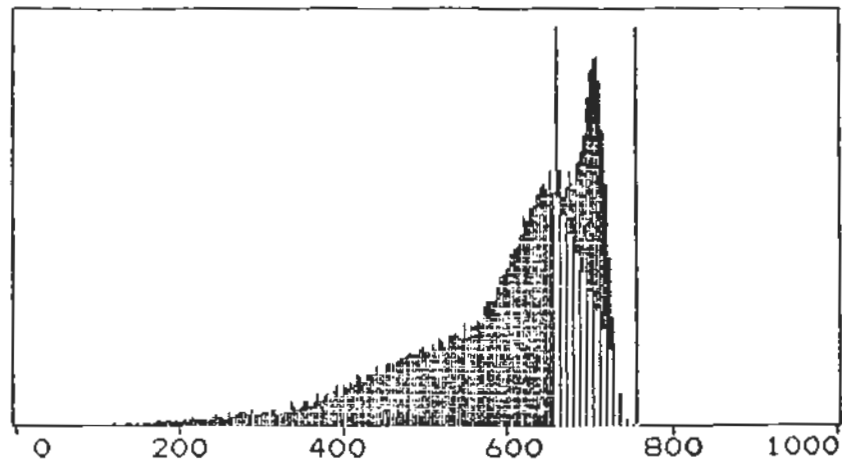
Für Technetium wurde, wegen der hohen Löslichkeit von  $\text{TcO}_4^-$  die mehrere Größenordnungen über der für das Grubengebäude angenommenen maximalen Tc-Konzentration liegt, keine Löslichkeitbestimmungen durchgeführt.

#### 4.3 Radiometrische Konzentrationsbestimmung

Die Ausgangsaktivitäten  $^{237}\text{Np}$  und  $^{241}\text{Am}$  und  $^{99}\text{Tc}$  waren isotopenrein, die Zusammensetzung des Plutoniums betrug: 94.40 %  $^{238}\text{Pu}$ , 5.32 %  $^{239}\text{Pu}$ , 0.26 %  $^{240}\text{Pu}$ , 0.015 %  $^{241}\text{Pu}$  und 0.004 %  $^{242}\text{Pu}$ .

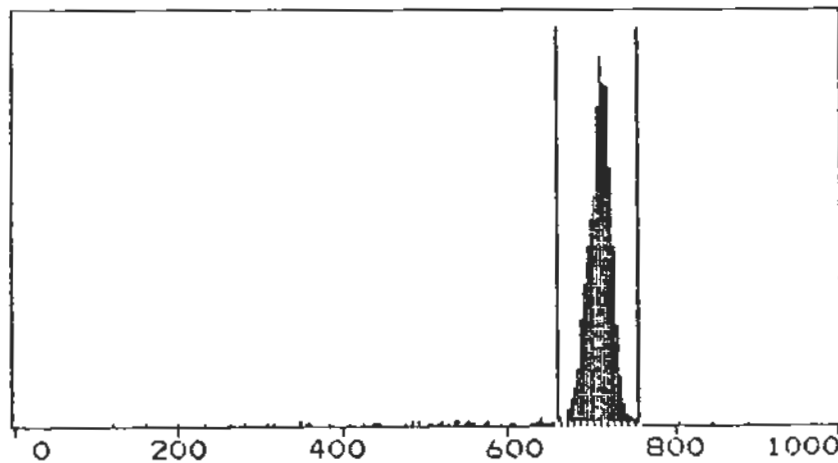
Zur Ermittlung der Konzentration der Nuklide in den Versuchswässern, je nach Versuch Löslichkeitsbestimmung oder Sorptionsexperiment wurden den Wässern unfiltrierte oder/und mit 0.45  $\mu\text{m}$  filtrierte Proben entnommen. Die Konzentration wurde radiometrisch mittels Flüssigszintillationszählung bestimmt.

Bei der Bestimmung der  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in Wässern durch Flüssigszintillationszählung könnte es durch das Auftreten des  $\beta$ -aktiven Tochternuklids  $^{233}\text{Pa}$  mit einer Halbwertszeit von 27 Tagen zu erheblichen Unsicherheiten kommen. Der Grund hierfür ist keine eindeutige spektroskopische Trennung zwischen  $\alpha$ - und  $\beta$ -Zählrate. Die Frage, ob eine sichere Konzentrationsbestimmung von  $^{237}\text{Np}$  bei den Sorptionsuntersuchungen durch Flüssigszintillationsspektrometrie möglich ist, wurde daher näher untersucht. Es wurde gezeigt, daß keine Störung durch das Tochternuklid  $^{233}\text{Pa}$  auftritt wenn die zu messenden Proben zwecks Phasentrennung über 450 nm filtriert wurden. Das  $^{233}\text{Pa}$ , das zur Kolloidbildung sehr stark neigt und leicht an Fest- und Schweb-



CURSOR (LM):	CH 660	(RM):	CH 756		
COUNTS (WINDOW) >>	16988 <<	37.9%	CFM:	849.4	
NETTO COUNTS >>	7213 <<		CFM:	360.65	
COUNTS TOTAL:	44790	CPM TOTAL:	2239.5		
MESSZEIT:	20 MIN				

Abb. 4-2: Flüssigszintillationsspektrum von  $^{237}\text{Np}$  in Str.670-Wasser, unfiltrierte Probe



CURSOR (LM):	CH 660	(RM):	CH 756		
COUNTS (WINDOW) >>	4199 <<	93.8%	CPM:	209.95	
NETTO COUNTS >>	4099 <<		CPM:	204.95	
COUNTS TOTAL:	4478	CPM TOTAL:	223.9		
MESSZEIT:	20 MIN				

Abb. 4-3: Flüssigszintillationsspektrum von  $^{237}\text{Np}$  in Str.670-Wasser, Probe über 0.45 µm  
filtriert

stoffen sorbiert, wird mit diesen abfiltriert. In den Abbildungen 4-2 und 4-3 ist dieser Effekt veranschaulicht. Das Flüssigszintillationspektrum einer nichtfiltrierten  $^{237}\text{Np}$  Probe zeigt in Abbildung 4-2, daß die  $\alpha$ - und  $\beta$ -Aktivitäten stark überlappen. Bei der filtrierten Probe (Abb. 4-3), ist nur noch ein  $\alpha$ -Peak festzustellen (bei beiden Darstellungen wurde jeweils das gleiche Untergrundspektrum abgezogen). Der gleiche Filtrationseffekt wurde bei allen untersuchten Wässern gefunden. Die Meßproben wurden immer sofort nach der Filtration gemessen um die Nachbildung von  $^{233}\text{Pa}$  zu vermeiden.

#### 4.4 Löslichkeitsbestimmungen

Die Löslichkeit der Aktinoide wurde hauptsächlich in vorkonditionierten Wässern bestimmt (Tabellen 4.4-1 bis 4.4-7). Um den Einfluß der Konditionierung der Wässer mit Gesteinsproben auf die Löslichkeit der Nuklide zu untersuchen, wurden auch Löslichkeitsversuche in nichtkonditionierten Wässern durchgeführt (Tabellen 4.4-8 bis 4.4-11). Die in den Tabellen mit "a" und "b" bezeichneten Proben sind Parallelproben. Die mit "c" bezeichneten Proben in Tabelle 4.4-1 wurden besonders behandelt (siehe Kapitel 4.4.1).

##### 4.4.1 Löslichkeitsbestimmungen des $^{237}\text{Np}$

Zur Bestimmung der Löslichkeit des Neptuniums wurde den vorkonditionierten Wässern festes  $\text{NpO}_2\text{OH}$  zugesetzt (Tabellen 4.4-1 bis 4.4-4). In nichtkonditionierten Wässern wurde zum Vergleich auch Löslichkeitsversuche mit festem  $\text{NpO}_2$  durchgeführt (Tabelle 4.4-8). Bei den Hilswasserproben, die mit Kimmeridge sowie mit Fladentonstein konditioniert waren, zeigten sich nach zwei Wochen Standzeit Eisenhydroxidausfällungen. Um zu prüfen, ob diese Ausfällungen durch Mitfällung des Neptuniums einen Einfluß auf die Neptuniumkonzentration in der Lösung haben könnten, wurde ein Teil der Lösungen über 450 nm abfiltriert und wieder mit festem  $\text{NpO}_2\text{OH}$  versetzt. Diese Proben sind in der Tabelle mit "c" bezeichnet. Ein Unterschied in der Nuklidkonzentration zu den entsprechenden a- und b-Proben ist nicht feststellbar.

Die Eisenhydroxidausfällung scheint demnach keinen Einfluß auf die Neptuniumkonzentration in den Lösungen zu haben, die festes  $\text{NpO}_2\text{OH}$  enthalten. Eisenhydroxidausfällungen treten auch in den Str.670-Wässern auf, mit Ausnahme der Wässer, die mit Liegendem Erz konditioniert wurden. Die Ausfällungen haben bei den Wässern wohl nur den Einfluß, daß dadurch die Gleichgewichtseinstellung verzögert wird. Im konditionierten Quartär- und Söhlde-Wasser sind keine Ausfällungen zu beobachten. In allen Wässern steigen die Konzentrationen der Nuklide mit der Zeit noch an. Da die unfiltrierten Proben noch  $^{233}\text{Pa}$  beinhalten, können nur die Werte aus der Filtration als die Löslichkeiten betrachtet werden. Der Unterschied zwischen den Daten von filtrierten und unfiltrierten Proben (Tabellen 4.4-1 u. 4.4-2) bedeutet jedoch nicht die Kolloidbildung des gelösten  $\text{NpO}_2^+$ -Ions.

In Quartär-Wasser wurde eine Neptuniumkonzentration von  $4.5 \times 10^{-6}$  bis  $7.1 \times 10^{-6}$  mol/l gefunden (Tabelle 4.4-2). Die Löslichkeit von  $\text{NpO}_2\text{OH}$  in dem konditionierten Söhlde-Wasser liegt im Bereich von  $1.3 \times 10^{-6}$  (Tabelle 4.4-4) bis  $1.2 \times 10^{-5}$  mol/l (Tabelle 4.4-2). In nichtkonditioniertem Söhlde-Wasser war bei der vergleichbaren Zeit eine etwas höhere Konzentration von  $2.3 \times 10^{-5}$  mol/l zu beobachten (Tabelle 4.4-9). Dagegen löste sich  $\text{NpO}_2$  nur zu  $3.7 \times 10^{-7}$  mol/l in nichtkonditioniertem Söhlde-Wasser (Tabelle 4.4-8). In schwach salinem Modellwasser MW 2 wurde eine Löslichkeit des Neptuniums von  $4.1 \times 10^{-6}$  mol/l ermittelt (Tabelle 4.4-3). Die Löslichkeit von  $\text{NpO}_2\text{OH}$  in konditionierten salinen Wässern betrug  $7.8 \times 10^{-7}$  bis  $3.1 \times 10^{-5}$  mol/l (Tabellen 4.4-2 und 4.4-3). In nichtkonditioniertem Str.670-Wasser löste sich  $\text{NpO}_2$  zu  $2.64 \times 10^{-5}$  mol/l (Tabelle 4.4-8). Unter anaeroben Bedingungen (siehe Kapitel 4.6.11) findet man in Söhlde-Wasser eine Konzentration des Neptuniums von ca.  $3 \times 10^{-8}$  mol/l. In den salinen Wässern findet man Konzentrationen von  $4 \times 10^{-8}$  bis  $8.1 \times 10^{-6}$  mol/l (Tabelle 4.4-4).

In der Literatur wird eine Löslichkeit für  $\text{Np(V)}$  unter oxidierenden Bedingungen von  $2.0 \times 10^{-7}$  mol/l angegeben [1]. Unter reduzierenden Bedingungen werden wesentlich niedrigere Werte von  $1.0 \times 10^{-18}$  bis

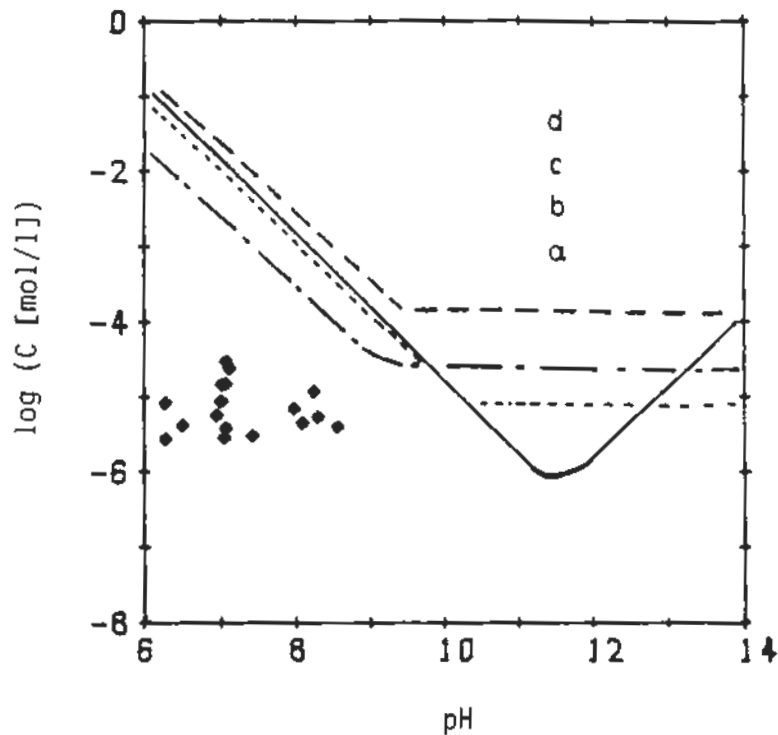


Abb. 4-4: Löslichkeit von Np(V) in Konrad-Wässern in Abhängigkeit vom pH des Wassers.  
 a) Löslichkeit nach [6]; b) Löslichkeit nach [7]; c) Löslichkeit nach [8];  
 d) Löslichkeit nach [9]

$1.1 \times 10^{-10}$  mol/l gefunden [1, 2, 3 und 4]. In [5] ist eine Gleichung für das Gleichgewicht



angegeben:

$$E_0 = 0.564 + 0.059 \log(\text{NpO}_2^+) \quad (4-2)$$

Die Löslichkeit von Np(V) in Abhängigkeit vom pH des Wassers wird in [6, 7, 8 und 9] die auch Hydrolyseprodukte des Np(V) berücksichtigen, angegeben. In Abbildung 4-4 sind die Löslichkeitskurven der 4 Autoren, die für oxidierende Bedingungen gelten ( $E_h > 0.5$  V), zusammen mit unseren Meßwerten aufgetragen. In Abbildung 4-5 ist die Löslichkeit von  $\text{NpO}_2^+$  in Abhängigkeit vom Redoxpotential des Wassers nach Glei-

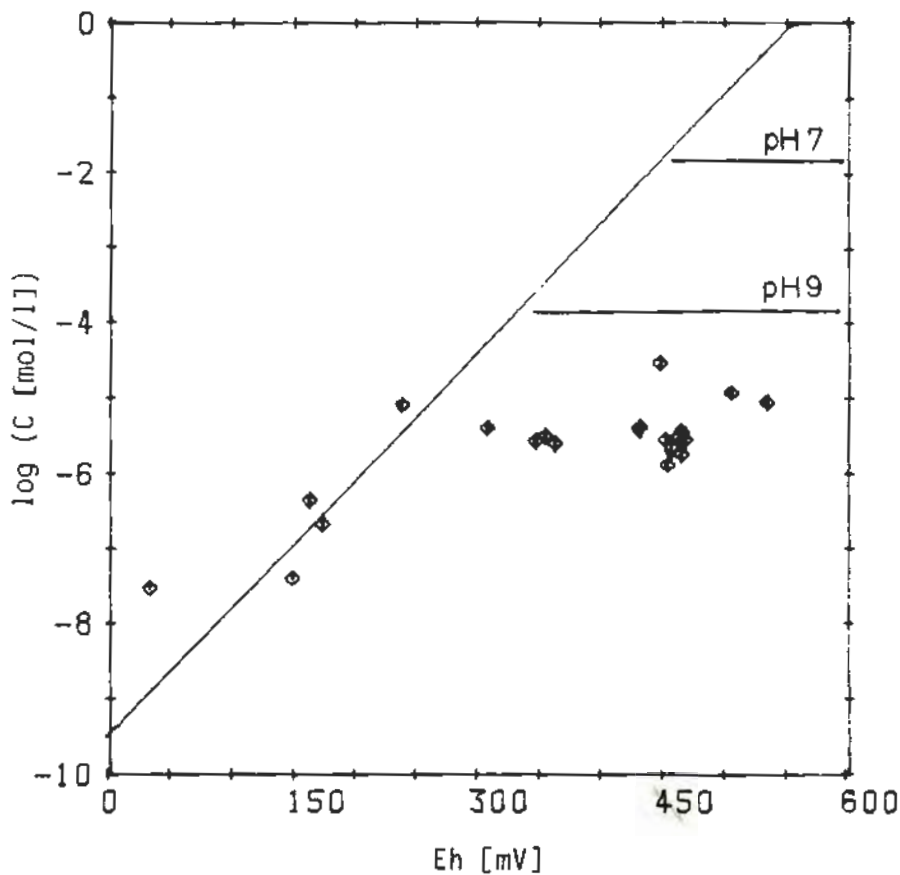


Abb. 4-5; Löslichkeit von  $NpO_2OH$  in Konrad-Wässern in Abhängigkeit vom Redoxpotential der Wässer. Durchgezogene schräge Linie: Löslichkeit nach [5]; Waagerechte Linien: Löslichkeit in Abhängigkeit des pH-Wertes nach [6]

chung (4-2) aufgetragen (schräge Linie). Weiter sind die Löslichkeiten von  $Np(V)$  nach [6] bei  $pH 7$  und bei  $pH 9$  (waagerechte Linien) eingezeichnet, wobei die Hydrolyseprodukte, bei  $pH 9$  und weniger, keinen nennenswerten Beitrag zur Löslichkeit des  $Np(V)$  leisten. Die Punkte geben einen repräsentativen Teil unserer Meßwerte wieder. Hiernach liegen unsere Werte mit 3 Ausnahmen unter den angegebenen Löslichkeiten.



#### 4.4.2 Löslichkeitsbestimmungen des $^{238}\text{Pu}$

Zur Bestimmung der Löslichkeit von Plutonium in den verschiedenen Konrad-Wässern wurden den Wässern  $\text{PuO}_2$  in fester Form zugesetzt. Die ermittelten Konzentrationen des Plutoniums in vorkonditionierten Wässern sind in den Tabellen 4.4-5 und 4.4-6 aufgetragen, die Konzentrationen in nichtkonditionierten Wässern in Tabelle 4.4-10. Die Konzentrationen von  $^{238}\text{Pu}$  lagen bei den konditionierten Wässern im Bereich von  $1 \times 10^{-8}$  bis  $1.2 \times 10^{-6}$  mol/l. In nichtkonditioniertem Hils- und Str.670-Wasser war die Konzentration wesentlich niedriger. Dies kann auf Eisenhydroxidausfällungen in diesen Wässern, an denen das Nuklid sorbiert, zurückgeführt werden (dies gilt auch für  $^{241}\text{Am}$  Experimente). Die Konzentration in nichtkonditioniertem Söhlde-Wasser ist bei der vergleichbaren Zeit ähnlich hoch wie in konditioniertem. Die Unterschiede zwischen unfiltrierten und filtrierten Proben (Tabellen 4.4-5) deuten auf eine Kolloidbildung hin. Auf Kolloidbildung wird in einem späteren Kapitel näher eingegangen.

#### 4.4.3 Löslichkeitsbestimmung des $^{241}\text{Am}$

Zu je 100 ml der vorkonditionierten Söhlde-1- und Str.670-Wässer wurde 1.5 ml  $^{241}\text{Am}$  in 0.1 M HCl ( $7.6 \times 10^{-4}$ ) zugesetzt. Wegen der Pufferkapazität der einzelnen Wässer wurden die originalen pH-Werte durch Zugabe von sauren aktiven Lösungen nicht beeinträchtigt (s. Tab. 4.4-7). Vergleichsweise wurden auch Löslichkeitsversuche mit festem  $\text{AmO}_2$  in nichtkonditioniertem Wasser durchgeführt (Tabelle 4.4-11).

Die Konzentrationen von  $^{241}\text{Am}$  liegen bei den konditionierten Wässern im Bereich von  $2.0 \times 10^{-7}$  bis  $5.5 \times 10^{-6}$  mol/l (Tabelle 4.4-7). Bei den Versuchen mit festem  $\text{AmO}_2$  wurde eine etwas niedrigere  $^{241}\text{Am}$  Konzentration als bei den Versuchen mit  $\text{Am}(\text{OH})_3$  gefunden. In nichtkonditioniertem Hilswasser war die  $^{241}\text{Am}$ -Konzentration bedingt durch Eisenhydroxidausfällungen wesentlich niedriger.

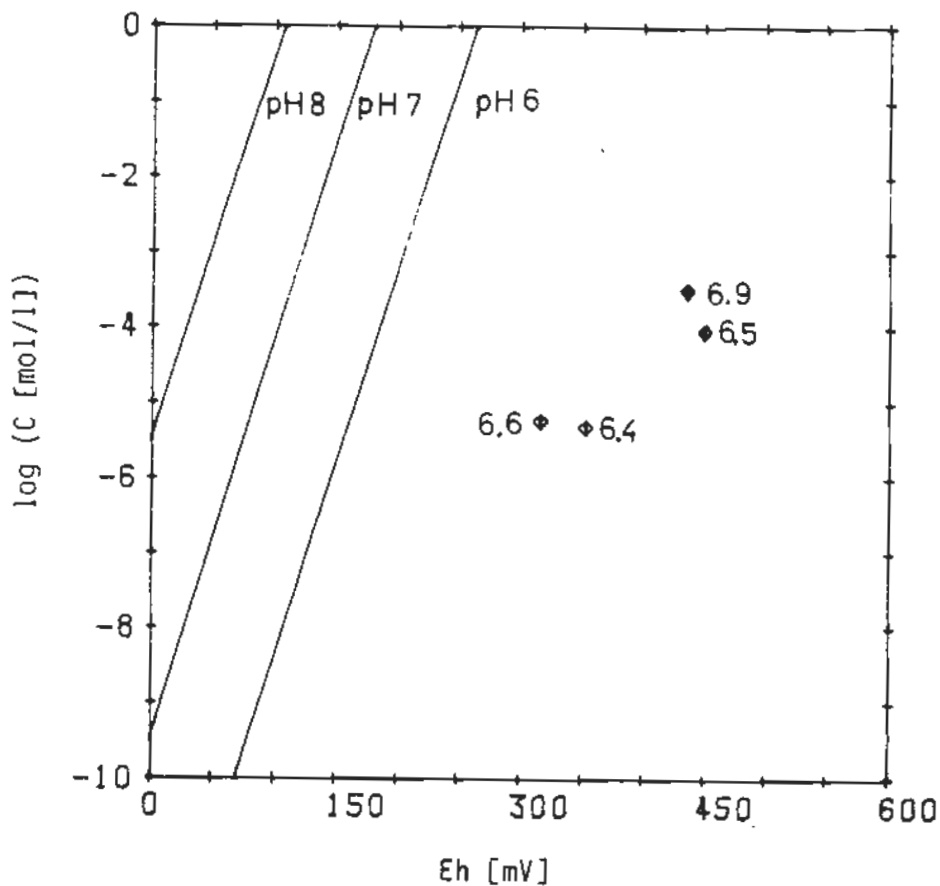
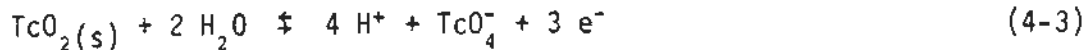


Abb. 4-6: Technetiumkonzentration in den für die Sorptionsexperimente verwendeten Wässern. Die Zahlen beziehen sich auf den pH-Wert der Wässer. Durchgezogene Linien: Löslichkeit von  $\text{TcO}_4^-$  in Abhängigkeit von Eh und pH des Wassers nach [5].

#### 4.4.4 Zur Löslichkeit des $^{99}\text{Tc}$

Löslichkeitsbestimmungen des Technetiums wurden von uns nicht durchgeführt, da die für die Grube Konrad angenommenen maximalen Tc-Konzentrationen bei lediglich  $4 \times 10^{-7} \text{ mol/l}$  liegen [17] (vorläufiger Wert auf der Basis eines Modellvolumens von  $5 \times 10^5 \text{ m}^3$ ) und die Löslichkeit von  $\text{TcO}_4^-$  nach Lit. [10] für oxidierende Umgebungsbedingungen mit  $11 \text{ mol/l}$  angegeben wird. Die von uns für die Versuche verwendeten Tc-Konzentrationen lagen im Bereich von  $9 \times 10^{-8}$  bis  $3 \times 10^{-4} \text{ mol/l}$  (Tabellen 4.6-67 und 4.6-68). Die Löslichkeit von Tc ist allerdings abhängig vom Redoxpotential sowie vom pH des Wassers. In [5] findet man eine Gleichung für das Gleichgewicht



in Abhängigkeit von Eh und pH des Wassers:

$$E_0 = 0.738 - 0.0788 \text{ pH} + 0.0197 \log(\text{TcO}_4^-) \quad (4-4)$$

Da die Löslichkeit von  $\text{TcO}_2$  sehr gering ist, nach [2] beträgt die Löslichkeit von  $\text{TcO}_2$   $10^{-14}$  mol/l und nach [3]  $10^{-12}$  mol/l, wird aus (4-4) die Löslichkeitskonzentration von Tc erhalten. In Abb. 4-6 sind die von uns verwendeten Tc-Konzentrationen in Abhängigkeit von dem gemessenen Redoxpotentialen der Wässer aufgetragen. Die Zahlen an den Meßpunkten sind die jeweiligen pH-Werte der Wässer. Zum Vergleich sind die Gleichgewichtskonzentrationen nach Gleichung (4-4) für pH 6, pH 7 und pH 8 eingezeichnet. Nach dieser Darstellung könnte es, bei den vorgegebenen Tc-Konzentrationen, bei Eh-Werten unter 0.1 V, je nach dem pH des Wassers, zu  $\text{TcO}_2$  Ausfällungen kommen. In den von uns untersuchten stark salinen Wässern waren unter Laborbedingungen keine derart niedrigen Eh-Werte zu beobachten.

#### 4.5 Stabilitätsuntersuchungen

Die Stabilität von Aktivlösungen ohne Aktivbodensatz, wurden zur Feststellung der Sorption an Gefäßoberflächen sowie Nachfällungen, unter gleichen Bedingungen der Sorptionsexperimente untersucht. Im Gegensatz zu den Sorptionsproben wurden diese Proben aber nicht geschüttelt, sondern einfach stehen gelassen. Die Ergebnisse sind in den Tabellen 4.5-1 bis 4.5-24 aufgeführt. Aus diesen Daten werden Aussagen zur Stabilität der Nuklide in den Wässern gewonnen, die für die Beurteilung des Sorptionsverhaltens benötigt werden. Durch die Stabilitätsuntersuchungen soll sichergestellt werden, daß nicht die Nuklidkonzentrationen in den Stabilitätsproben genau so stark abfallen wie zu Beginn der Sorptionsexperimente in den entsprechenden Sorptionsproben. Wenn dies ausgeschlossen werden kann, wird das Verhalten der Stabilitätsproben für die Auswertung der Sorptionsproben nicht weiter berücksichtigt, da in den Stabilitätsproben aufgrund der

fehlenden Pufferwirkung des Gesteins sich mit der Zeit andere pH/Eh-Verhältnisse einstellen können als in den Sorptionsproben, insbesondere bei schwach salinen Wässern. Bei einigen der  $^{237}\text{Np}$  Proben fiel auf, daß die Aktivität im Laufe der Zeit anstieg. Dies kann darauf zurückgeführt werden, daß  $^{233}\text{Pa}$  nachgebildet wird, welches noch nicht an abfiltrierbaren Kolloiden sorbiert werden kann, da die Wässer filtriert waren und sich größere Kolloide offenbar noch nicht nachgebildet hatten. Dieses Problem besteht bei den Löslichkeitsexperimenten mit  $\text{NpO}_2\text{OH}$ -Bodensatz und Sorptionsversuchen an Gesteinsproben nicht in dem Maße, da bei diesen Versuchen genügend sorptionsfähige Oberflächen vorhanden sind. Die Neptuniumkonzentrationen, in den Tabellen 4.5-1 bis 4.5-6 für 1 bis 6 Wochen alte Proben, wurden daher dem nachgebildeten  $^{233}\text{Pa}$  entsprechend korrigiert. Bei den älteren Proben konnte das  $^{233}\text{Pa}$  wieder abfiltriert werden.

Bei diesen Untersuchungen fällt auf, daß eine Abhängigkeit der Stabilität von der Art des Wassers besteht. In Quartär-Wasser ist  $^{237}\text{Np}$  anfangs einigermassen stabil, nach 40 Wochen ist die Konzentration aber auf unter 1 % der Anfangskonzentration abgefallen (Tabelle 4.5-1). Das  $^{238}\text{Pu}$  ist in Quartär-Wasser noch instabiler (Tabelle 4.5-7).  $^{241}\text{Am}$  ist wesentlich stabiler, die Konzentration beträgt nach 40 Wochen noch 40 % der Ausgangskonzentration (Tabelle 4.5-12). Die Konzentrationen von  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  in Söhle-Wasser (Tabellen 4.5-3, 4.5-8 und 4.5-14) sind nach ca. 30 Wochen auf unter 1 % der Anfangskonzentration abgefallen. In konditioniertem bidest. Wasser sind die Aktinoide wesentlich stabiler (Tabellen 4.5-2 und 4.5-13). Die  $^{237}\text{Np}$ -Konzentration beträgt nach 30 Wochen ca. 100 % der Anfangskonzentration, die von  $^{241}\text{Am}$  6 bis 11 %.

In stark salinem Str.670-Wasser ist die Stabilität der Aktinoide ebenfalls gut (Tabellen 4.5-5, 4.5-10 und 4.5-16). Die Konzentrationen betragen für  $^{237}\text{Np}$  60 bis 100 %, für  $^{238}\text{Pu}$  17 bis 92 % und für  $^{241}\text{Am}$  ca. 90 % der Anfangskonzentration (mit Ausnahme der Heersumer Schichten).  $^{99}\text{Tc}$  ist in Hils-2-Wasser und Ort-300-Wasser stabil (Tabelle 4.5-17).

Die Abhängigkeit der Stabilität der Aktinoide von der NaCl-Konzentration der Wässer (Tabellen 4.5-18 und 4.5-19) ist nach 5 Wochen Versuchsdauer noch nicht bei allen Proben ausgeprägt. Für  $^{237}\text{Np}$  zeigt sich die erwartete Tendenz, daß die Aktinoiden mit zunehmendem NaCl-Gehalt stabilisiert werden nur bei den mit Rhotomagensis Pläner konditionierten Wässern. Für  $^{238}\text{Pu}$  zeigen die mit Rotpläner und Rhotomagensis Pläner konditionierten Wässer diese Abhängigkeit. Die Versuche mit  $^{241}\text{Am}$  und konditioniertem bidest. Wasser zeigen keine Abhängigkeit von der NaCl-Konzentration.

Unter anaeroben Bedingungen ist  $^{237}\text{Np}$  in den mit Koge-Proben vorkonditionierten Str.670-Wasser stabil (Tabelle 4.5-20) und in Hils-2-Wasser das mit der Gesteinsprobe Sorp 5 vorkonditioniert wurde ebenfalls. In Ort-300-Wasser welches mit den Gesteinsproben Sorp 7 bzw. Sorp 10 vorkonditioniert wurden ist die Stabilität geringer. Die Konzentration nach 12 Wochen beträgt nur noch 20 % der Anfangskonzentration (Tabelle 4.5-21). Technetium ist unter anaeroben Bedingungen in salinem Hils-2- und Ort-300-Wasser stabil (Tabelle 4.5-22).

Die Stabilität von  $^{237}\text{Np}$  in Söhlde-Wasser zeigt eine Abhängigkeit von der Temperatur (Tabelle 4.5-23) und nimmt mit zunehmender Temperatur ab. Nach 18 Wochen sind bei 8 °C Umgebungstemperatur noch ca. 20 % der Ausgangskonzentration vorhanden, bei 50 °C weniger als 1 %. Für  $^{238}\text{Pu}$  ist diese Tendenz weniger ausgeprägt (Tabelle 4.5-24).

#### 4.6 Sorptionsexperimente

Für die Sorptionsexperimente wurden die mit den Gesteinen konditionierten und mit den Radionukliden äquilibrierten Grundwässer nach Filtration über 450 nm mit konditioniertem Gestein (s. Abb. 4-1) in Kontakt gebracht; Mengenverhältnis 14 ml Wasser und ca. 7 g Gestein (Naßgewicht). Durch Aktivitätsmessung in der flüssigen Phase (Filtration über 450 nm) wird der

$$\text{Sorptionskoeffizient} = \frac{\text{Aktinoidmenge je 1 g Gestein}}{\text{Aktinoidmenge je cm}^3 \text{ Wasser}} \quad (4-5)$$

bestimmt. Der Sorptionskoeffizient  $R_S$  berechnet sich aus der Konzentrations-Mengenbilanz nach G. (4-6):

$$R_S = \frac{C_S}{C_1} \cdot 10^3 = \frac{(C_{0,1} - C_1) \cdot v}{C_1 \cdot m} = \frac{(A_0 - A) \cdot v}{A \cdot m} \quad (4-6)$$

- $R_S$  = Sorptionskoeffizient [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]
- $C_S$  = Radionuklidkonzentration der festen Phase (Gestein) [ $\text{mol/g}$ ]
- $C_1$  = Radionuklidkonzentration in der Lösung (Wasser) [ $\text{mol/l}$ ]
- $C_{0,1}$  = Anfangskonzentration in der Lösung [ $\text{mol/l}$ ]
- $A$  = Aktivität in der Lösung [ $1/\text{min}$ ]
- $A_0$  = Anfangsaktivität in der Lösung [ $1/\text{min}$ ]
- $v$  = Lösungsvolumen [ $\text{cm}^3$ ]
- $m$  = Trockenmasse der festen Phase [ $\text{g}$ ]

Geht man von inaktiven aber konditionierten Grundwässern und radionuklidhaltigem Gestein aus, erhält man in analoger Weise den Desorptionskoeffizienten  $R_d$ . Im Falle eines reversiblen Sorptionsgleichgewichtes gilt  $R_S = R_d = K_d$  (Verteilungskoeffizient); bei irreversibler Sorption wird  $R_d > R_S$ .

Die Bestimmung von Desorptionskoeffizienten erfolgt in praxi durch Ersatz der flüssigen Phase von Sorptionsexperimenten durch frisches, radionuklidfreies Grundwasser. Bei Proben, die einen hohen  $R_S$ -Wert und somit eine sehr geringe Radionuklidkonzentration in der flüssigen Phase aufweisen, erscheint eine Umstellung von Sorption auf Desorption nicht sinnvoll, da hier nur eine inaktive Lösung gegen eine gleichartige inaktive Lösung ausgetauscht würde. Die Umstellung von Sorption auf Desorption ist nur bei solchen Proben sinnvoll, die einen kleinen  $R_S$ -Wert aufweisen und bei denen die Nuklidkonzentration der flüssigen Phase im Gleichgewichtszustand noch genügend über der

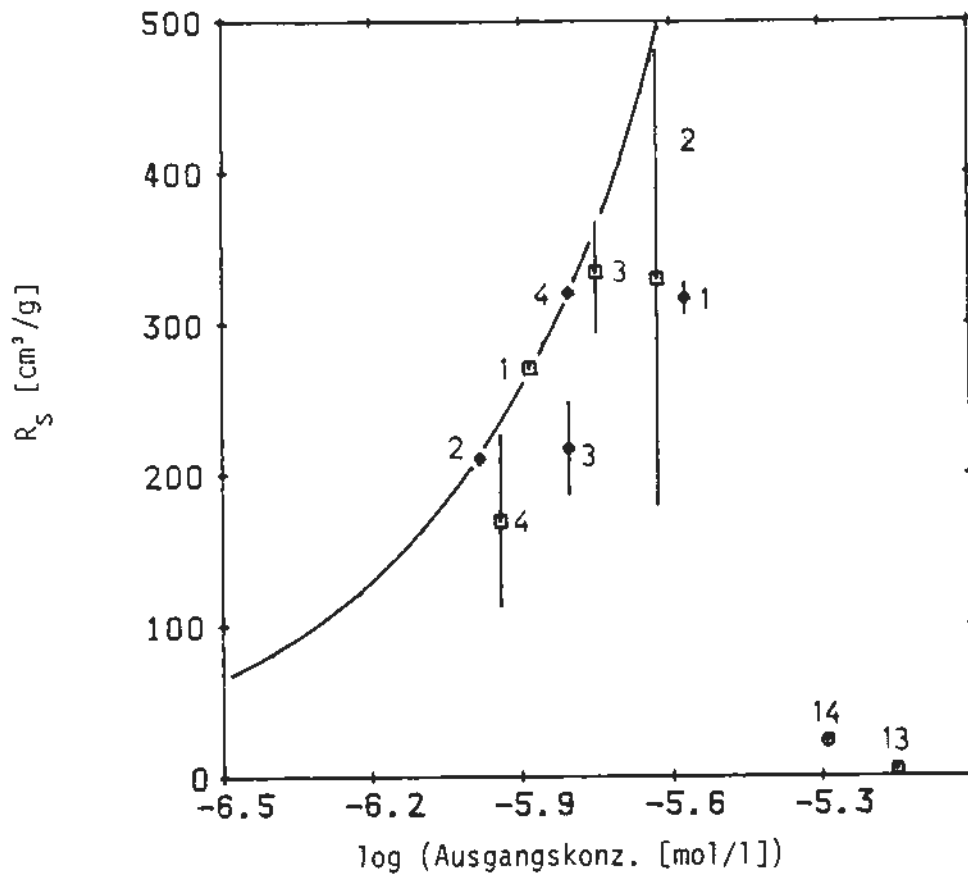


Abb. 4-7: Sorptionskoeffizienten von  $^{237}\text{Np}$  in Süßwasser und den Feinfraktionen der Gesteinsproben Koge 1 bis 4 sowie Koge 13 und 14.

- ◆ Sorptionskoeffizienten in Sohlde-1-Wasser nach 33 Wochen
- ◻ Sorptionskoeffizienten in bidest. Wasser nach 31 Wochen
- Sorptionskoeffizienten in Quartärwasser nach 12 Wochen
- maximal meßbarer  $R_S$ -Wert in Abhängigkeit von der Ausgangskonzentration bei  $V/m = 3.2$

Nachweisgrenze der Nuklidbestimmung liegt. Letzte Bedingung ist bei den Neptunium-Sorptionsproben meist nicht erfüllt. Desorptionsversuche wurden daher in erster Linie für die Säulendurchlaufexperimente durchgeführt. In den Tabellen 4.6-1 bis 4.6-68 sind die bisher gemessenen Sorptionskoeffizienten zusammengestellt. Die Tabellen für Experimente unter anaeroben Bedingungen sind als solche gekennzeichnet. Die nicht mit "unter anaeroben Bedingungen" gekennzeichneten Tabellen beziehen sich auf Experimente unter aeroben Bedingungen.

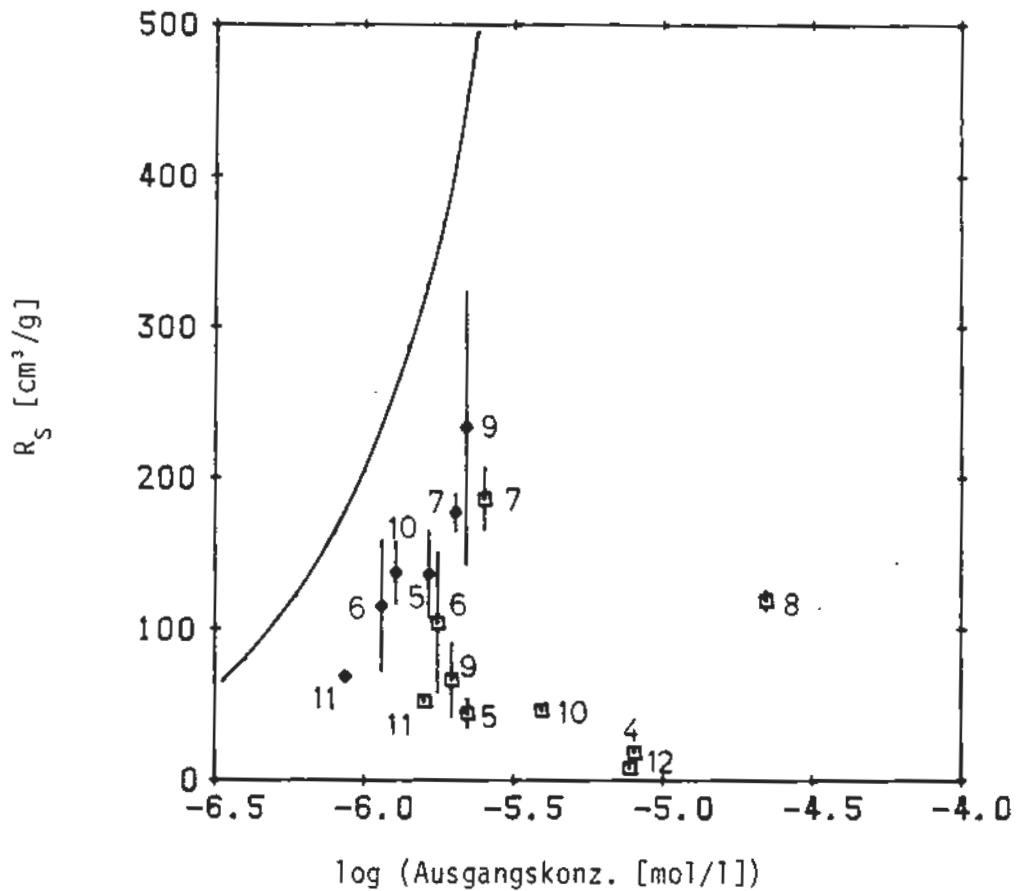


Abb. 4-8: Sorptionskoeffizienten von  $^{237}\text{Np}$  in salinem Wasser und den Feinfraktionen der Gesteinsproben Koge 4 bis 12.

- ◇ Sorptionskoeffizienten in Hils-1-Wasser nach 41/45 Wochen
- Sorptionskoeffizienten in Str.670-Wasser nach 20/38 Wochen
- maximal meßbarer  $R_s$ -Wert in Abhängigkeit von der Ausgangskonzentration bei  $V/m = 3.2$

#### 4.6.1 Nachweisgrenzen und Fehlerbetrachtung

Die Fehlerangaben in den Tabellen für Sorptionsdaten beziehen sich auf die Meßwerte der Parallelproben, d.h. es sind hier Mittelwerte und Standardabweichung der Parallelproben angegeben. In den Fällen, daß keine Parallelproben gemessen wurden, sind keine Fehlerbereiche



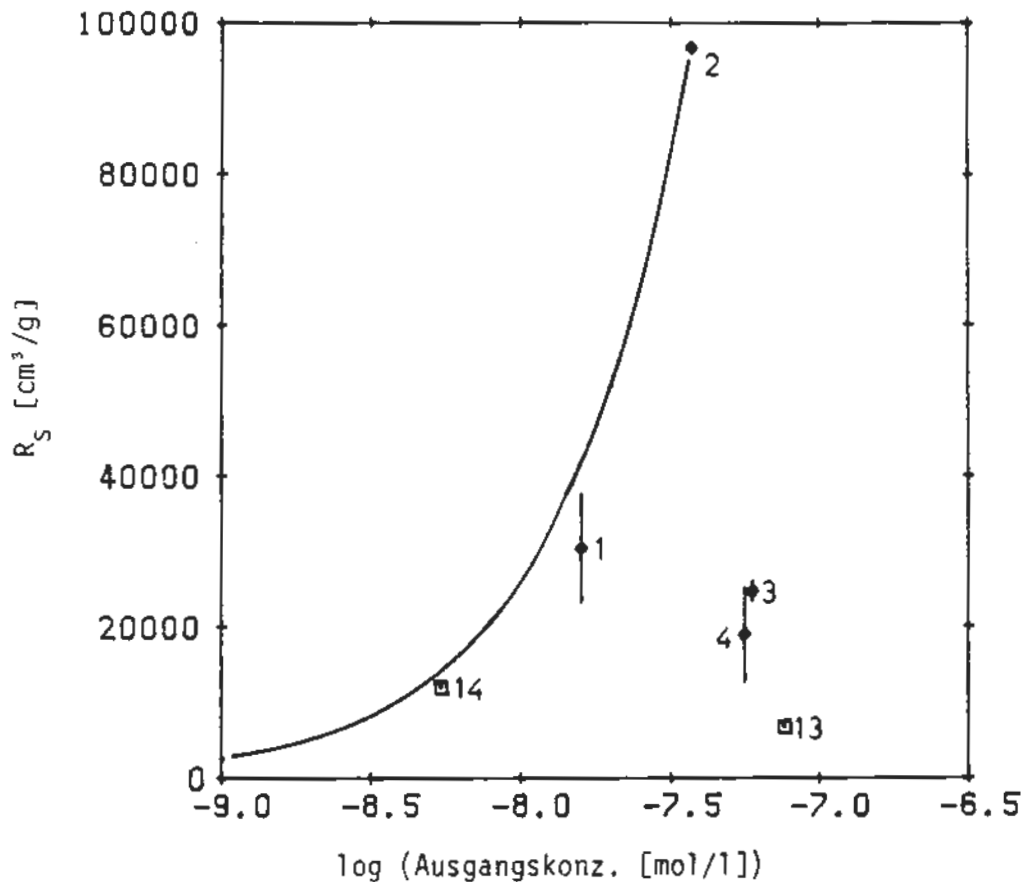


Abb. 4-9: Sorptionskoeffizienten von  $^{238}\text{Pu}$  in Süßwasser und den Feinfraktionen der Gesteinsproben Koge 1 bis 4 sowie Koge 13 und 14.

- ◇ Sorptionskoeffizienten in Söhlde-1-Wasser nach 20/32 Wochen
- Sorptionskoeffizienten in Quartär-Wasser nach 12 Wochen
- maximal meßbarer  $R_s$ -Wert in Abhängigkeit von der Ausgangskonzentration bei  $V/m = 3.2$

angegeben. Der experimentell bedingte Fehler bei den Sorptionsexperimenten liegt bei 10 % und ergibt sich aus dem Umstand, daß die Gesteinsproben zur Schonung naß eingewogen werden und der Wassergehalt der Proben geringfügigen Schwankungen unterworfen ist. Der durch die Bestimmung der Radionuklidkonzentration verursachte Fehler liegt bei der Bestimmung der Ausgangskonzentrationen, die weit über der Nachweisgrenze liegen bei ca. 1 %. Bei Sorptionsproben, bei denen die Nu-

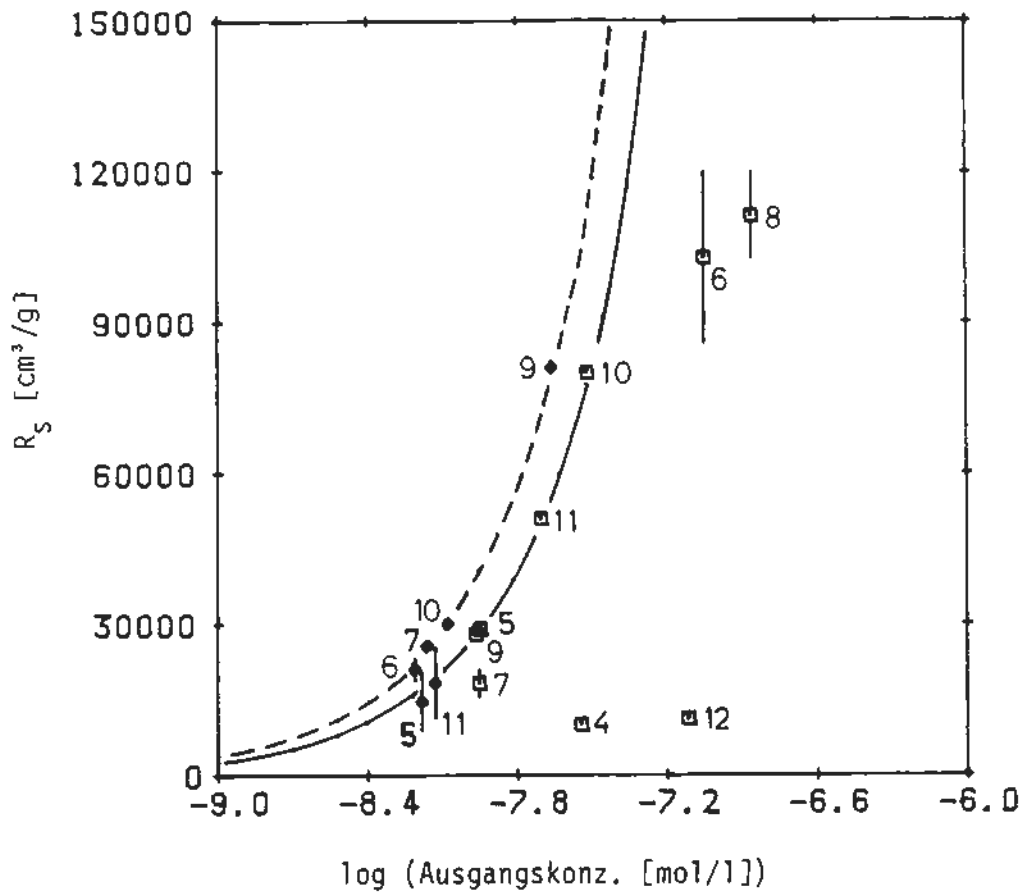


Abb. 4-10: Sorptionskoeffizienten von  $^{238}\text{Pu}$  in salinem Wasser und den Feinfraktionen der Gesteinsproben Koge 4 bis 12

◇ Sorptionskoeffizienten in Hils-1-Wasser nach 41/45 Wochen;  $V/m = 4.4$

□ Sorptionskoeffizienten in Str.670-Wasser nach 20/38 Wochen;  $V/m = 3.2$

— maximal meßbarer  $R_s$ -Wert in Abhängigkeit von der Ausgangskonzentration bei  $V/m = 3.2$

--- dto. bei  $V/m = 4.4$

klidkonzentration in der wäßrigen Phase in die Nähe der Nachweisgrenze abgesunken ist, kann der Fehler der Konzentrationsbestimmung bis 30 % betragen ( $1\sigma$ ). Dies ist bei der Interpretation von hohen Sorptionswerten zu berücksichtigen.

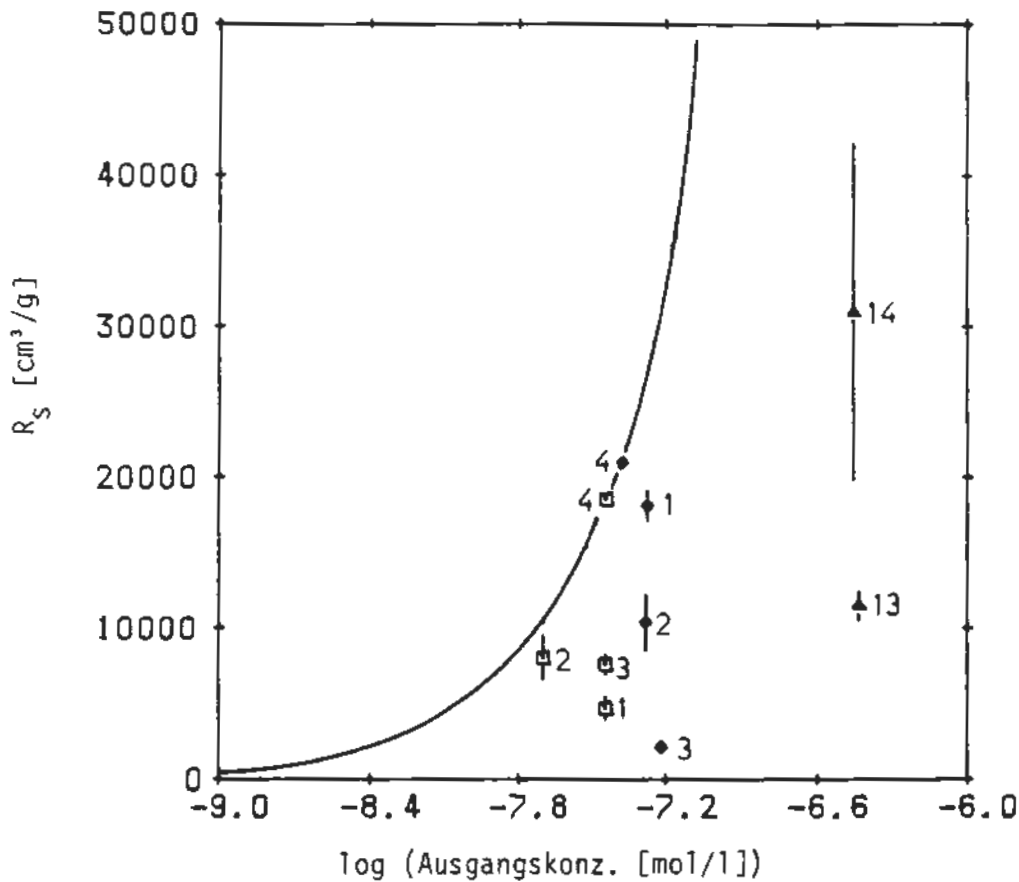


Abb. 4-11: Sorptionskoeffizienten von  $^{241}\text{Am}$  in Süßwasser und den Feinfraktionen der Gesteinsproben Koge 1 bis 4 und Koge 13 und 14.

- ◇ Sorptionskoeffizienten in Söhlede-1-Wasser nach 23/32 Wochen
- Sorptionskoeffizienten in bidest. Wasser nach 31 Wochen
- △ Sorptionskoeffizienten in Quartär-Wasser nach 12 Wochen
- maximal meßbarer  $R_S$ -Wert in Abhängigkeit von der Ausgangskonzentration bei  $V/m = 3.2$

Der größtmögliche  $R_S$ -Wert der noch bestimmt werden kann ist, bei konstantem  $V/m$ -Verhältnis, durch zwei Größen vorgegeben:

- a) durch die Ausgangskonzentration der Radionuklide in den Grundwässern
- b) durch die Nachweisgrenze der Bestimmungsmethode für die Nuklide.

Die Ausgangskonzentration der untersuchten Aktinoide ist nach oben begrenzt durch ihre Löslichkeit in den Grundwässern. Bei den Versu-

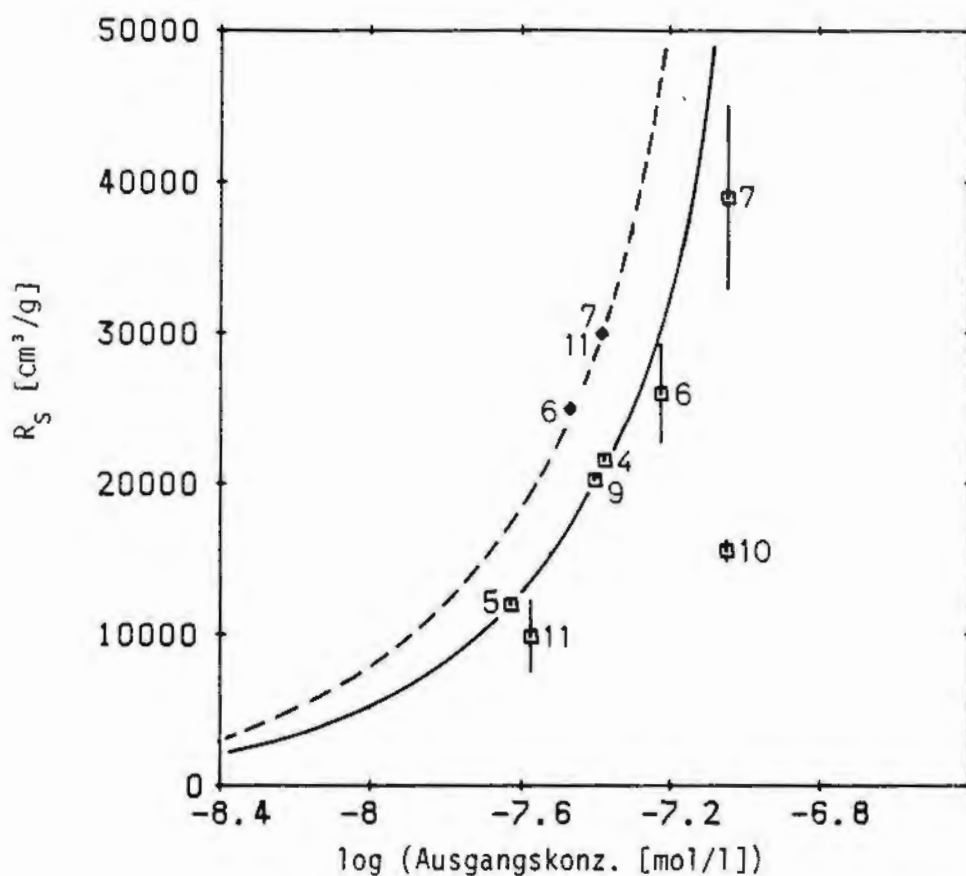


Abb. 4-12: Sorptionskoeffizienten von  $^{241}\text{Am}$  in salinem Wasser und den Feinfraktionen der Gesteinsproben Koge 4 bis 11.

◇ Sorptionskoeffizienten in Hils-1-Wasser nach 41 Wochen;  $V/m = 4.4$

□ Sorptionskoeffizienten in Str.670-Wasser nach 32/38 Wochen;  $V/m = 3.2$

— maximal meßbarer  $R_s$ -Wert in Abhängigkeit von der Ausgangskonzentration bei  $V/m = 3.2$

--- dto. bei  $V/m = 4.4$

chen wurden meist Lösungen mit niedrigeren Konzentrationen verwendet um Ausfällungen, die sich durch pH-Wert-Verschiebungen ergeben könnten, zu vermeiden. Für die drei untersuchten Aktinoidnuklide ergeben sich, bedingt durch die unterschiedliche spezifische Aktivität und Löslichkeit, verschiedene maximal meßbare  $R_s$ -Werte. In den Abbildungen 4-7 bis 4-12 sind die maximal ermittelbaren  $R_s$ -Werte als durchgezogene Kurven dargestellt. Diese Grenzen beziehen sich auf realistische Meßbedingungen, d. h. eine Meßprobenlösung von 0.2 ml und eine Meßzeit von 1 h.

#### 4.6.2 Zeitabhängigkeit der Sorption

Bei den Sorptionsexperimenten wird grundsätzlich die Zeitabhängigkeit der Sorption bestimmt, da bis zu einer Einstellung des Sorptionsgleichgewichts mit den untersuchten Aktinoiden mehrere Monate vergehen können. Bisher konnte bei den meisten der untersuchten Proben nach Versuchszeiten von 20 bis 55 Wochen noch keine Gleichgewichtseinstellung festgestellt werden. Die Konzentration der Aktinoidnuklide in der Lösung nahm in der Regel mit der Zeit noch ab, wodurch der  $R_S$ -Wert zunimmt. Bei manchen Proben nahm die Konzentration so stark ab, daß die Nachweisgrenzen der Nuklidbestimmung unterschritten wurde.

#### 4.6.3 Abhängigkeit vom Staubanteil der Gesteinsproben

Die verschiedenen Kornfraktionen der Gesteinsproben wurden vor der Konditionierung mit konditioniertem Wasser vom Staubanteil getrennt. Um festzustellen, ob dies bei den Schüttelproben überhaupt einen Einfluß hat, wurden Sorptionsversuche mit einigen Gesteinsproben durchgeführt, deren Staubanteil nicht angetrennt worden war (Tabellen 4.6-10 und 4.6-16). Nennenswerte Unterschiede zu den gewaschenen Proben konnten nicht festgestellt werden. Dies kann darauf zurückgeführt werden, daß auch innere Oberflächen der Gesteinsproben für die Sorption zur Verfügung stehen und somit Proben mit kleiner mittlerer Korngröße stets die gleiche spezifische Oberfläche aufweisen.

#### 4.6.4 Variation des Lösungsvolumen-Feststoffoberflächenverhältnisses $V/A$

Zur Variation des Volumen-Oberflächenverhältnisses wurden Sorptionsuntersuchungen mit den Feinfraktionen und mit Grobfraktionen der Gesteine durchgeführt. Die Steine der Grobfraktionen waren vor der Konditionierung gründlich mit konditioniertem Wasser gewaschen und von anhaftendem Staub befreit worden. Die Sorptionsproben der Grobfrak-

tion wurden, um Abrieb und damit eine Vergrößerung der Oberfläche zu vermeiden, nicht wie die der Feinfraktion geschüttelt, sondern einfach stehengelassen. Hierdurch wird zwar ein Abrieb vermieden, nachteilig wirkt sich jedoch aus, daß die Sorption langsamer verläuft als bei den Schüttelproben, da die Nuklide lediglich durch Diffusion an die Gesteinsoberfläche gelangen. Dahingegen sind die Zwischenräume zwischen den Steinen der Grobfraktion genügend groß, um zu gewährleisten, daß die Nuklide tatsächlich an die gesamte Oberfläche der Steine gelangen können. Die Sorptionsdaten der Grobfraktionen sind in den Tabellen 4.6-19 bis 4.6-25 zusammengestellt. Ein Vergleich der Sorption an Grob- und Feinfraktionen kann erst erfolgen, wenn eine Gleichgewichtseinstellung stattgefunden hat, d. h. wenn sich die Sorptionsdaten mit der Zeit nicht mehr, oder zumindest nicht mehr stark ändern.

In den Tabellen 4.6-26 bis 4.6-28 sind die nach 30 Wochen Kontaktzeit gemessenen  $R_s$ -Werte der Fein- und Grobfraktionen einander gegenübergestellt. Bei der Np-Sorption zeigen die Sorptionskoeffizienten von Fein- und Grobfraktion vergleichbare Größen, ohne eindeutige Unterschiede. Die Plutonium- und Americium-Untersuchungen zeigen gewisse Unterschiede, in der Regel ist  $R_s (F) > R_s (G)$ .

Wie die Diffusionsexperimente (Kapitel 5) zeigen, findet die Diffusion des Plutoniums in die meisten Gesteinsproben nur sehr langsam statt. Bei diesen Gesteinsproben steht demnach nur die Oberfläche, sowie die innere Oberfläche der obersten Gesteinsschicht, für die Sorption zur Verfügung. Bei der Feinfraktion, die einen Korndurchmesser von weniger als 2 mm aufweist, dürfte die ganze innere Oberfläche als Sorbensoberfläche gelten. Bei der Grobfraktion mit einem Korndurchmesser von 6 bis 20 mm, dürfte dahingegen nur ein Teil der inneren Oberfläche zur Verfügung stehen.

Die aktive spezifische Oberfläche in Abhängigkeit der mittleren Korngröße kann wie folgt beschrieben werden:

$$A_{\text{akt}}(r) = A_{\text{äu}}(r) + A_{\text{in}}(r) \quad (4-7)$$

$$A_{\text{äu}}(r) = \frac{F_0 \cdot r^2}{F_V \cdot r^3 \cdot \delta} \quad (4-8)$$

$$A_{\text{in}}(r) = \frac{A_f \cdot F_V \cdot (r^3 - (r-d)^3) \cdot \delta}{F_V \cdot r^3 \cdot \delta} \quad (4-9)$$

als Randbedingung gilt hierbei:  $r-d \geq 0$ .

$A_{\text{akt}}(r)$  = spezifische aktive Oberfläche (für mittleren Kornradius  $r$ )  
[cm<sup>2</sup>/g]

$A_{\text{äu}}(r)$  = spezifische äußere Oberfläche (für mittleren Kornradius  $r$ )  
[cm<sup>2</sup>/g]

$A_{\text{in}}(r)$  = spezifische aktive innere Oberfläche des Gesteins [cm<sup>2</sup>/g]

$A_f$  = spezifische innere Oberfläche des Gesteins [cm<sup>2</sup>/g]

$F_V$  = Formfaktor für Volumen

$F_0$  = Formfaktor für Oberfläche

$r$  = mittlerer Kornradius [cm]

$d$  = Schichtdicke der Diffusionsschicht [cm]

$\delta$  = Gesteinsdichte [g/cm<sup>3</sup>]

Für den Vergleich der  $R_S$ -Werte für unterschiedliche Korngrößen  $r_1$  und  $r_2$  gilt dann, unter der Voraussetzung, daß die Formfaktoren unabhängig von der Korngröße sind:

$$\frac{R_S(r_1)}{R_S(r_2)} = \frac{A_{\text{akt}}(r_1)}{A_{\text{akt}}(r_2)} \quad (4-10)$$

Für den Grenzfall  $d = 0$ , d.h. es findet keine Diffusion statt, wäre dann:

$$\frac{R_S(r_1)}{R_S(r_2)} = \frac{r_2}{r_1} \quad (4-11)$$

und für den anderen Grenzfall, daß  $r_2 - d = r_1 - d = 0$  und die innere Oberfläche groß gegenüber der äusseren Oberfläche ist, wäre:

$$\frac{R_S(r_1)}{R_S(r_2)} = 1 \quad (4-12)$$

Für die Übertragung der Labor-Sorptionsexperimente in reale geologische Systeme könnte für Nichtwasserleiter der Ansatz gemacht werden:

$$r_2 \gg r_1 \quad (4-13)$$

$$r_2 - d = r_2 \quad (4-14)$$

$$r_1 - d = 0 \quad (4-15)$$

daraus folgt:

$$\frac{R_S(r_1)}{R_S(r_2)} \rightarrow \infty \quad (4-16)$$

$$\text{und } R_S \rightarrow 0 \quad (4-17)$$

#### 4.6.5 Variation des Lösungsvolumen-Feststoffmasseverhältnisses V/m

Außer den "normalen" Sorptionsproben, darunter sind die Sorptionsproben der Feinfraktion der Gesteine mit einem V/m-Verhältnis von 3 bis 4 cm<sup>3</sup>/g zu verstehen, wurden auch Versuche mit Variation des V/m-Verhältnisses im Bereich 3 bis 140 durchgeführt (Tabellen 4.6-29 bis 4.6-33).

Das Sorptionsverhalten von Neptunium an U/M Cenoman in Söhle-Wasser



sowie an Liegendem Erz in Str.670-Wasser zeigt keine eindeutige Abhängigkeit vom V/m-Verhältnis. Die Sorptionswerte von Neptunium an Rhotomagensis Pläner in Söhlde-Wasser deuten auf eine Zunahme der Sorption mit größer werdendem V/m-Verhältnis hin. Dieser Effekt kann durch die geringe Stabilität des Neptuniums in Söhlde-Wasser (Tabelle 4.5-3) erklärt werden. Die Sorption von Neptunium an Kimmeridge in Str.670-Wasser nimmt dagegen etwas ab. Dieser Effekt kann, wie die Versuche mit Plutonium zeigen, durch Verlangsamung der Gleichgewichtseinstellung mit zunehmendem V/m-Verhältnis erklärt werden.

Die Sorptionsexperimente mit Plutonium in Str.670-Wasser zeigen für die Proben mit Kimmeridge (Tabelle 4.6-31) für Kontaktzeiten von 4 und 9 Wochen, eine Abnahme der Sorption mit zunehmendem V/m-Verhältnis. Mit länger währender Kontaktzeit verliert sich diese Abhängigkeit und deutet somit auf eine langsamere Einstellung des Gleichgewichts mit zunehmendem V/m-Verhältnis. Für die Proben mit Liegendem Erz zeigt sich eine Zunahme der Sorption mit zunehmendem V/m-Verhältnis (Tabelle 4.6-32). Wie ähnliche Untersuchungen an Gorleben-Proben zeigen [11], kann ein solches Verhalten durch Kolloidbildung erklärt werden. Geht man davon aus, daß die Konzentration der Fremdkolloide in den Wässern weitgehend unabhängig von der Gesteinseinwaage der Sorptionsprobe ist, das Plutonium zum Teil an den Grundwasserkolloiden sorbiert oder kolloidal gebunden ist und bei der Phasentrennung mit den größeren Kolloiden abfiltriert wird, so ergibt sich daraus ein höherer  $R_S$ -Wert mit größerem V/m-Verhältnis.

Die Experimente mit dem Gestein Cornbrash zeigen in der Tendenz ein ähnliches Ergebnis wie die Experimente mit dem Gestein Kimmeridge. Insgesamt findet man somit keine eindeutige Abhängigkeit der Sorption von dem V/m-Verhältnis.

#### 4.6.6 Einfluß durch Verwendung unterschiedlicher Wässer

Zu Beginn der Experimente wurde Hilswasser statt Str.670-Wasser und bidest. Wasser statt Söhlde-Wasser verwendet und man kann nunmehr ei-

ne Aussage darüber machen, inwieweit sich daraus ein Einfluß auf den Sorptionswert ergibt.

Die Sorption von Neptunium in salinem Wasser ist an den Proben Hangendes Erz, Liegendes Erz und Heersumer Schichten (Koge 6, 7 und 11) (Abbildung 4-8) in Hils- und Str.670-Wasser fast gleich. Bei den Proben Kimmeridge, Erzkalke und Fladentonstein (Koge 5, 9 und 10) sind die Sorptionswerte für das Hilswasser größer (Tabellen 4.6-4 und 4.6-5).

Für die Versuche mit Neptunium in Süßwasser (Abb. 4-7, Tabellen 4.6-2 und 4.6-3) kann keine Aussage zur Abhängigkeit der Sorptionswerte vom verwendeten Wasser gewonnen werden, da die Werte zu nahe an der Nachweisgrenze liegen. Das gleiche gilt für Plutonium (Tabellen 4.6-10 und 4.6-11) und für Americium (Tabellen 4.6-16 und 4.6-17) in salinem Wasser (Abb. 4-10 und 4-11).

Bei den Untersuchungen der Sorption von Americium in Süßwasser an den verschiedenen Gesteinsproben (Abb. 4-11, Tabellen 4.6-14 und 4.6-15) findet man unterschiedliche Abhängigkeiten. An der Probe Rotpläner (Koge 1) zeigt sich in bidest. Wasser eine geringere Sorption als in Söhlde-Wasser. Bei der Probe Lamarcki Pläner (Koge 3) ist es umgekehrt, während die Sorptionswerte für die Probe Rhotomagensis Pläner (Koge 2) für beide Wässer fast gleich sind.

Aufgrund der Konditionierung der Wässer mit den Gesteinsproben vor Versuchsbeginn scheint es insgesamt keinen allzu großen Einfluß auf die Sorptionswerte zu haben wenn statt Söhlde-Wasser das bidest. Wasser oder statt Str.670-Wasser das Hilswasser verwendet wird.

Einen größeren Einfluß kann es haben wenn statt Süßwasser salines Wasser verwendet wird, wie es bei der Probe U/M Cenoman (Koge 4) der Fall ist. Hier wird für Neptunium ein deutlich höherer Sorptionswert in Söhlde-Wasser erreicht ( $R_s > 300 \text{ cm}^3/\text{g}$ ) als in Str.670-Wasser ( $R_s = 18 \text{ cm}^3/\text{g}$ ); vgl. Abbn. 4-7 und 4-8. Für die Sorption von Plutonium

an Cenoman ist der Effekt nicht so deutlich; vgl. Abbn. 4-9 und 4-10. Dagegen ist der Einfluß des Wassers beim Vergleich der Sorption von Plutonium an der Probe Lamarcki Pläner in Söhlde-Wasser (Tabelle 4.6-8) mit der Sorption in salinem Modellwasser (Tabelle 4.6-9) in welchem das Plutonium 10 mal schwächer sorbiert wird, deutlich zu sehen.

#### 4.6.7 Abhängigkeit von der NaCl-Konzentration der Ausgangslösung

Für diese Sorptionsexperimente mit Neptunium (Tabelle 4.6-34) und Plutonium (Tab. 4.6-35) wurden in Söhlde-Wasser erhöhte NaCl-Konzentrationen von 5.4, 1.0, 0.1 und 0.01 mol/l eingestellt. Für die Sorptionsexperimente mit Americium (Tabelle 4.6-36), die zu einem Zeitpunkt vorbereitet wurden, als das Söhlde-Wasser noch nicht zur Verfügung stand wurden entsprechende NaCl-Konzentrationen in bidest. Wasser eingestellt. Diese Wässer wurden dann mit den Gesteinen konditioniert und die Feinfraktionen der Gesteine mit den konditionierten Wässern, sowie die Wässer mit Nukliden äquilibriert, wie unter Punkt 4.2 beschrieben. Für die Untersuchungen des Einflusses unterschiedlicher NaCl-Konzentrationen der Wässer auf die Sorption wurden 3 Meßreihen mit  $^{237}\text{Np}$ , 3 Meßreihen mit  $^{238}\text{Pu}$  und 2 Meßreihen mit  $^{241}\text{Am}$  angesetzt.

Die Sorptionsdaten nach 5 Wochen Kontaktzeit sind in den Tabellen 4.6-34 bis 4.6-36 aufgeführt. Eine eindeutige Abhängigkeit der Sorption von der NaCl-Konzentration kann nicht festgestellt werden. Die Sorption von Plutonium an den Gesteinen Rotpläner und Rhotomagensis Pläner scheint mit abnehmender NaCl-Konzentration geringer zu werden. Dies könnte durch das Auftreten von Kolloiden, die bei niedriger NaCl-Konzentration stabil sind erklärt werden. Ein ähnliches Verhalten zeigt Americium an dem Gestein Heersumer Schichten.

Bei den Proben mit Rhotomagensis Pläner und insbesondere Rotpläner deutet sich eine Abhängigkeit der Sorptionswerte von der Plutonium-Ausgangskonzentration an. Dies könnte eventuell durch eine langsamere

Gleichgewichtseinstellung mit abnehmender Nuklidkonzentration in der flüssigen Phase erklärt werden.

#### 4.6.8 Abhängigkeit von der $\text{NaHCO}_3$ -Konzentration der Ausgangslösung

Zum Nachweis einer eventuellen Beeinflussung der Sorption durch unterschiedliche Carbonatgehalte der Ausgangslösung wurden 2 Versuchsreihen mit konditioniertem und mit den Nukliden  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$  versetztem Söhlde-Wasser angesetzt, bei denen der Carbonatgehalt durch Zugabe von  $\text{NaHCO}_3$  um  $10^{-3}$ ,  $10^{-2}$  und  $10^{-1}$  mol/l erhöht wurde. Versuche mit Str.670-Wasser erwiesen sich als nicht durchführbar, da durch die geringste Natriumcarbonatzugabe Ausfällungen von Calciumcarbonat auftraten, wobei die Nuklide mitgefällt wurden.

Die Ergebnisse (Tabelle 4.6-37) deuten darauf hin, daß bei den Sorptionsversuchen mit Plutonium die Sorption bei Carbonatkonzentrationen über 0.01 mol/l geringer wird. Bei den Sorptionsversuchen mit Neptunium scheint die Sorption mit zunehmender Carbonatkonzentration aber größer zu werden. Da nach [12] die Löslichkeit von  $\text{NaNpO}_2\text{CO}_3$  mit zunehmender Carbonatkonzentration steigt, dürfte dieser Effekt eher auf eine Ausfällung von  $\text{Ca}(\text{NpO}_2\text{CO}_3)_2$  hindeuten.

#### 4.6.9 Abhängigkeit von Komplexbildnern in der Ausgangslösung

##### 4.6.9.1 Experimente mit Koge-Proben

Zur Ermittlung des Einflusses von Komplexbildnern auf die Sorption wurden je 4 Versuchsreihen für EDTA-, Natriumcitrat und waschaktive Substanzen mit verschiedenen Konzentrationen angesetzt. Es wurden die Proben Kimmeridge mit Str.670-Wasser und Lamarcki Pläner mit Söhlde-Wasser verwendet. Als waschaktive Substanzen kamen Natriumlaurylsulfat und Maranil-Paste zum Einsatz. Für die Versuche mit Maranil-Paste wurde statt Lamarcki Pläner die Gesteinsprobe Rotpläner verwendet. Den konditionierten und mit  $^{237}\text{Np}$  sowie  $^{238}\text{Pu}$  versetzten Wässern wurden die Komplexbildner in den Konzentrationen  $10^{-6}$ ,  $10^{-5}$ ,  $10^{-4}$  und  $10^{-3}$  mol/l zugesetzt.

Die Ergebnisse sind in den Tabellen 4.6-38 bis 4.6-41 enthalten. Die Versuche mit Neptunium zeigen keine Abhängigkeit der Sorption von einem der Komplexbildner. Die Sorptionsversuche mit Plutonium zeigen einen deutlichen Einfluß der EDTA-Konzentration bei Gehalten über  $10^{-4}$  mol/l EDTA. Die waschaktiven Substanzen scheinen bei den Versuchen mit Söhlde-Wasser eine schwächere Sorption bei der Konzentration von  $10^{-3}$  mol/l zu bewirken; bei den Versuchen mit Str.670-Wasser dagegen nicht. Citrat hat im o.g. Konzentrationsbereich offensichtlich keinen Einfluß auf das Sorptionsverhalten der Proben.

#### 4.6.9.2 Experimente mit Sorp-Proben

Weitere Experimente zur Ermittlung des Einflusses von Komplexbildner auf die Sorption von Plutonium wurden mit den Proben Sorp 5, Sorp 7, Sorp 9 und Sorp 10 aus der Tiefenbohrung Konrad 101 durchgeführt (Tabellen 4.6-42 bis 4.6-45). Als Komplexbildner wurden Natriumcitrat, EDTA und als waschaktive Substanz Maranilpaste in den Konzentrationen  $10^{-6}$ ,  $10^{-5}$ ,  $10^{-4}$ ,  $10^{-3}$  und  $10^{-2}$  mol/l verwendet. Bei den Experimenten mit Natriumcitrat findet man für die Konzentrationen von  $10^{-2}$  und  $10^{-3}$  mol/l nach einer Woche Kontaktzeit eine deutlich geringere Sorption bei allen vier Gesteinsproben als bei den niedrigeren Komplexbildnerkonzentrationen. Nach 5 Wochen Kontaktzeit ist der Einfluß auf die Sorption bei der Komplexbildnerkonzentration von  $10^{-2}$  mol/l noch eindeutig vorhanden. Bei der Konzentration von  $10^{-3}$  mol/l ist der Einfluß bei der Probe Sorp 5 noch stark ausgeprägt, bei der Probe Sorp 10 nur noch schwach vorhanden und bei der Probe Sorp 9 nicht mehr feststellbar. Die Experimente mit EDTA zeigen bei der Konzentration von  $10^{-2}$  und  $10^{-3}$  mol/l eine deutlich niedrigere Sorption des Plutonium bei allen vier Gesteinsproben, die auch nach 28 Wochen Kontaktzeit noch deutlich vorhanden ist. Tenside als Komplexbildner scheinen dagegen, wie Versuche mit Maranil-Paste zeigen, keinen Einfluß auf die Sorption von Plutonium an den Gesteinsproben zu haben.

#### 4.6.10 Abhängigkeit von dem pH-Wert der Ausgangslösung

Zur Ermittlung des pH-Wert-Einflusses der Ausgangslösung auf die Sorption wurden 4 Versuchsreihen angesetzt. Bei diesen Experimenten wurde der pH-Wert der Ausgangslösungen mit 0.1 M HCl bzw. 0.1 M NaOH auf Werte zwischen pH 3 und pH 9 eingestellt. Pro Versuchsreihe wurden drei Lösungen mit verschiedenen pH-Werten angesetzt.

Die Sorptionsdaten sowie die zu Anfang der Experimente eingestellten pH-Werte und die nach 25 Wochen Kontaktzeit erreichten pH-Werte sind in den Tabellen 4.6-46 bis 4.6-49 angegeben. Die niedrigen pH-Werte von ca. 3.3 bei den eingestellten Lösungen kamen dadurch zustande daß die Pufferkapazität der Wässer bei ca. pH 5 erschöpft war und eine geringfügige weitere Zugabe von 0.1 M HCl dann zu diesen niedrigen pH-Werten führte.

Es läßt sich keine Abhängigkeit zwischen eingestelltem pH-Wert und Sorptionsverhalten erkennen. Dies kann darauf zurückgeführt werden, daß sich in allen Lösungen ein Gleichgewichts-pH-Wert für das System Gestein-Wasser aufgrund der Pufferwirkung des Gesteins wieder eingestellt hat.

#### 4.6.11 Abhängigkeit vom Eh-Wert

Zur Ermittlung der Abhängigkeit der Sorption des Neptuniums vom Eh-Wert der Wässer wurden zusätzlich zu den Sorptionsexperimenten unter aeroben Umgebungsbedingungen Sorptionsexperimente unter anaeroben Umgebungsbedingungen durchgeführt. Die anaeroben Umgebungsbedingungen wurden dadurch erreicht daß die Experimente in einer Handschuhbox, die mit einem Gemisch von Argon mit 1 % CO<sub>2</sub> gespült wurde, durchgeführt wurden. Vor dem Ansetzen der anaeroben Sorptionsproben wurden die für die Versuche vorgesehenen Gesteinsproben und die mit Radionukliden versetzten Wässer 5 Wochen lang in der Handschuhbox gelagert. Die Eh-Werte in der Tabelle 4.4-4 zeigen, daß unter diesen Bedingungen die ursprünglichen Eh-Werte, hiermit sind die Eh-Werte der Wäs-

ser nach der Konditionierung der Wässer mit den Gesteinsproben gemeint, gehalten, bzw. teilweise auch etwas gesenkt werden konnten. Unter aeroben Bedingungen stiegen die Eh-Werte dagegen an (Tabelle 4.4-3). Die bisherigen Ergebnisse für die Sorption von  $^{237}\text{Np}$  unter anaeroben Bedingungen (Tabellen 4.6-50 und 4.6-51) zeigen für die Ko-ge-Proben keine wesentlichen Unterschiede zu den Sorptionswerten unter aeroben Bedingungen (Tabelle 4.6-5). Bei der Probe Sorp 5 ist die Sorption von Neptunium unter anaeroben Bedingungen (Tabelle 4.6-51) etwa doppelt so stark wie unter aeroben (Tabelle 4.6-6). An der Probe Sorp 7 ist die Sorption unter aeroben und anaeroben Bedingungen gleich. Bei der Probe Sorp 10 ist dagegen die Sorption von Neptunium unter anaeroben Bedingungen schwächer als unter aeroben Bedingungen. Wesentliche Unterschiede wären zu erwarten wenn die Eh-Werte der anaeroben Proben stark von den aeroben abweichen würden. Bei einem Redoxpotential von ca. 0 mV sollte Neptunium in der 4-wertigen Oxidationsstufe vorliegen [13]. Falls dies einträte würde Neptunium sich ähnlich verhalten wie 4-wertiges Plutonium, d.h., die Löslichkeit würde abnehmen und die Sorptionskoeffizienten zunehmen. Ein solches Verhalten, d.h. eine Abnahme der Löslichkeit, wurde bei der Probe Söhlde-Wasser-U/M Cenoman die ein Redoxpotential von 29 mV aufwies gefunden. Die Neptuniumkonzentration in dieser Probe war so niedrig und damit so nahe an der Nachweisgrenze, daß mit dieser Probe keine Sorptionsversuche durchgeführt werden konnten.

Anaerobe Sorptionsexperimente wurden auch mit Technetium durchgeführt. Unter anaeroben Bedingungen (Tabelle 4.6-52) scheint die Sorption von Technetium etwas stärker zu sein als unter aeroben Bedingungen (Tabelle 4.6-18).

#### 4.6.12 Abhängigkeit von der Temperatur

Experimente zur Abhängigkeit der Sorption von der Temperatur wurden anfangs mit der Grobfraktion der Gesteinsprobe Rhotomagensis Pläner und den Nukliden  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$  bei Temperaturen von 8, 23 und 50 °C durchgeführt (Tabellen 4.6-53 und 4.6-54). Diese Proben wurden nicht

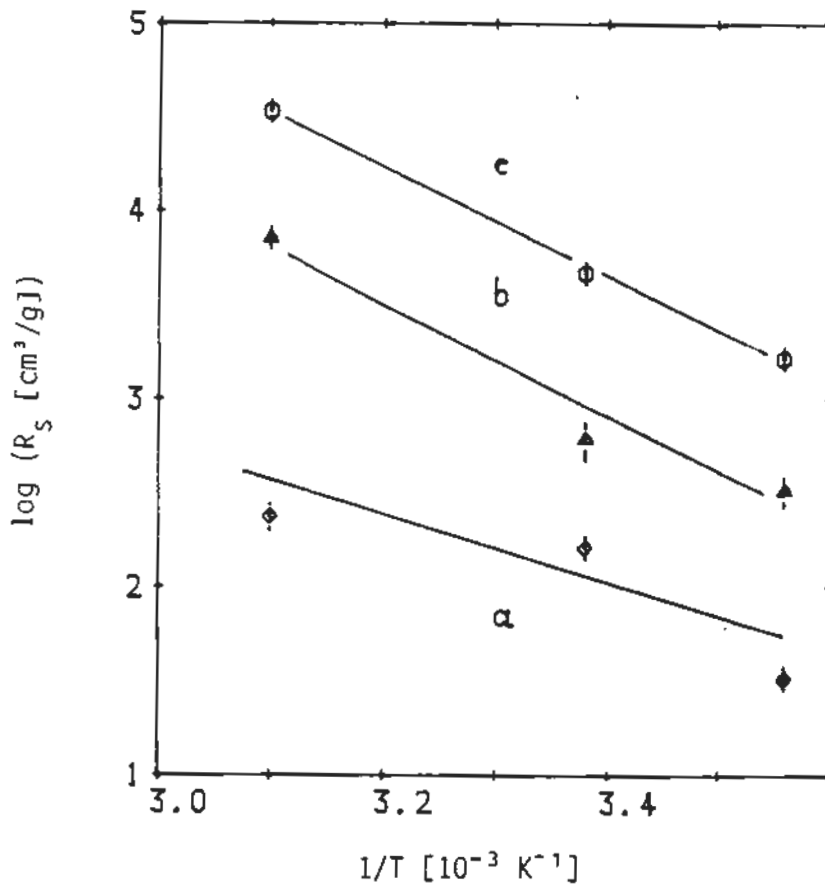


Abb. 4-13:  $\log R_s$ - $1/T$  Abhängigkeit von  $^{238}\text{Pu}$  in den Systemen

- a) Lamarcki Pläner - Söhle-1-Wasser;  $\Delta H_{\text{sorp}} = 7.2 \pm 3.6$  [kcal/mol]  
 b) Kimmeridge - Str.670-Wasser;  $\Delta H_{\text{sorp}} = 12.1 \pm 2.5$  [kcal/mol]  
 c) Heersumer Schichten - Str.670-Wasser;  $\Delta H_{\text{sorp}} = 11.7 \pm 0.6$  [kcal/mol]

geschüttelt, sondern nur stehen gelassen. Bei den Versuchen mit Neptunium ist keine Abhängigkeit der Sorption von der Temperatur festzustellen, wohingegen bei den Versuchen mit Plutonium die drei Parallelproben bei 8 °C nach 18 Wochen Kontaktzeit deutlich eine niedrigere Sorption aufweisen als die anderen Proben. Auch der Vergleich der Stabilitätsproben (Tabellen 4.5-23 und 4.5-24) zeigt, daß die Proben bei 8 °C deutlich stabiler sind als die bei 50 °C. Die größere Instabilität der Pu-Stabilitätsprobe bei 23 °C und die etwas höhere Pu-Sorption bei dieser Temperatur im Vergleich zu 50 °C hat ihre Ursachen sehr wahrscheinlich in der mit 1 - 2 Monaten wesentlich kürzeren



Konditionierungszeit des Söhlde-Wassers mit  $\text{PuO}_2$ , die bei den übrigen Experimenten 5 Monate betrug.

Untersuchungen an der Probe Rhotomagensis Pläner - Plutonium zeigen (Tabelle 4.6-71), daß dieser Effekt nicht durch Kolloidbildung verursacht wird und somit auf die Temperaturabhängigkeit des Sorptionskoeffizienten zurückzuführen ist.

Zu einem späteren Zeitpunkt durchgeführte Experimente zur Temperaturabhängigkeit der Sorption des Nuklids  $^{238}\text{Pu}$  an den Gesteinsproben Lamarcki Pläner, Kimmeridge und Heersumer Schichten (Tabellen 4.6-55 bis 4.6-57) zeigen ebenfalls eine Abhängigkeit der Sorption von der Temperatur. Bei Auftragung der Logarithmen von  $R_S$  gegen die reziproke Temperatur (Abb. 4-13) erhält man nach der van't Hoff'schen Gleichung

$$\frac{d \ln R}{d(1/T)} = - \frac{\Delta H}{R} \quad (4-18)$$

näherungsweise die Verteilungsenthalpie  $\Delta H$ .

Die aus den  $\log R_S$ - $1/T$ -Auftragungen abgeleiteten Verteilungsenthalpien  $\Delta H$  deuten an, daß für die Sorption von  $^{238}\text{Pu}$  ein endothermer Prozeß verantwortlich ist. Da die  $R_S$ -Werte mit steigender Temperatur zunehmen, braucht demnach eine Temperaturabhängigkeit der (bei Zimmertemperatur bestimmten)  $R_S$ -Werte für die Beurteilung des Migrationsverhaltens von Plutonium in tiefen geologischen Schichten, mit höheren Temperaturen, nicht berücksichtigt zu werden.

#### 4.6.13 Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration

Batch-Versuche mit Variation der Radionuklidkonzentration der Ausgangslösungen wurden durchgeführt um sicherzustellen, daß nicht durch überhöhte Nuklidkonzentrationen in den Lösungen und dadurch bedingten Ausfällungen an den Gesteinsoberflächen, zu hohe Sorptionskoeffizienten erhalten wurden (Tabellen 4.6-58 bis 4.6-68). Neben dem sonst

hauptsächlich gewählten V/m-Verhältnis von 3.1 wurden auch Versuche mit einem V/m-Verhältnis von 20 durchgeführt. Der Grund hierfür ist, daß bei größerem V/m-Verhältnis entsprechend größere Sorptionswerte noch gemessen werden können.

Die Sorptionsexperimente mit Neptunium zeigen (Tabellen 4.6-58 bis 4.6-60), daß auch bei einer 30-fachen Verdünnung der Radionuklidkonzentration kein wesentlich anderer Sorptionswert erhalten wird als bei den Experimenten mit weniger- oder unverdünnten Lösungen.

Bei den Versuchen mit Plutonium (Tabellen 4.6-61 bis 4.6-64) und Americium (Tabellen 4.6-65 und 4.6-66) ist bei der Interpretation der Sorptionswerte zu berücksichtigen, daß die maximal meßbaren Sorptionswerte mit abnehmender Radionuklidkonzentration der Ausgangslösung kleiner werden. Unter Berücksichtigung dieses Umstandes wird bei diesen Versuchen ebenfalls keine Zunahme des Sorptionskoeffizienten mit zunehmender Radionuklidkonzentration gefunden.

Die Experimente mit Technetium (Tabellen 4.6-67 und 4.6-68) zeigen ebenfalls keine Abhängigkeit der Sorptionskoeffizienten von der Radionuklidkonzentration.

#### 4.6.14 Einfluß von Kolloidbildung

Zur Ermittlung des Einflusses der Kolloidbildung auf die Sorption wurden Untersuchungen an den mit den Aktinoiden versetzten Grundwässern Quartär, Söhlde und Str.670 durchgeführt. Hierzu wurden den Wässern unfiltrierte sowie über 450 nm (Millex), 30 nm (Nucleopore) und ca. 2 nm (20KD Sartorius) filtrierte Proben entnommen und die Nuklidkonzentration in diesen bestimmt. Da eine Kolloidbildung hauptsächlich mit Plutonium und Americium zu erwarten ist wurden die Untersuchungen für diese Aktinoide durchgeführt (Tabellen 4.6-70 bis 4.6-73). Kolloiduntersuchungen mit Neptunium (Tabelle 4.6-69) wurden im Zusammenhang mit den Säulendurchlaufversuchen durchgeführt (siehe Kapitel 6.3).

Die Kolloidbildung von Plutonium (Tabelle 4.6-70) scheint nur wenig ausgeprägt zu sein und liegt, wenn man die Konzentrationen der Proben die über 2 nm filtriert wurden mit denen die über 450 nm filtriert wurden vergleicht, im Quartär- und Söhlde-Wasser bei ca. 10 %, in Str.670-Wasser zwischen 0 und 5 %. Zur Ermittlung der Kolloidbildung von Americium wurden Untersuchungen an Wässern die mit Americium gesättigt waren (Tabelle 4.6-72), sowie an ungesättigten Wässern (Tabelle 4.6-73) durchgeführt. In den gesättigten nichtsalinen Söhlde-Wässern liegt Americium zu ca. 30 % kolloidal gebunden vor (Vergleich zwischen den über 2 nm und über 450 nm filtrierten Proben), in den gesättigten salinen Str.670-Wässern unter 5 %. In den ungesättigten Söhlde-Wässern (Tabelle 4.6-73) ist Americium zu 70 % kolloidal gebunden, in dem Quartär-Wasser, dessen Americiumkonzentration in der Nähe der Sättigungskonzentration liegt, ist das Americium zu 30 % kolloidal gebunden. Im ungesättigten Str.670-Wasser liegt der Kolloidanteil zwischen 7 und 22 %. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen zeigen, daß Kolloide mit Plutonium oder Americium insbesondere in den nichtsalinen Wässern auftreten können.

Der Einfluß von Kolloidbildung auf die Sorption scheint nur gering zu sein, wie Untersuchungen an den Nukliden  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  zeigen (Tabelle 4.6-71). Ein größerer Unterschied der Sorptionswerte wird lediglich zwischen Sorptionswerten bei Probenahme ohne Filtration und Probenahme mit Filtration festgestellt. Da die Phasengrenze zwischen fester Phase und flüssiger Phase aber auf 450 nm Filterporengröße festgelegt wurde [18], ist dieses Ergebnis für die Berechnung der Sorptionskoeffizienten ohne Bedeutung.

Für die Gesteinsproben aus der Tiefenbohrung Konrad 101 konnten, wegen der starken Sorption von Plutonium an diesen Gesteinsproben und der dadurch bedingten geringen Plutoniumkonzentration in den Wässern, keine Messungen zum Kolloideinfluß durchgeführt werden.

Nach diesen Ergebnissen kann der Einfluß von Kolloidbildung auf die Sorption für Konrad-Proben vernachlässigt werden.

## 5 ERGEBNISSE DER DIFFUSIONSUNTERSUCHUNGEN

Für die Diffusion nach schwedischem Modell [14], die in Teflongefäßen durchgeführt wird, wurde in einem Vorversuch die Sorption von  $^{238}\text{Pu}$  an Teflon ermittelt. Dazu wurde eine Lösung von  $^{238}\text{Pu}$  in salinem Modellwasser mehrere Wochen in einem Teflongefäß stehen gelassen. Die Konzentration von  $^{238}\text{Pu}$  nahm dabei im Verlauf von 22 Wochen um ca. 70 % ab (Tabelle 5-1). Dies zeigt, daß die Sorption der Nuklide an Teflon bei den Versuchen beachtet werden muß.

Abbildung 5-1 zeigt die verwendete Teflon-Zelle. Die Diffusionszelle besteht aus zwei Kammern und der dazwischen befestigten Steinscheibe. Die Steinscheibe wurde hergestellt durch Eingießen des zu untersuchenden Steines in Gießharz und Schneiden einer Scheibe. Um sicherzustellen, daß die Nuklidkonzentration auf der aktiven Seite der Zelle nicht mit der Zeit abnimmt, wurde auf dieser Seite festes  $\text{PuO}_2$  bzw.  $\text{NpO}_2\text{OH}$  zugesetzt. Es sollte sich dadurch eine konstante Nuklidkonzentration auf der aktiven Seite der Zelle einstellen, die durch die Löslichkeit des Nuklids in dem verwendeten Wasser begrenzt ist. Durch dieses Vorgehen wird verhindert, daß die gesamte Aktivität der Aus-

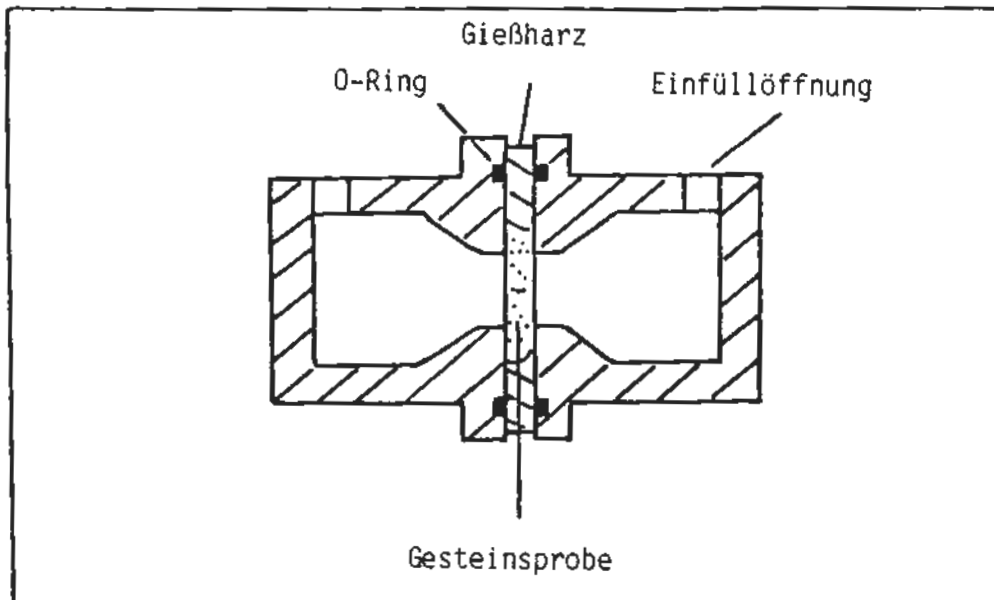


Abb. 5-1: Teflon-Diffusionszelle

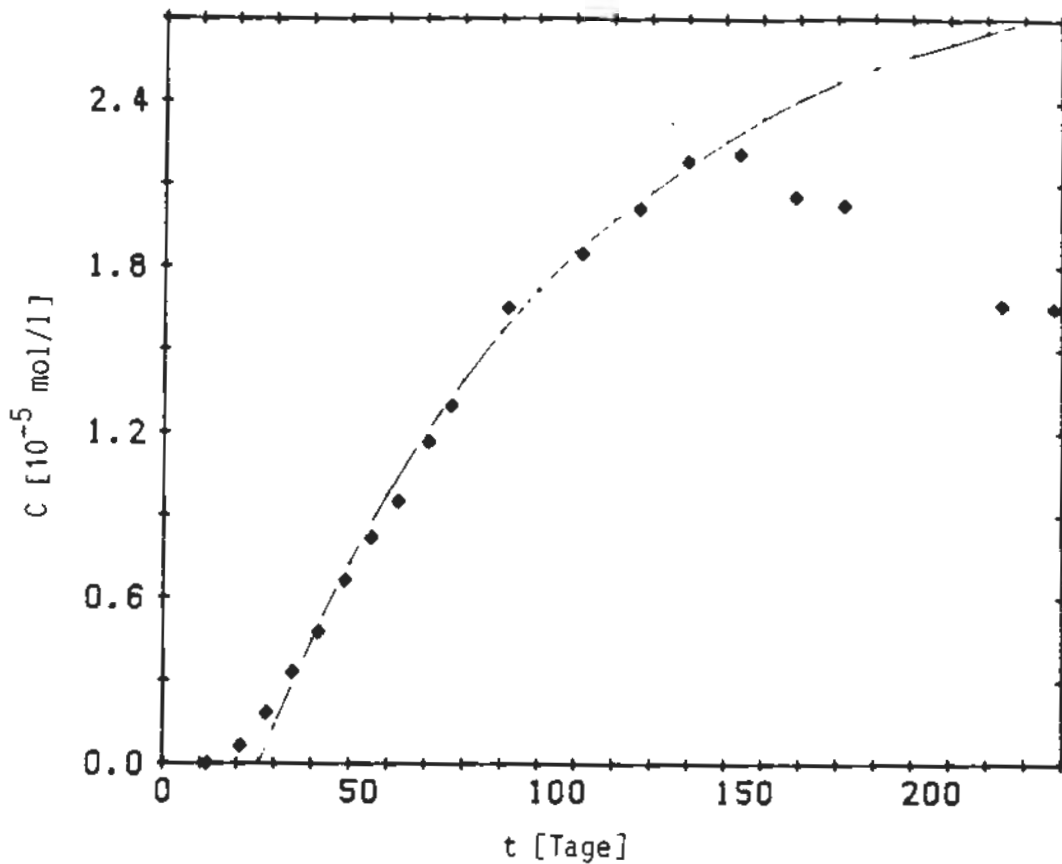


Abb. 5-2: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Söhle-1-Wasser und dem Gestein Lamarcki Plänen. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit. Durchgezogene Kurve berechnet mit:  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $2.9 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 2.7 \times 10^{-7}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_0 = 26$  Tage

gangszelle am Stein sorbiert und somit keine Diffusion durch die Gesteinsproben erhalten wird. Dies wäre wegen der geringen Löslichkeit und der hohen Sorptionskoeffizienten der Nuklide leicht möglich.

Bei den Experimenten mit Technetium konnte nicht auf diese Weise verfahren werden da die Löslichkeit von  $\text{TcO}_4^-$  zu hoch ist. Technetium wurde daher den Zellen in gelöster Form zugegeben. Die Aktivität in der Ausgangszelle nimmt bei dieser Art der Versuchsführung mit zunehmender Versuchsdauer, entsprechend der Diffusion in die zweite Zelle

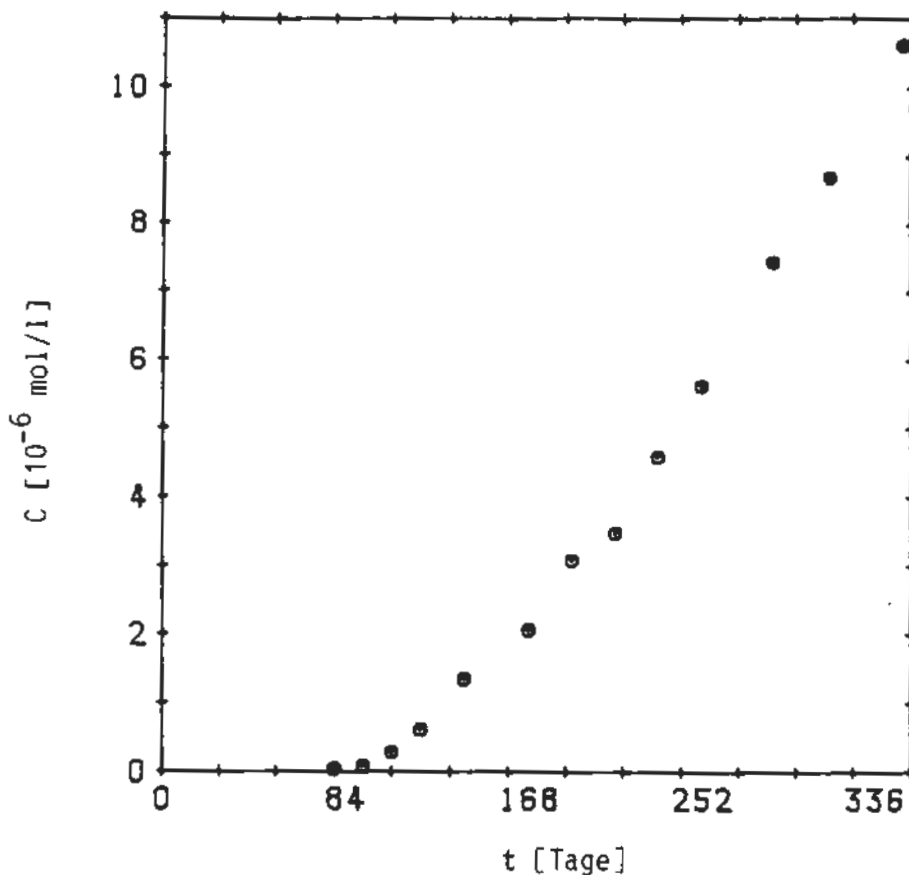


Abb. 5-3: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Söhde-1-Wasser und dem Gestein U/M Cenoman. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $3.0 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 2.9 \times 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 120$  Tage

und entsprechend der Sorption an der Gesteinsprobe ab. Dies wurde bei der Berechnung der Diffusionskoeffizienten berücksichtigt.

In den Tabellen 5-2 und 5-3 sind die angesetzten Diffusionsversuche aufgeführt. Bei 23 Proben konnte eine Durchbruchkurve gemessen werden (Abbildung 5-2 bis 5-19). Aus den Experimenten lassen sich zwei Diffusionskoeffizienten errechnen. Den ersten erhält man aus der Zeitdauer der Diffusion durch die an den Nukliden ungesättigte Gesteinsprobe. Dieser Diffusionskoeffizient wird nach [15] aus der Durchbruchzeit  $t_D$  des Nuklids sowie der Probendicke der Gesteinspro-

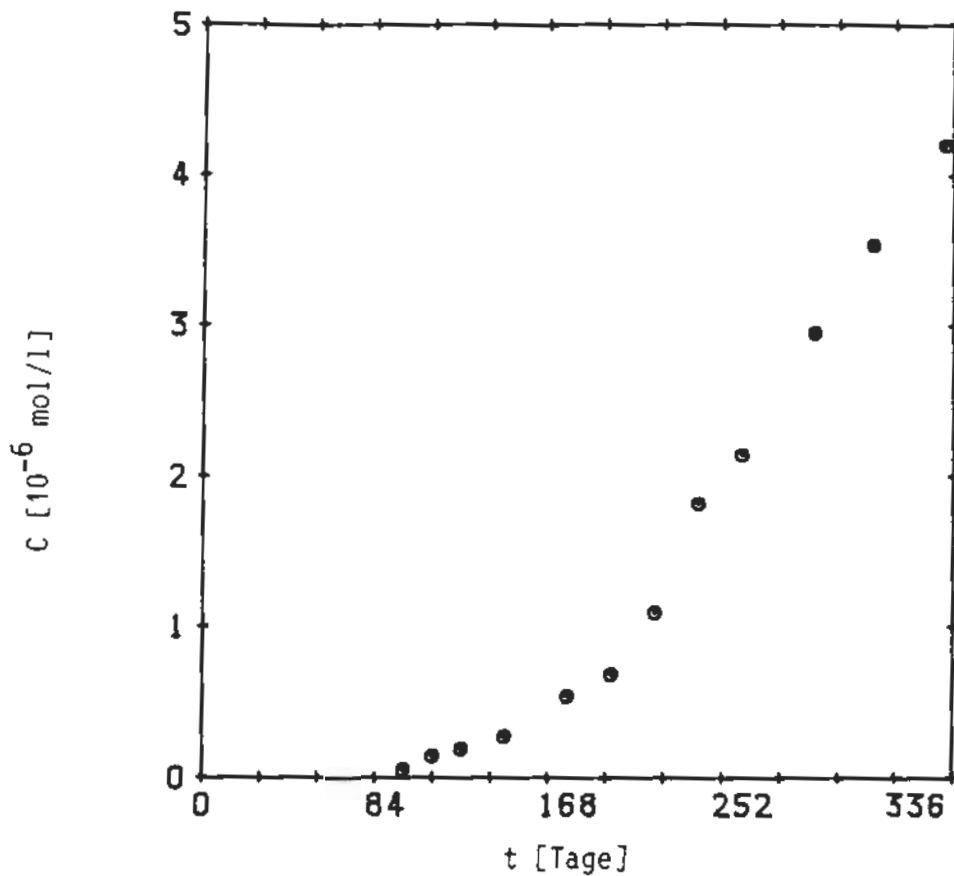


Abb. 5-4: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Kimmeridge. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $8.8 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 3.45 \times 10^{-9}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 170$  Tage

be errechnet. In erster Näherung ist:

$$D_1 = \frac{d^2}{t_D \cdot 6} \quad (5-1)$$

Der zweite Diffusionskoeffizient beschreibt die Diffusion durch die gesättigte Gesteinsprobe und wird aus der Steigung der Durchbruchkurve erhalten. Für Proben bei denen die Nuklidkonzentration auf der aktiven Seite der Zelle konstant ist, gilt für die Berechnung des

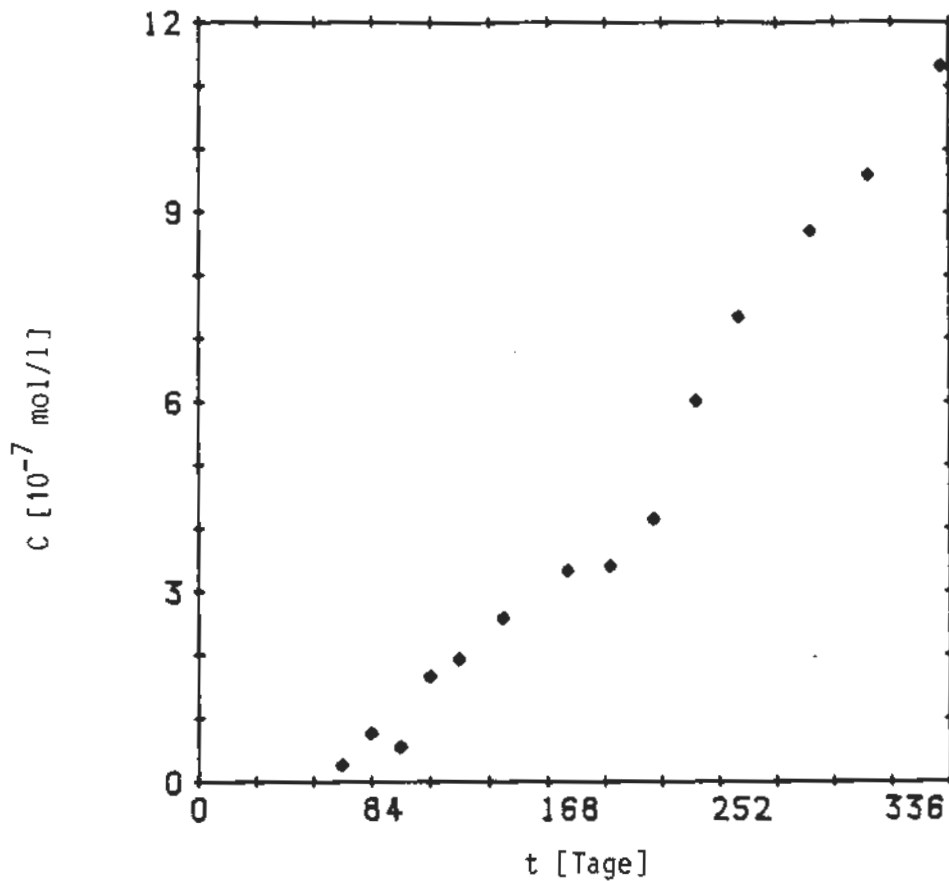


Abb. 5-5: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Hangendes Erz. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.

$^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $3.6 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 3.3 \times 10^{-9}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 70$  Tage

Diffusionskoeffizienten in erster Näherung die Gleichung (5-2):

$$D_2 = \frac{dc}{dt} \cdot V \cdot d \cdot \frac{1}{q(a-c')} \quad (5-2)$$

hierbei ist:

$\frac{dc}{dt}$  = die Steigung der Kurve zur Zeit  $t'$



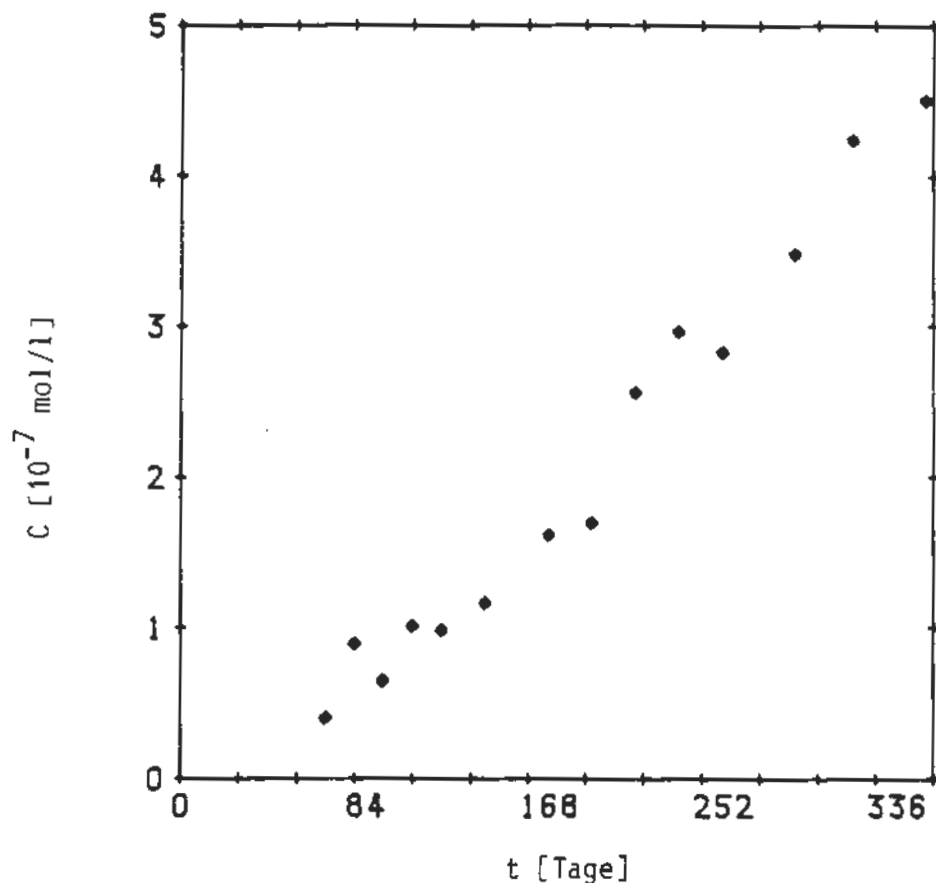


Abb. 5-6: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Liegendes Erz. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.

$^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $3.2 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1.3 \times 10^{-9}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 65$  Tage

$V$  = Volumen einer Zelle

$d$  = Probendicke

$q$  = Querschnitt der Probe

$a$  = Nuklidkonzentration auf der aktiven Seite

$c'$  = Nuklidkonzentration auf der "inaktiven" Seite zur Zeit  $t'$

Für Proben bei denen die Aktivität in der Ausgangszelle mit der Zeit abnimmt wird statt einer konstanten Konzentration  $a$  eine variable Konzentration  $a'$  verwendet:

$a'$  = Nuklidkonzentration auf der aktiven Seite zur Zeit  $t'$ .

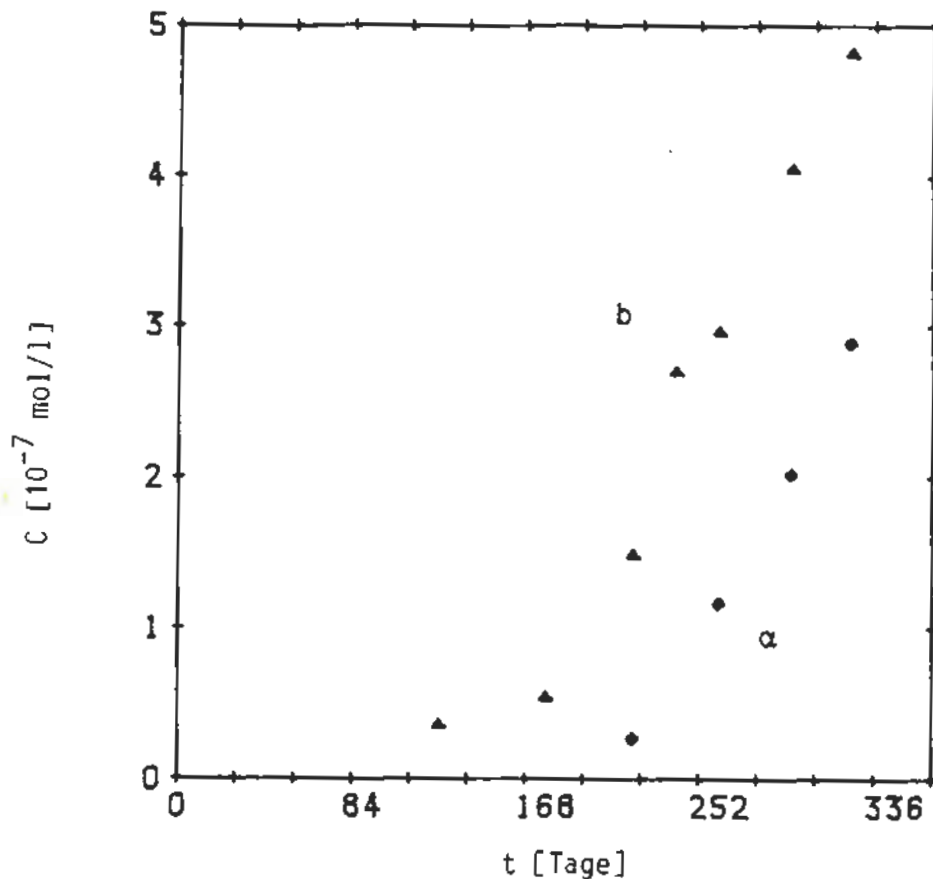


Abb. 5-7: Diffusionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und den Gesteinen Erzkalke und Heersumer Schichten. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.

- a) Gesteinsprobe Erzkalke.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $8.6 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1 \times 10^{-9}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 220$  Tage
- b) Gesteinsprobe Heersumer Schichten.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $3.1 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 2.0 \times 10^{-9}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 160$  Tage

Den Kapazitätsfaktor  $\alpha$  des Gesteins erhält man [16] aus dem Verhältnis von  $D_2$  zu  $D_1$ :

$$\alpha = \frac{D_2}{D_1} \quad (5-3)$$

Aus dem Kapazitätsfaktor, der Gesteinsdichte  $\rho$  und der Porosität  $n$  des Gesteins erhält man den Verteilungskoeffizienten  $K_d$ :

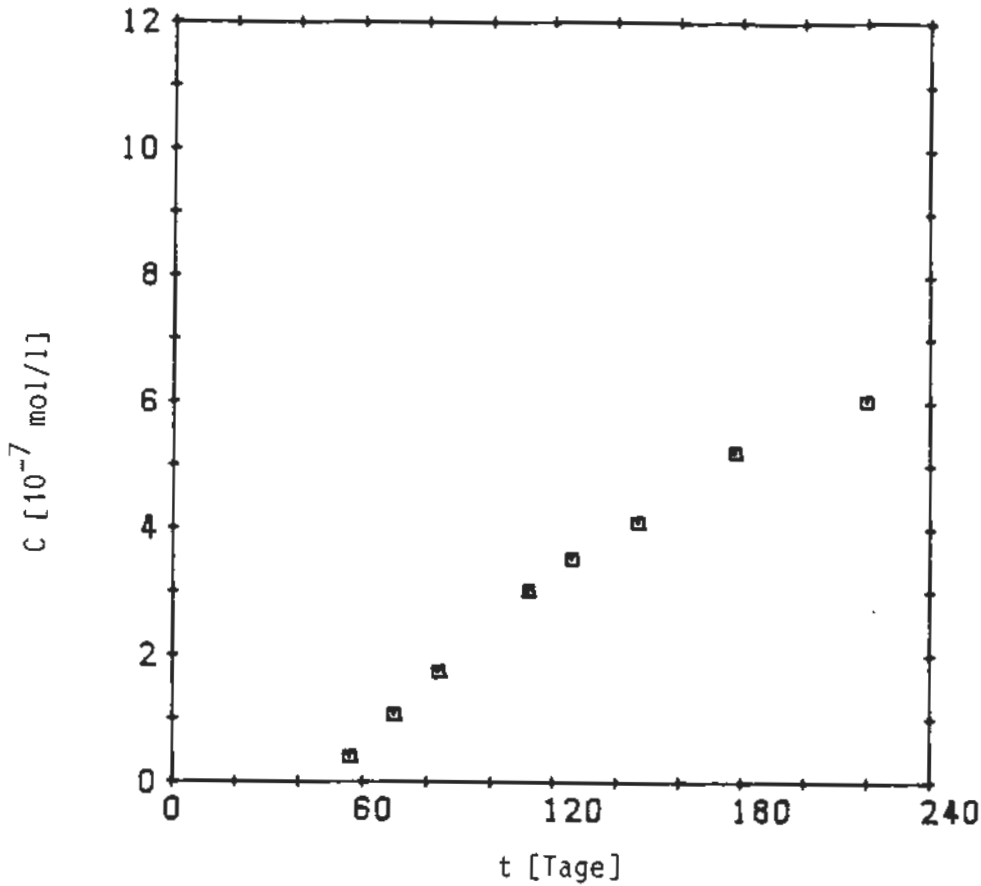


Abb. 5-8: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Fladentonstein. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.

$^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $4.9 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$ ; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 2 \times 10^{-9} \text{ cm}^2/\text{sec}$ ; Durchbruchzeit  $t_0 = 50 \text{ Tage}$

$$K_d = \frac{\alpha - n}{\rho} \quad (5-4)$$

Die aus den Experimenten berechneten Diffusionskoeffizienten, Kapazitätsfaktoren und Verteilungskoeffizienten sind in den Tabellen 5-4 bis 5-7 zusammengefaßt. Zum Vergleich sind die entsprechenden  $R_S$ -Werte aus Batch-Experimenten mit der Feinfraktion der Gesteine aufgeführt. Die  $K_d$ -Werte aus den Diffusionsversuchen sind bei den Neptunium-Proben um den Faktor 4 bis 10 kleiner als die  $R_S$ -Werte aus den Batch-Versuchen. Die  $K_d$ -Werte für Plutonium und das Gestein Lamarcki Pläner sind ca. 3 Zehnerpotenzen kleiner als die entsprechenden  $R_S$ -

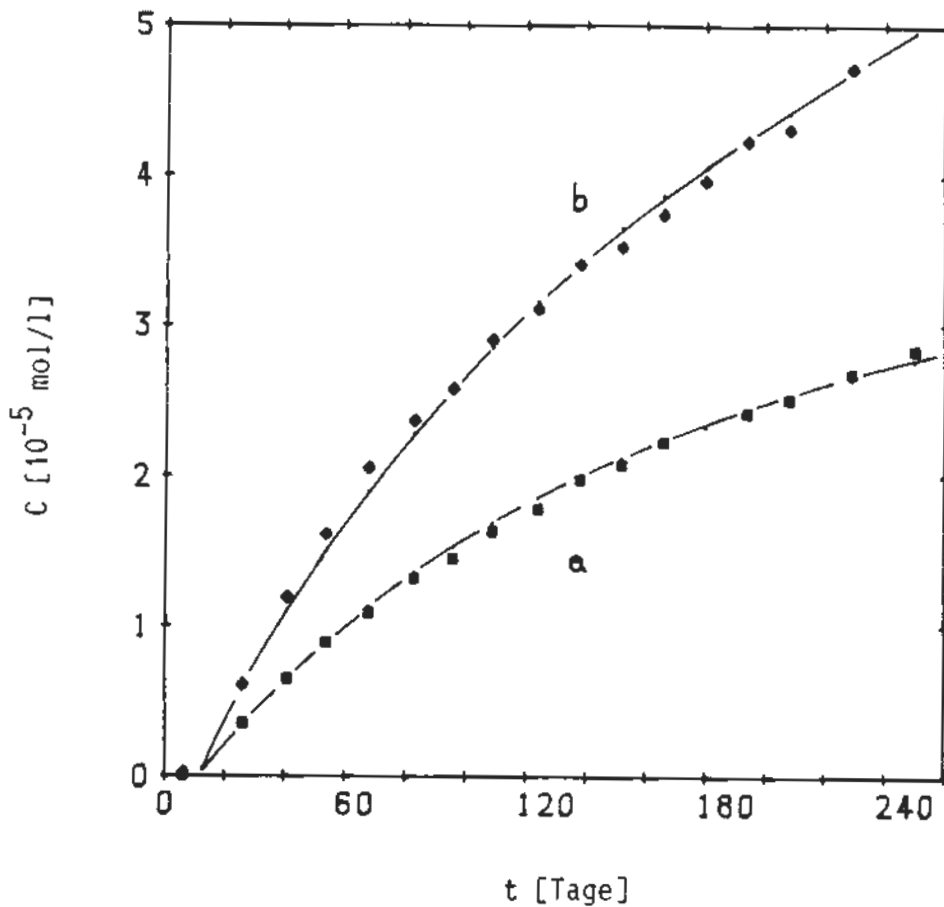


Abb. 5-9: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Cornbrash. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.

a) Probe 1. Durchgezogene Kurve berechnet mit:  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $4.5 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1.75 \times 10^{-7}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 12$  Tage

b) Probe 2. Durchgezogene Kurve berechnet mit:  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $1.0 \times 10^{-4}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1.3 \times 10^{-7}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 9$  Tage

Werte aus den Batch-Versuchen, sodaß sich hier keine gute Übereinstimmung ergibt.

Bei der Art der Berechnung des  $K_D$ -wertes wird davon ausgegangen, daß ein Transport der Nuklide lediglich durch Diffusion im Porenwasser der Gesteinsprobe stattfindet und somit eine Sorption der Nuklide an

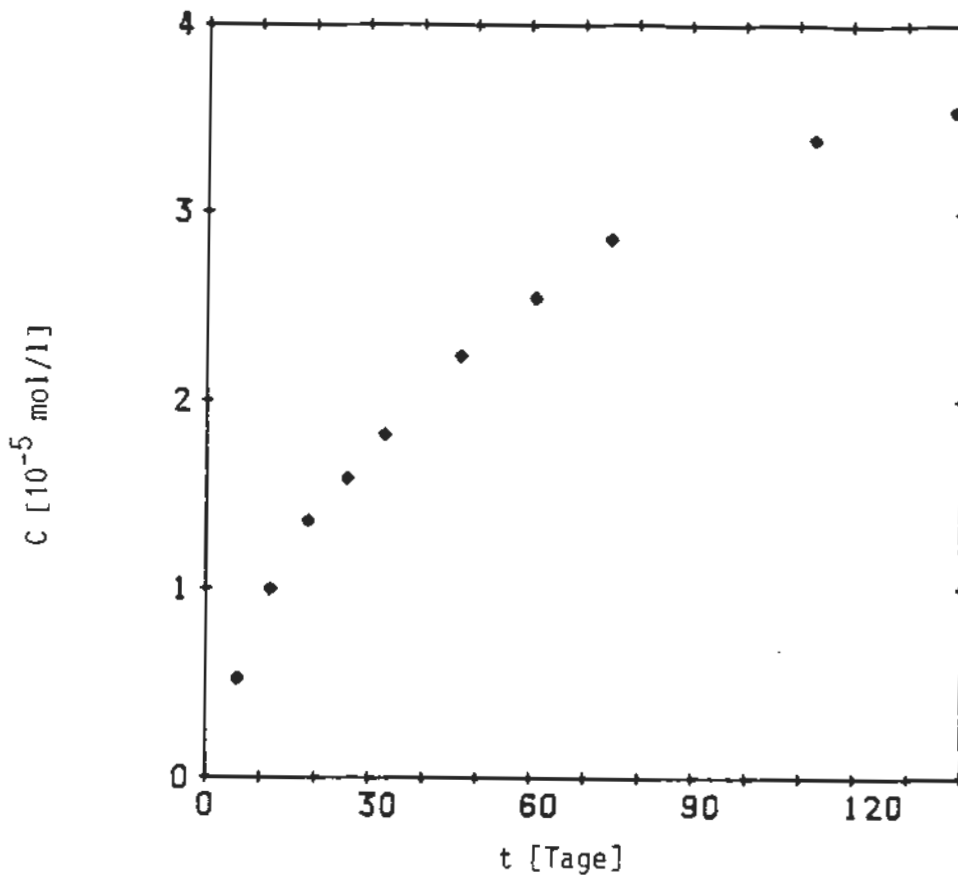


Abb. 5-10: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Hils-2-Wasser und dem Gestein Sorp 5. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $3.4 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1.07 \times 10^{-6}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 4.9$  Tage

dem Gestein zu einer der Sorption entsprechenden Verlangsamung des Transports führt. Eine Diffusion der sorbierten Nuklide wird hierbei ausgeschlossen. Die bisher erzielten Ergebnisse (Tabellen 5-4 bis 5-7), nach denen sich mit zunehmender Sorption, die Diffusionskoeffizienten  $D_1$  und  $D_2$  eher angleichen statt der Sorption entsprechend zu differieren, sprechen dafür, daß der Diffusion der sorbierten Phase beim Transport der Nuklide durch die Gesteinsprobe eine große Bedeutung zukommt. Bei starker Sorption dürfte die Diffusion der Nuklide in der sorbierten Phase die Diffusion im Porenwasser übertreffen. Dies kann an Hand einer Beispielsrechnung gezeigt werden.

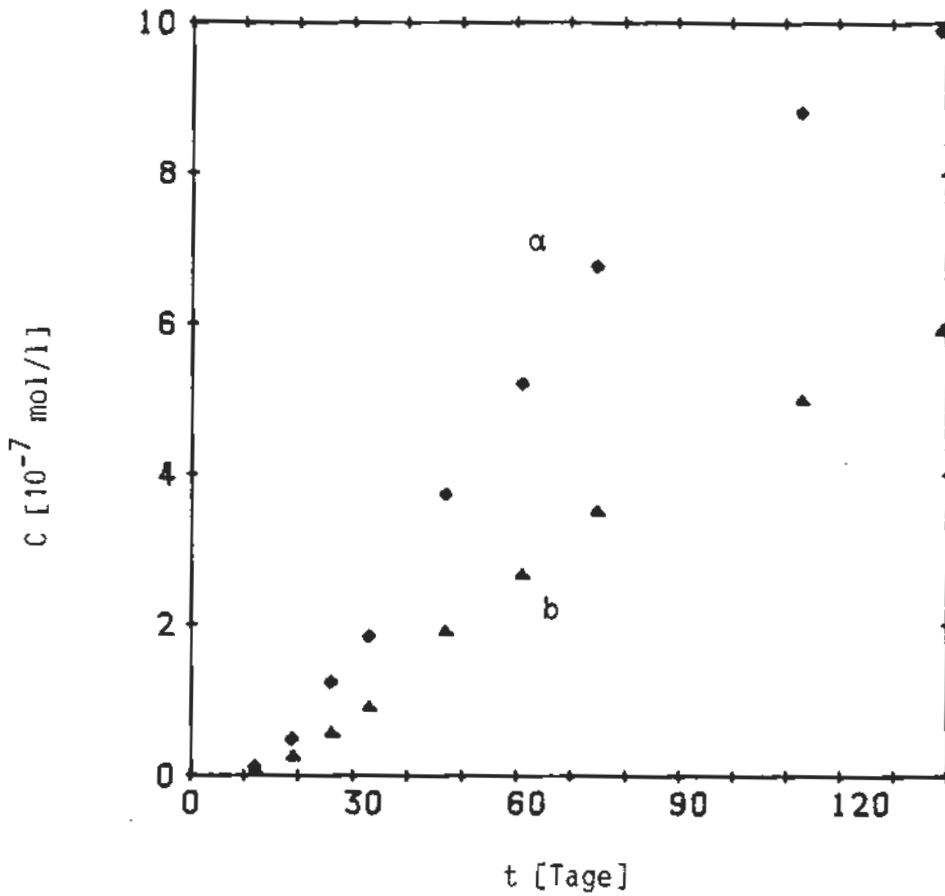


Abb. 5-11: Diffusionsexperiment mit  $^{237}\text{Np}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 6. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  
 a) Probe 1.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $5.4 \times 10^{-5}$  mol/l;  
 Diffusionskoeffizient  $D_2 = 3.3 \times 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 14$  Tage  
 b) Probe 2.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $3.7 \times 10^{-5}$  mol/l;  
 Diffusionskoeffizient  $D_2 = 2.1 \times 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 14$  Tage

Der größte bei unseren Versuchen überhaupt gemessene Diffusionskoeffizient betrug  $2.7 \times 10^{-6}$  cm<sup>2</sup>/s (für das schwach sorbierende Technetium und die sehr poröse Gesteinsprobe Sorp 5). Versucht man mit diesem Wert und dem Sorptionskoeffizienten für die Probe Lamarcki Pläner - Plutonium ( $R_S = 24800$  cm<sup>3</sup>/g) den Diffusionskoeffizienten  $D_1$  für die ungesättigte Probe zu berechnen so erhält man aus Gleichung (5-4) für den Kapazitätskoeffizienten  $\alpha$ :

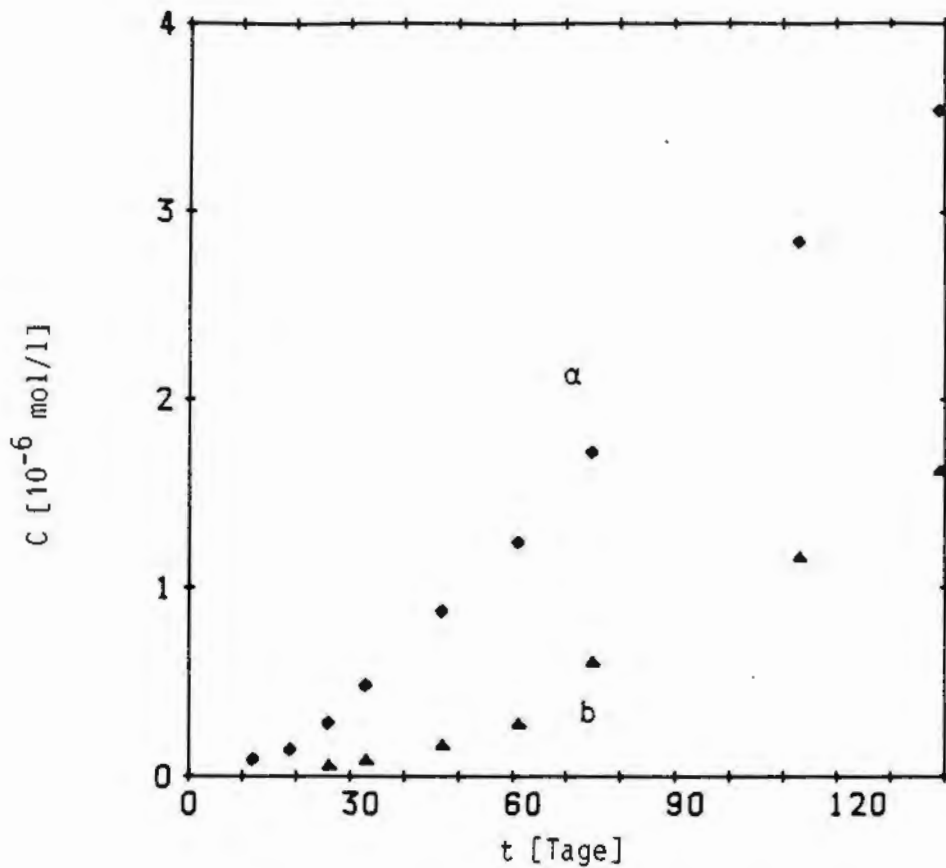


Abb. 5-12: Diffusionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , Ort-300-Wasser und den Gesteinen Sorp 7 und Sorp 10. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  
 a) Gesteinsprobe Sorp 7.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $4,5 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1,3 \times 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 14$  Tage  
 b) Gesteinsprobe Sorp 10.  $^{237}\text{Np}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $2,2 \times 10^{-5}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 2,2 \times 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 45$  Tage

$$\alpha = 59500$$

und mit Gleichung (5-3):

$$D_1 = 4,5 \times 10^{-11} \text{ [cm}^2/\text{s]}$$

hieraus errechnet sich bei einer Probendicke von 0.37 cm nach (5-1) eine Durchbruchzeit von 5800 Tagen, wohingegen die gemessene Durchbruchzeit 85 Tage betrug.

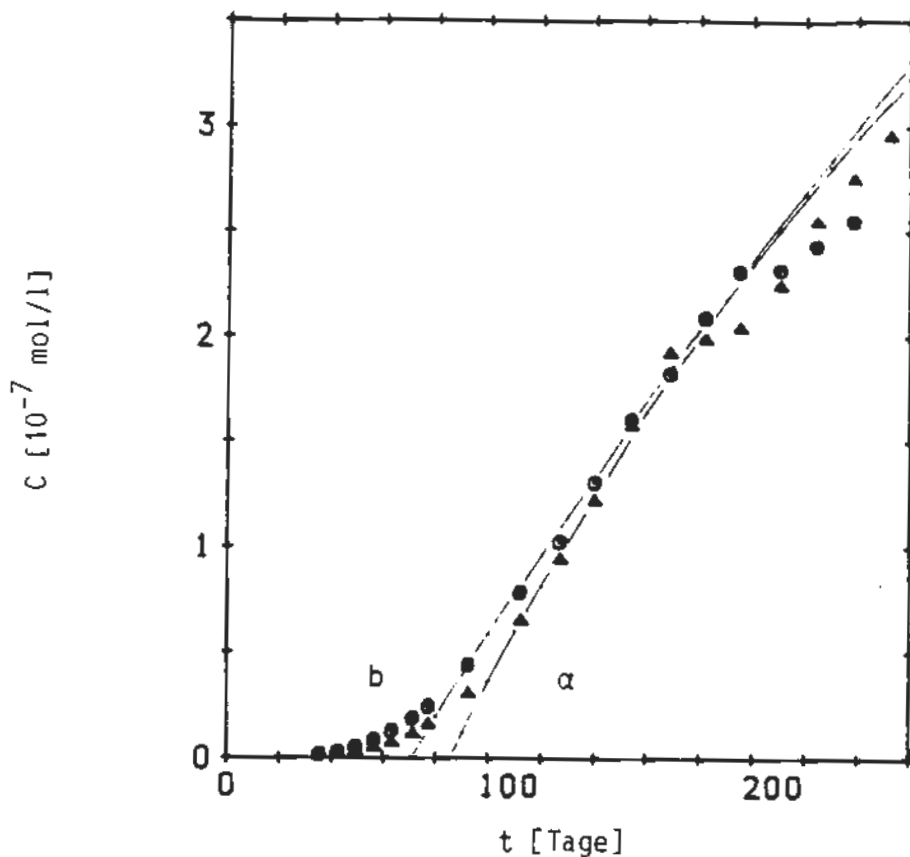


Abb. 5-13: Diffusionsexperiment mit  $^{238}\text{Pu}$ , Söhle-1-Wasser und dem Gestein Lamarcki Pläner. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.

a) Probe 1. Durchgezogene Kurve berechnet mit:  $^{238}\text{Pu}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $7.35 \times 10^{-7}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1.2 \times 10^{-7}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 85$  Tage

b) Probe 2. Durchgezogene Kurve berechnet mit:  $^{238}\text{Pu}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $1.44 \times 10^{-6}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 4.9 \times 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 70$  Tage

Eine Aussage läßt sich zur Kurvenform der Durchbruchkurven machen. Die Durchbruchkurven ab dem Zeitpunkt  $t_D$  lassen sich durch Integration der Gleichung (5-2) berechnen; es folgt Gl. (5-5):

$$c' = a \cdot \left( 1 - e^{-\left( \frac{D \cdot q (t' - t_D)}{V \cdot d} \right)} \right) \quad (5-5)$$

Die durchgezogenen Kurven in den Abbildungen 5-2 und 5-13 wurden nach dieser Gleichung berechnet.



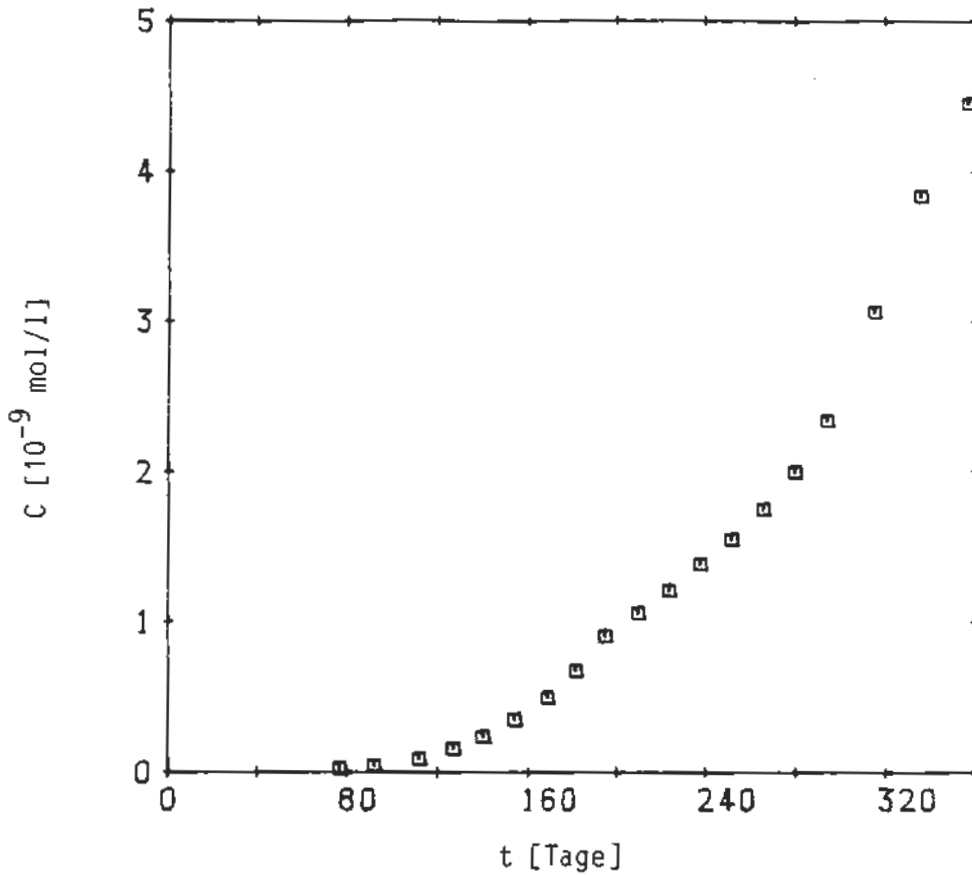


Abb. 5-14: Diffusionsexperiment mit  $^{238}\text{Pu}$ , Söhlde-1-Wasser und dem Gestein U/M-Cenoman. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  $^{238}\text{Pu}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $6.5 \times 10^{-7} \text{ mol/l}$ ; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 7.2 \times 10^{-10} \text{ cm}^2/\text{sec}$ ; Durchbruchzeit  $t_0 = 130 \text{ Tage}$

Bei der Probe Lamarcki Pläner-Neptunium (Abbildung 5-2) stimmt die berechnete Kurve im Bereich bis 150 Tage gut mit den gemessenen Werten überein, der anschließende Abfall der Meßwerte kann dadurch erklärt werden, daß die Neptuniumkonzentration in der aktiven Kammer ebenfalls abgefallen war. Für die Berechnung der Kurven für die Proben mit Cornbrash-Neptunium (Abb. 5-9) wurde etwas anders vorgegangen um die Verdünnung der Konzentrationen auf der inaktiven Seite der Diffusionszelle, die durch die Probenahme und dem anschließenden Auffüllen des Volumens entsteht, bei der Berechnung berücksichtigen zu können. Diese Verdünnung, die bei unseren Experimenten pro Probe-

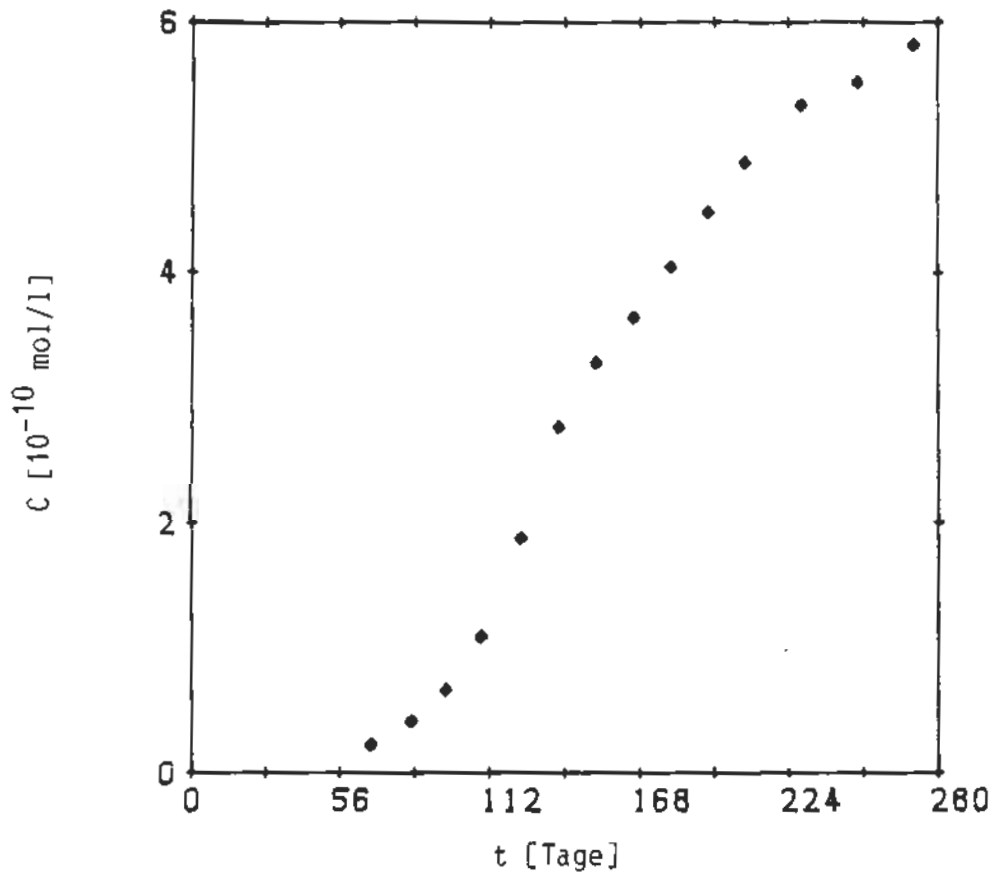


Abb. 5-15: Diffusionsexperiment mit  $^{238}\text{Pu}$ , Str.670-Wasser und dem Gestein Cornbrash. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  $^{238}\text{Pu}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $5.3 \times 10^{-8}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 2.36 \times 10^{-9}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_0 = 80$  Tage

nahme 4 % beträgt, macht sich bei hohen Nuklidkonzentrationen auf der inaktiven Seite bemerkbar.

Die Berechnung der Konzentrationskurve erfolgt über die Differenzenquotientenform der Gleichung (5-2):

$$D_2 = \frac{(c_2 - c_1)}{(t_2 - t_1)} \cdot V \cdot d \cdot \frac{1}{q(a - c_1)} \quad (5-6)$$

hierbei ist:

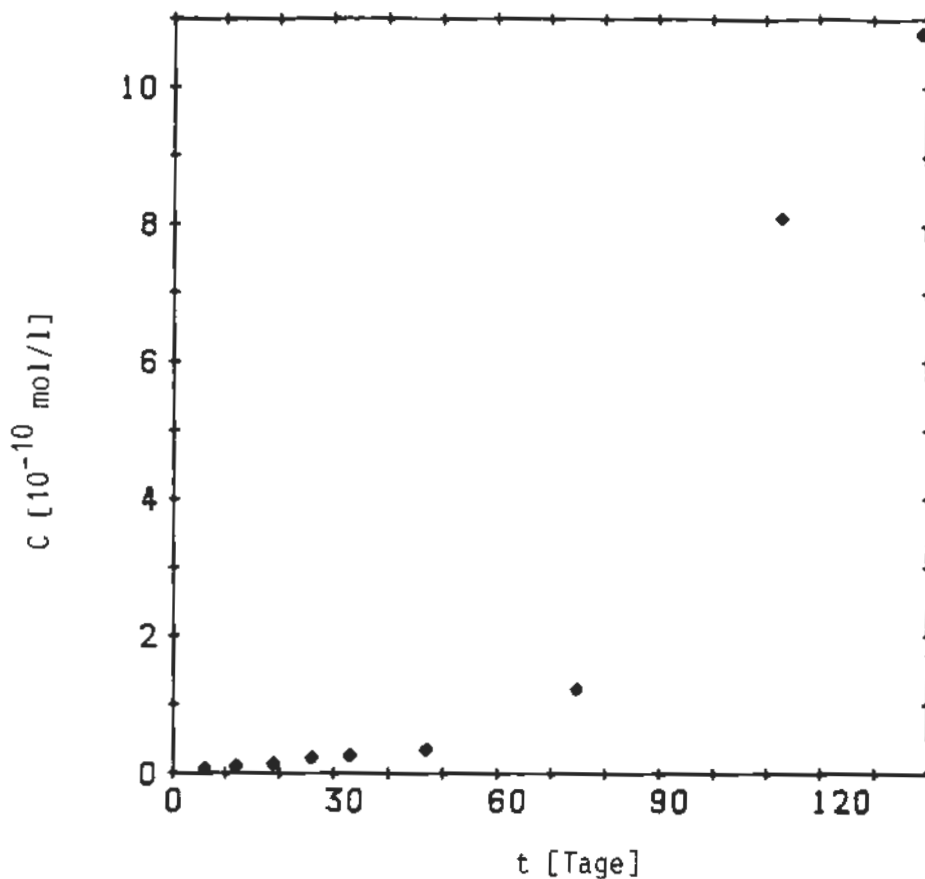


Abb. 5-16: Diffusionsexperiment mit  $^{238}\text{Pu}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 5. Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  $^{238}\text{Pu}$  Konzentration in der aktiven Zelle =  $5.3 \times 10^{-8}$  mol/l; Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1.0 \times 10^{-8}$  cm<sup>2</sup>/sec; Durchbruchzeit  $t_D = 65$  Tage

$c_1$  = Nuklidkonzentration auf der inaktiven Seite zur Zeit  $t_1$

$c_2$  = Nuklidkonzentration auf der inaktiven Seite zur Zeit  $t_2$

$$c_2 = \frac{D \cdot q \cdot (a - c_1) \cdot (t_2 - t_1)}{V \cdot d} + c_1 \quad (5-7)$$

Durch Iteration der Gleichung (5-7) nach der Zeit, wobei die Differenz  $t_2 - t_1$  möglichst klein sein sollte und nach jedem Iterationsschritt das Ergebnis  $c_2$  als neuer Startwert  $c_1$  eingesetzt wird, erhält man die Konzentrationskurve in Abhängigkeit von der Zeit. Die

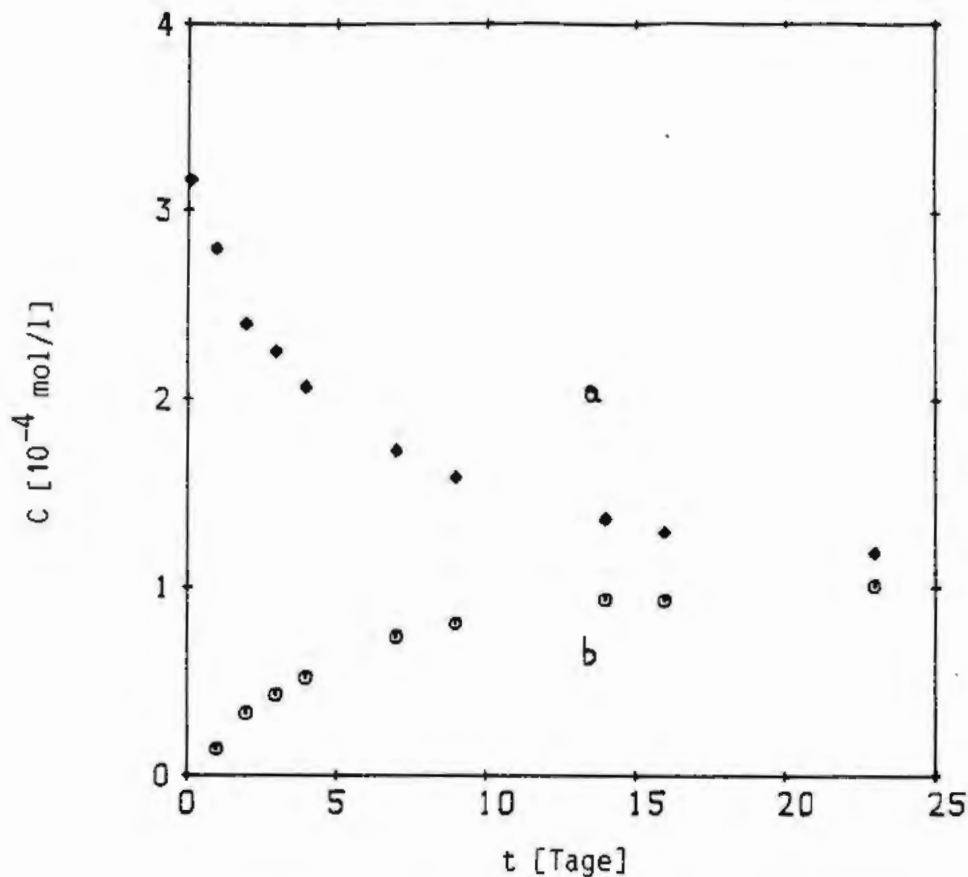


Abb. 5-17: Diffusionsexperiment mit  $^{99}\text{Tc}$ , Hils-2-Wasser und dem Gestein Sorp 5.  
 a) Konzentration in der aktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  
 b) Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  
 Diffusionskoeffizient  $D_2 = 2.7 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ ; Durchbruchzeit  $t_D = 0.18 \text{ Tage}$

Erniedrigung der Konzentration durch die Probenahme kann hierbei leicht berücksichtigt werden, indem für den ersten Iterationsschritt nach der Probenahme zum Zeitpunkt  $t$ , die Konzentration  $c_1$  entsprechend der Verdünnung korrigiert wird.

Die auf diese Weise mit konstantem Diffusionskoeffizient berechneten Konzentrationskurven für die Proben mit Cornbrash-Neptunium stimmen gut mit den gemessenen Konzentrationen überein.

Kürzlich wurde von [19] vorgeschlagen, statt der etwas unbefriedigenden Berechnung von  $K_D$ -Werten aus Kapazitätsfaktoren  $\alpha$ , eine Be-

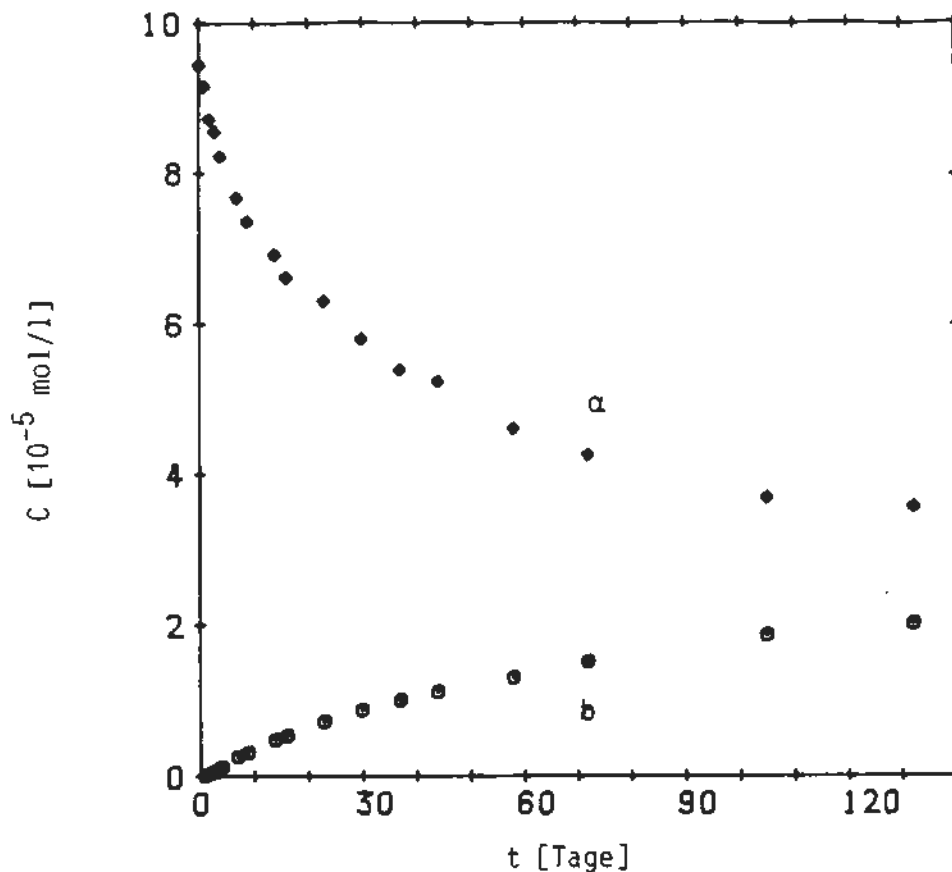


Abb. 5-18: Diffusionsexperiment mit  $^{99}\text{Tc}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 7.  
 a) Konzentration in der aktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  
 b) Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  
 Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1.2 \times 10^{-7} \text{ cm}^2/\text{sec}$ ; Durchbruchzeit  $t_D = 0.4$  Tage

rechnung der  $K_d$ -Werte über die Transportgeschwindigkeit der Nuklide bei der Diffusion durchzuführen. Hierbei sollte  $K_d$  aus dem Diffusionskoeffizienten  $D_1$  im Verhältnis zu einem nicht durch Sorptionseffekte beeinflussten Diffusionskoeffizient  $D_0$  nach Gleichung 5-8 berechnet werden:

$$K_d = \left( \frac{D_0}{D_1} - 1 \right) \cdot \frac{n}{\rho \cdot (1-n)} \quad (5-8)$$

Dieses Konzept dürfte wesentlich erfolgsversprechender sein als das in diesem Bericht angewendete. Voraussetzung ist allerdings eine ge-

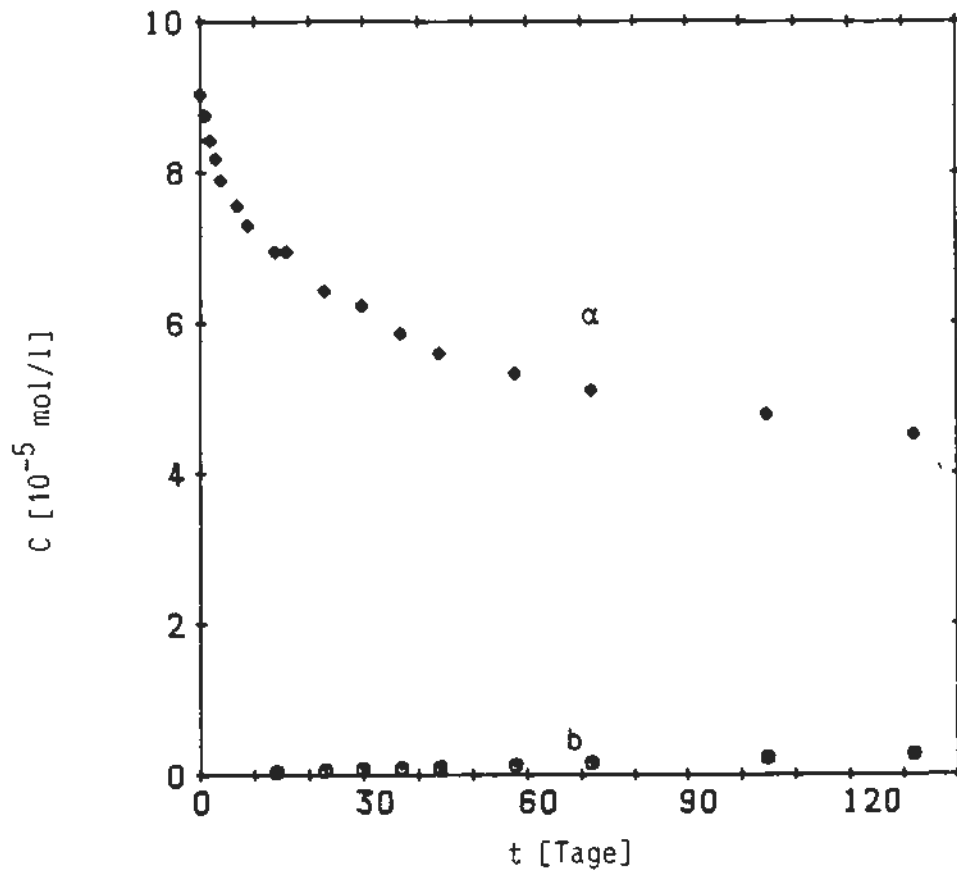


Abb. 5-19: Diffusionsexperiment mit  $^{99}\text{Tc}$ , Ort-300-Wasser und dem Gestein Sorp 8.  
 a) Konzentration in der aktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  
 b) Konzentration in der inaktiven Zelle in Abhängigkeit von der Zeit.  
 Diffusionskoeffizient  $D_2 = 1.2 \times 10^{-8} \text{ cm}^2/\text{sec}$ ; Durchbruchzeit  $t_D = 1.5 \text{ Tage}$

naue Kenntnis der Diffusionskoeffizienten  $D_0$  für die unbeeinflusste Diffusion in den verschiedenen Gesteinsproben.

## 6 ERGEBNISSE DER SÄULENEXPERIMENTE

### 6.1 Säulenumlaufversuche

Es wurde bisher ein Versuch zur Bestimmung der Sorption von Americium an den Oberflächen von Säule und Pumpe mit Modellwasser MW 1 durchgeführt. Hierbei war das Americium bereits nach einer Woche zu 90 % an der Apparatur sorbiert. Ein Versuch mit dem gleichen Wasser und einer mit Versatzmaterial gefüllten Säule zeigte, daß nach einem Monat Laufzeit das Americium im ersten Zentimeter der Säule zu finden war. Für Plutonium sind ähnliche Ergebnisse aufgrund der ähnlichen Sorptionsdaten zu erwarten. Es erscheint deshalb lediglich sinnvoll, Säulenumlaufversuche mit Neptunium durchzuführen, das wesentlich niedrigere Sorptionswerte aufweist als Americium und Plutonium.

### 6.2 Säulendurchlaufversuche

Aufgrund der Ergebnisse mit den Säulenumlaufversuchen war vorgesehen, die Säulendurchlaufversuche hauptsächlich mit dem Nuklid  $^{237}\text{Np}$  durchzuführen.

Da wegen der langen Halbwertszeit dieses Nuklids und der nicht sehr hohen Löslichkeit nur sehr niedrige spezifische Aktivitäten in den Grundwässern zu erhalten sind, wurden die Nuklide kontinuierlich, statt impulsförmig, aus den mit den Nukliden konditionierten Grundwässern auf die Säulen aufgegeben. Bei impulsförmiger Aufgabe des Neptuniums wäre es, wie auch die Versuche zeigen, sehr wahrscheinlich gewesen, daß bei den zu erwartenden starken Peakverbreiterungen bei Durchlauf des Nuklids durch die Säule, das Neptunium im Eluat der Säule nicht mehr hätte nachgewiesen werden können. Dieses Problem tritt bei kontinuierlicher Aufgabe des Nuklids nicht auf.

Ein weiterer Vorteil der kontinuierlichen Nuklidbeaufgabe ist es, daß durch Überladung der Säulen mit dem Nuklid, Durchbruchkurven erhalten werden können. Aus solchen Experimenten können Kapazitätsfaktoren für die Gesteine berechnet werden.

Der Kapazitätsfaktor gibt an welche Nuklidmenge pro Gesteinsmasse sorbiert werden kann und wird berechnet nach:

$$\alpha_i = R_{S(C_i)} \cdot C_i \quad (6-1)$$

hierbei ist:

$$\begin{aligned} \alpha_i &= \text{Kapazitätsfaktor des Gesteins für das Nuklid } i \text{ [mol/kg]} \\ R_{S(C_i)} &= \text{Sorptionskoeffizient bei der Konzentration } C_i \text{ des Nuklids } i \\ &\quad \text{[1/kg]} \\ C_i &= \text{Konzentration des Nuklids } i \text{ in der Aufgabelösung [mol/l]} \end{aligned}$$

Für den Fall, daß der  $R_S$ -Wert nicht von der Konzentration des Nuklids abhängt gilt:

$$\alpha_i = R_S \cdot L_i \quad (6-2)$$

mit  $L_i$  = Löslichkeit des Nuklids  $i$  [mol/l]

Aus Sorptionsversuchen werden dagegen in der Regel niedrigere Kapazitätsfaktoren erhalten, da die für die Berechnung verwendeten Nuklidkonzentrationen diejenigen der Sorptionsproben sind, die gegenüber den Ausgangskonzentrationen durch die Sorption der Nuklide am Festkörper erniedrigt sind.

Bei der beschriebenen Weise der Versuchsführung erwies sich eine Auswertung der Säulenversuche über den Verzögerungsfaktor, d.h. das Verhältnis aus Abstandsgeschwindigkeit des Grundwassers und Transportgeschwindigkeit des Nuklids als nicht durchführbar, da, wie die Versuche zeigten, keine steile Durchbruchkurve erhalten wurde, sondern in der Regel ein langsamer Anstieg der Nuklidkonzentrationen im Eluat mit der Zeit. Der langsame Anstieg deutet darauf hin, daß die Gleichgewichtseinstellung in der Säule sehr langsam ist. Die Berechnung des  $R_S$ -Werts aus den Säulenversuchen wurde daher ähnlich durchgeführt wie bei den Batch-Experimenten bzw. den Säulenumlaufexperimenten.



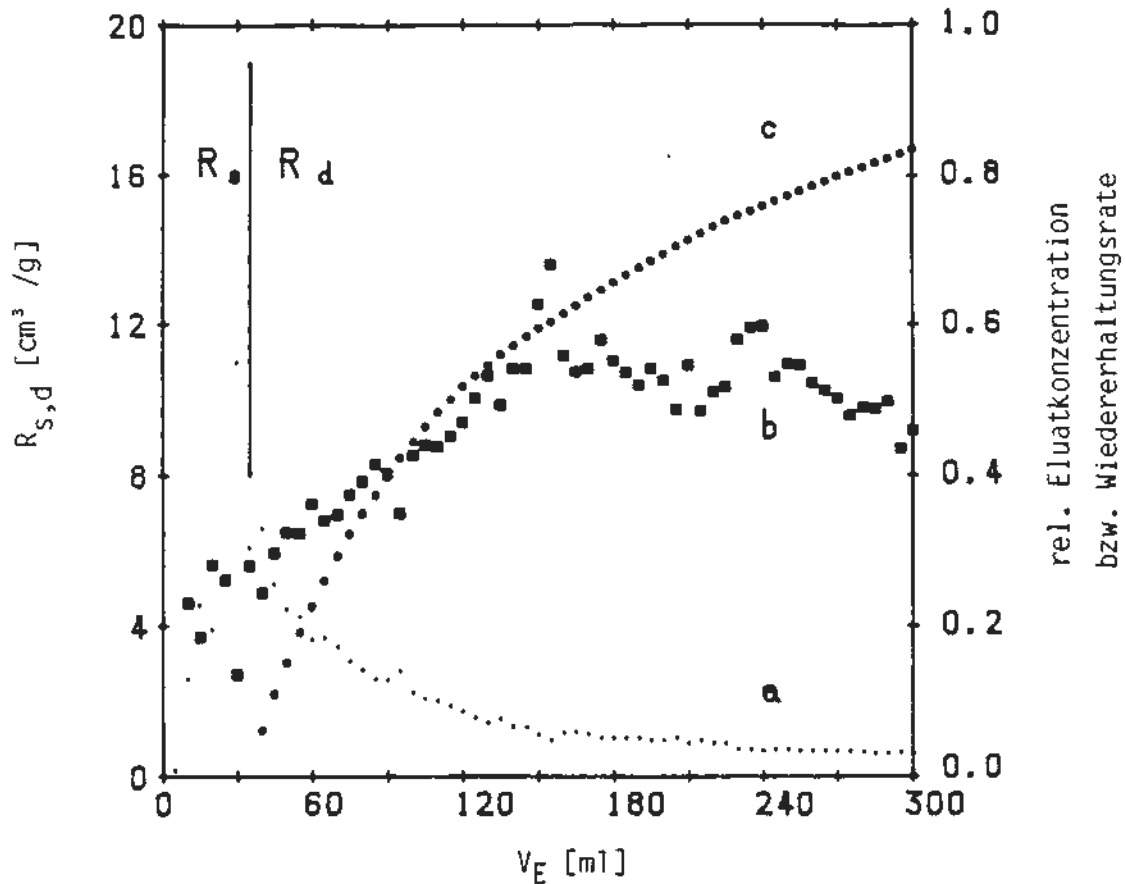


Abb. 6-1: Säulendurchlaufversuch mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gesteins Kimmeridge.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration
- b)  $R_s$ - bzw.  $R_d$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen
- c) Wiedererhaltungsrate von  $^{237}\text{Np}$

Die Konzentration im Feststoff zu einem bestimmten Zeitpunkt läßt sich berechnen aus der Differenz zwischen aufgegebener und eluierter Nuklidmenge dividiert durch die Gesteinseinwaage der Säule. Die Konzentration in der Flüssigphase ist identisch mit der Nuklidkonzentration in Eluat zum Zeitpunkt  $t$ . Diese Art der Berechnung von  $R_s$ -Werten aus Säulenversuchen sollte jedenfalls dann möglich sein, wenn die Nuklidkonzentration im Eluat gleich der Nuklidkonzentration in der aufgegebenen Lösung ist. Es scheint sich aber auch schon vorher ein Gleichgewicht einzustellen. Dies läßt sich zeigen wenn man den  $R_s$ -Wert in Abhängigkeit vom Eluatvolumen  $V_E$  berechnet.

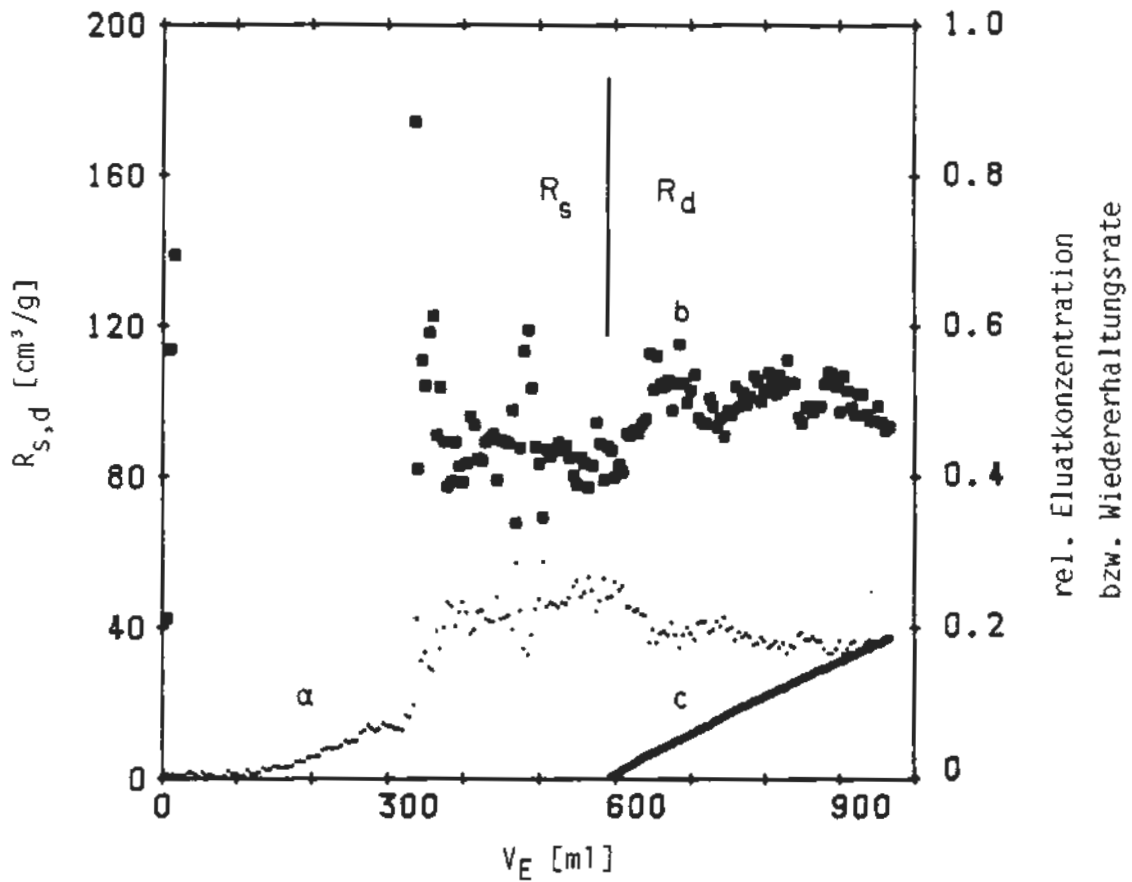


Abb. 6-2: Säulendurchlaufversuch mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gesteins Hangendes Erz.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration
- b)  $R_s$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen
- c) Wiedererhaltungsrate von  $^{237}\text{Np}$

Einige der Säulen wurden auf Desorption umgestellt, d.h., es wurde inaktives vorkonditioniertes Grundwasser statt des mit Nukliden versetzten eingespeist. Aus diesen Desorptionsversuchen können  $R_d$ -Werte berechnet werden. Außerdem werden Aussagen erhalten inwieweit das sorbierte Nuklid wieder desorbiert wird, der Sorptionsvorgang reversibel ist.

Säulendurchlaufversuche wurden mit dem Nuklid  $^{237}\text{Np}$ , dem Söhlde-1-Wasser und den Gesteinen Rhotomagensis Pläner, U/M Cenoman und Lamarcki Pläner sowie mit dem Str.670-Wasser und den Gesteinen Hangendes Erz, Liegendes Erz, Kimmeridge, Erzkalke, Fladentonstein, Heersumer Schichten und Cornbrash durchgeführt, wobei die Feinfraktionen als Säulenfüllung verwendet wurden. Ein weiterer Säulendurchlaufver-

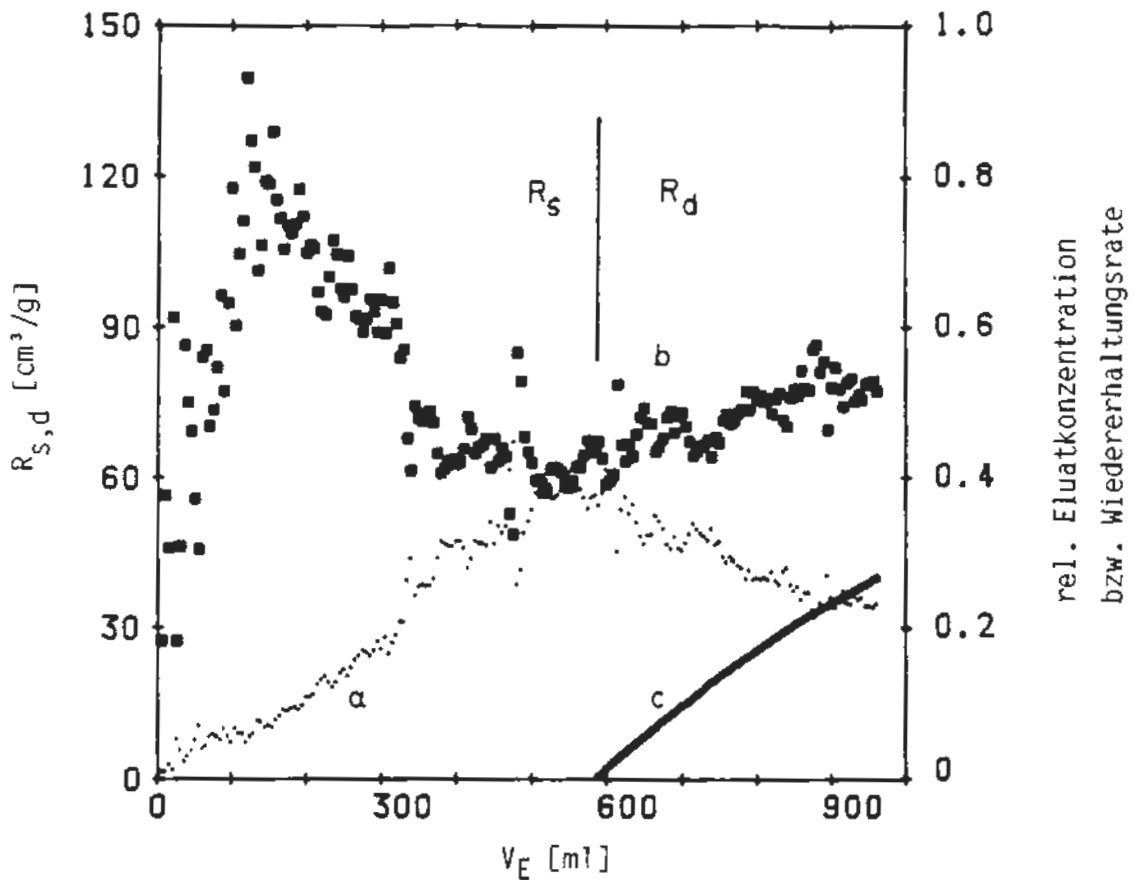


Abb. 6-3: Säulendurchlaufversuch mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gesteins Liegendes Erz.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration
- b)  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen
- c) Wiedererhaltungsrate von  $^{237}\text{Np}$

such wurde mit der Mittelfraktion der Gesteinsprobe Sorp 7 und Ort-300-Wasser durchgeführt. Mit dem Nuklid  $^{238}\text{Pu}$  wurden 2 Säulendurchlaufversuche mit den Feinfraktionen von Kimmeridge und Cornbrash mit Str.670-Wasser unternommen. Wegen der zum Teil hohen zu erwartenden Sorptionswerte wurden kleine Säulen mit einem Durchmesser von 14 mm und einer Füllhöhe von 6 cm eingesetzt. Das Neptunium und Plutonium wurde bei diesen Versuchen aus einer wässrigen Lösung mit konstanter Nuklidkonzentration in die Säulen eingespeist.

Da die niedrigen vorgegebenen Filtergeschwindigkeiten von  $10^{-5}$  bis  $2 \times 10^{-4}$  cm/sec bei kontinuierlichem Betrieb und der gewählten Versuchsanordnung nicht eingestellt werden konnten, wurden die Säulenversuche diskontinuierlich betrieben. Die mittleren Filtergeschwindigkeiten

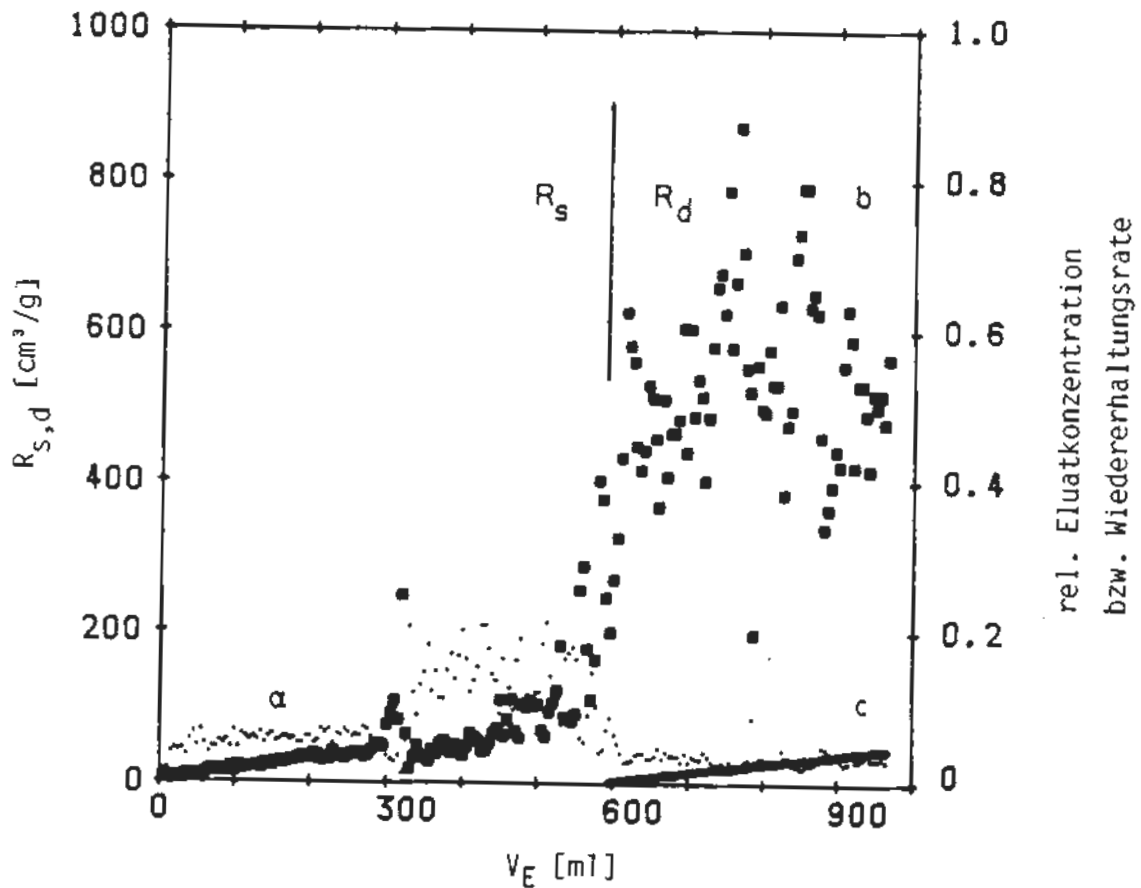


Abb. 6-4: Säulendurchlaufversuch mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gesteins Erzkalke

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration
- b)  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen
- c) Wiedererhaltungsrate von  $^{237}\text{Np}$

betragen ca.  $10^{-4}$  cm/sec und lagen somit an der oberen Grenze des vorgegebenen Bereichs.

Bei den Versuchen mit dem Nuklid  $^{237}\text{Np}$  und den Gesteinsproben Kimmeridge, Hangendes Erz, Liegendes Erz, Erzkalke, Fladentonstein, Heersumer Schichten, Cornbrash und Sorp 7 wurden Durchbruchkurven erhalten. Diese zeichnen sich durch einen gleichmäßigen flachen Anstieg der Neptuniumkonzentration im Eluat ab Versuchsbeginn aus. Das bedeutet, daß das Neptunium gleichmäßig in der Säule verteilt ist und ein Gleichgewicht zwischen der Nuklidkonzentration in Feststoff und in der flüssigen Phase besteht.

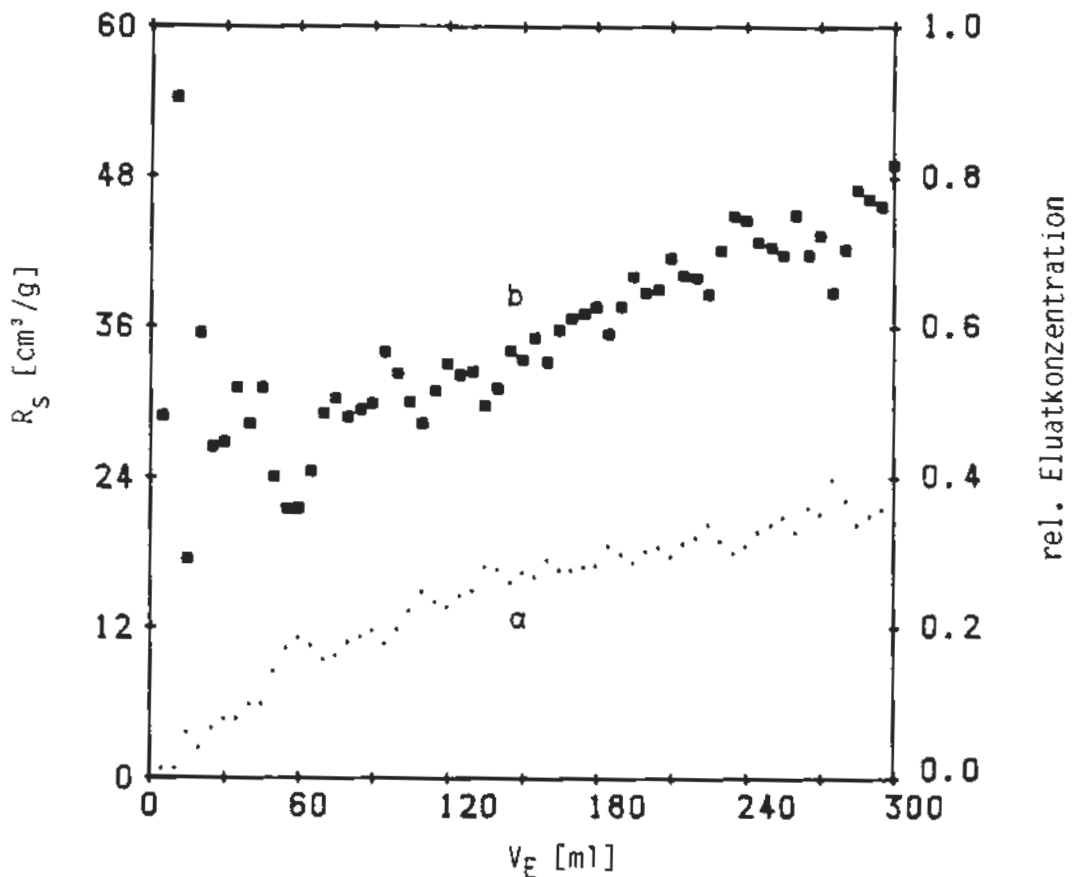


Abb. 6-5: Säulendurchlaufversuch mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gesteins Fladentonstein.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration  
 b)  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen

In den Abbildungen 6-1 bis 6-10 sind die aus der Nuklidkonzentration im Eluat und der Nuklidkonzentration der Säulenfüllung berechneten  $R_S$ - bzw.  $R_D$ -Werte sowie die Nuklidkonzentration im Eluat gegen das Eluatvolumen  $V_E$  aufgetragen. Zusätzlich ist die Menge des eluierten Nuklids, bezogen auf die sorbierte Menge zum Zeitpunkt der Umstellung der Säulen von Sorption auf Desorption, aufgetragen.

Die Probe Kimmeridge (Abb. 6-1), die einen sehr schnellen Durchbruch aufwies, wurde bei ca. 40 ml Eluatvolumen auf inaktives Wasser als Eluens, also auf Desorption umgestellt. Bei dieser Probe steigt der

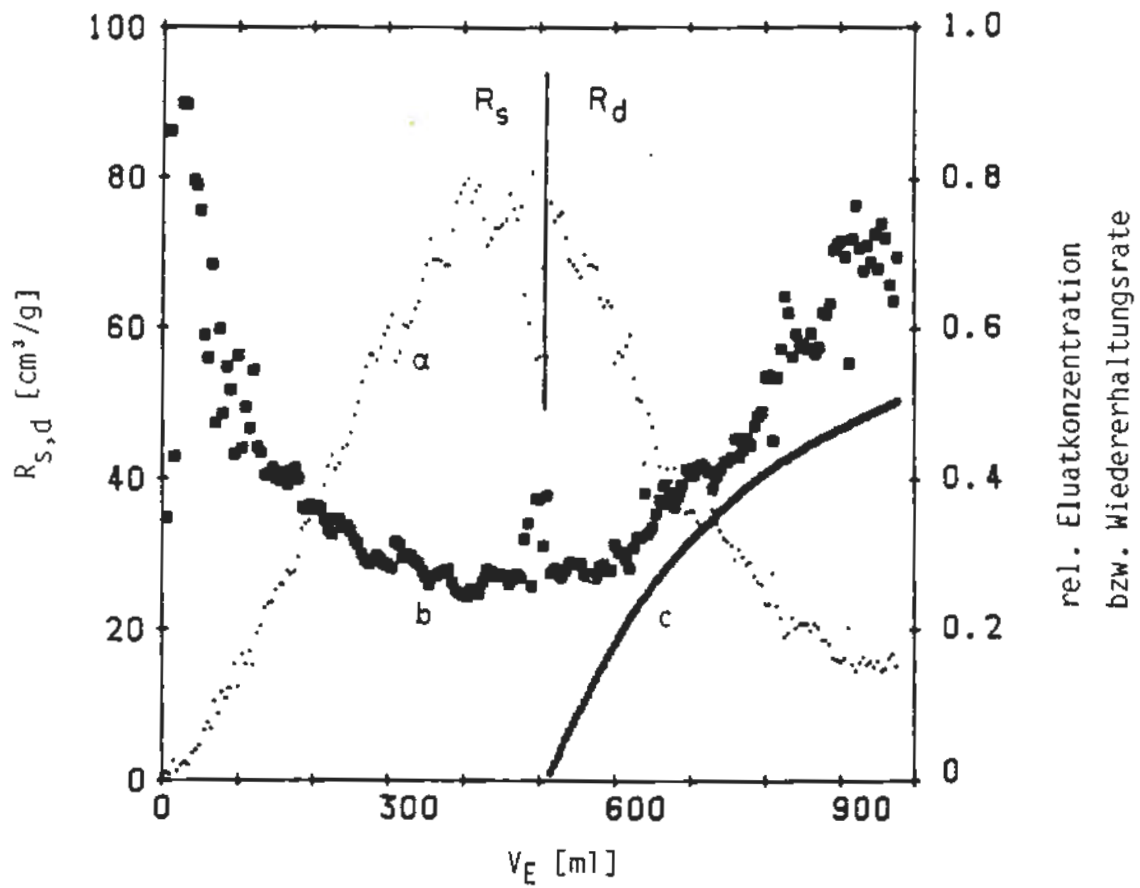


Abb. 6-6: Säulendurchlaufversuch mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gestein Heersumer Schichten.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration
- b)  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen
- c) Wiedererhaltungsrate von  $^{237}\text{Np}$

$R_D$ -Wert mit dem Eluatvolumen über den bis zu  $V_E = 40$  ml gemessenen  $R_S$ -Wert an, was mit Batch-Versuchen übereinstimmt, bei denen ebenfalls  $R_D > R_S$  ist. In der Tabelle 6-1 sind die erhaltenen  $R_{S/d}$ (Säule)-Werte den  $R_S$ -Werten aus den entsprechenden Batch-Versuchen gegenübergestellt. Der  $R_D$ -Wert des Säulenversuchs stimmt mit dem  $R_S$ -Wert des Batch-Versuchs an der Grobfraktion in etwa überein, während der  $R_S$ -Wert des Batch-Versuchs an der Feinfraktion wesentlich über dem  $R_S$ -Wert des Säulenversuchs liegt. Bei der Desorption wird das Neptunium relativ gut eluiert. Zu Versuchsende waren 85 % des sorbierten Neptuniums desorbiert.

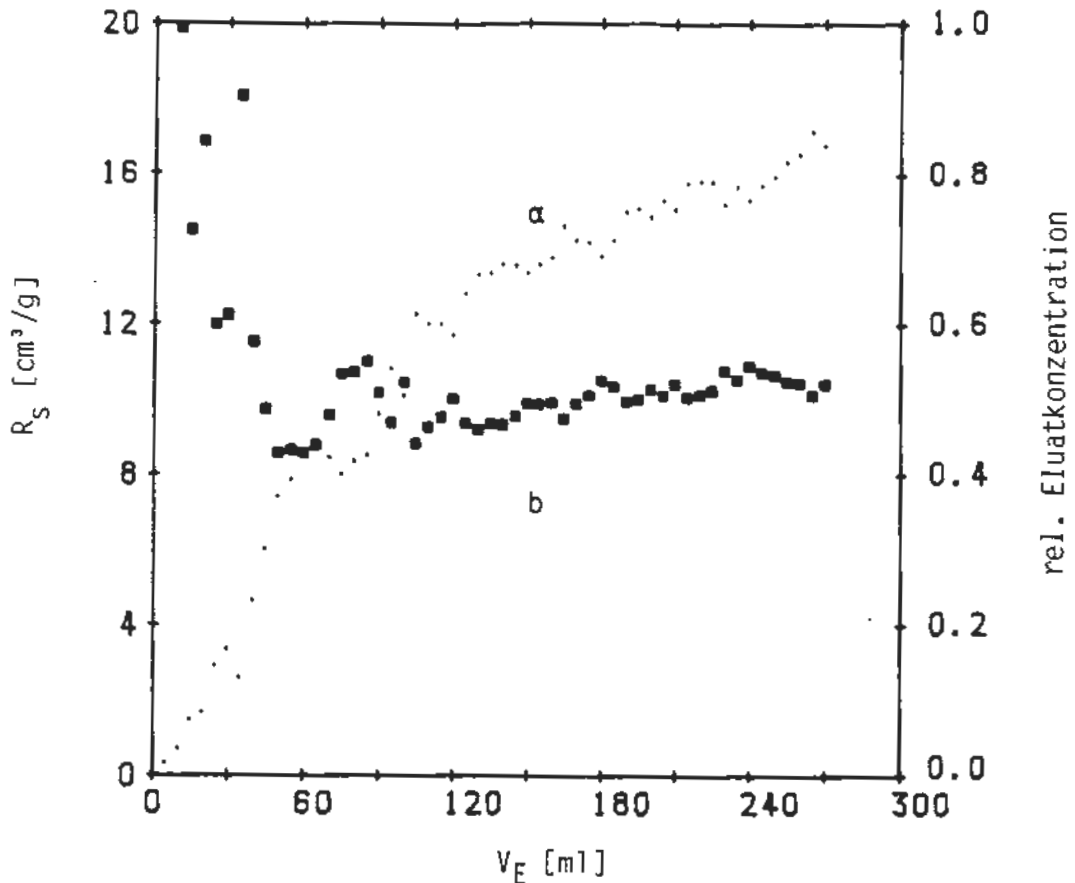


Abb. 6-7: Säulendurchlaufversuch mit  $^{237}\text{Np}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gesteins Cornbrash.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration  
 b)  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen

Bei der Probe Hangendes Erz (Abb. 6-2) stimmen die  $R_{S/D}$ -Werte des Säulenversuchs gut mit den  $R_S$ -Werten aus den Batch-Versuchen überein. Der Unterschied zwischen  $R_S$ - und  $R_D$ -Wert des Säulenversuchs ist gering, da das Neptunium gut desorbiert wird.

Die Sorptionswerte der Probe Liegendes Erz (Abb. 6-3) sind bei den Batch-Versuchen wesentlich höher als bei den Säulenversuchen. Da das Neptunium auch bei dieser Probe leicht desorbiert wird ist der Unterschied zwischen  $R_S$ - und  $R_D$ -Wert des Säulenversuchs gering.

Der  $R_S$ -Wert des Säulenversuchs mit der Probe Erzkalke (Abb. 6-4) stimmt mit den  $R_S$ -Werten der Batch-Versuche überein.  $R_S$ - und  $R_D$ -Werte

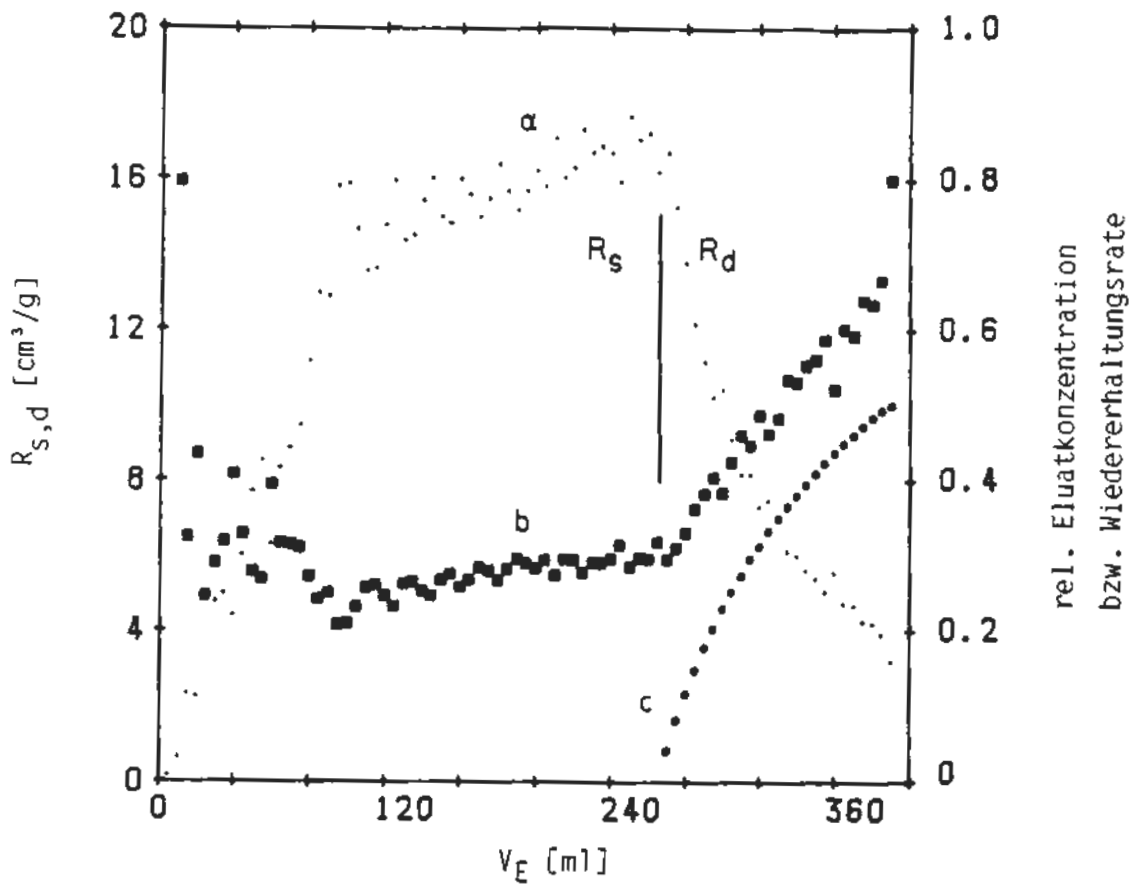


Abb. 6-8: Säulendurchlaufversuch mit  $^{237}\text{Np}$ , Ort-300-Wasser und der Mittelfraktion des Gesteins Sorp 7.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration
- b)  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen
- c) Wiedererhaltungsrate von  $^{237}\text{Np}$

des Säulenversuchs weisen beträchtliche Unterschiede auf, das Neptunium wird nur schwer desorbiert.

Der Säulenversuch mit Fladentonstein (Abb. 6-5) zeigt eine gute Übereinstimmung des  $R_S$ -Wertes mit den  $R_S$ -Werten aus den Batch-Experimenten mit der Feinfraktion.

Der Säulenversuch mit der Probe Heersumer Schichten (Abb. 6-6) zeigt einen relativ schnellen Durchbruch des Neptuniums, die Neptuniumkon-



zentration im Eluat erreicht fast 90 % der Konzentration in der Speiselösung. Der  $R_S$ -Wert des Säulenversuchs ist niedriger als die  $R_S$ -Werte der Batch-Versuche. Nach Umstellung des Versuchs auf Desorption fällt die Neptuniumkonzentration im Eluat stark ab. Die ersten 20 % des sorbierten Neptuniums lassen sich leichter eluieren als das übrige Neptunium. Dies macht sich durch den Anstieg der  $R_D$ -Werte mit zunehmendem Eluatvolumen bemerkbar. Die zuletzt gemessenen  $R_D$ -Werte sind etwas höher als die  $R_S$ -Werte aus den Batch-Versuchen.

Der  $R_S$ -Wert des Versuchs mit Cornbrash (Abb. 6-7) stimmt mit den aus den Batch-Versuchen überein.

Bei den Säulenversuchen mit der Mittelfraktion des Gesteins Sorp 7 (Abb. 6-8) wurde ein schneller Durchbruch des Neptuniums erhalten. Der  $R_S$ -Wert ist wesentlich niedriger als der aus den Batch-Versuchen. Nach Umstellung des Versuchs auf Desorption fiel die Nuklidkonzentration im Eluat stark ab, entsprechend stieg der  $R_D$ -Wert. Bei Versuchsende waren 50 % des sorbierten Neptuniums eluiert.

Bei den 3 Säulenversuchen mit Söhlde-Wasser und Neptunium konnte keine Durchbruchskurve erhalten werden. Aus den Neptuniumkonzentrationen im Eluat der Säulen und der sorbierten Menge an Neptunium läßt sich abschätzen, daß die  $R_S$ -Werte bei den Proben Rhotomagensis Pläner und Lamarcki Pläner größer  $200 \text{ cm}^3/\text{g}$  sein müssen, bei der Probe U/M Cenoman größer als  $400 \text{ cm}^3/\text{g}$ . Diese Abschätzungen bestätigen die Ergebnisse aus den Batch-Versuchen.

Mit Plutonium wurden 2 Säulenversuche durchgeführt (Abb. 6-9 und 6-10). Bei diesen Versuchen steigt der  $R_S$ -Wert mit zunehmendem Eluatvolumen an. Dies kann damit erklärt werden, daß die Säulen etwas "Schlupf" hatten, sodaß im Eluat stets eine in etwa gleiche Plutoniumkonzentration von 1 bis 5 % der Konzentration der Speiselösung gemessen wurde. Andererseits wurde das restliche Plutonium auf der Säule sorbiert, wodurch die Plutoniumkonzentration der festen Phase, und somit der  $R_S$ -Wert ansteigt. Dies zeigte auch die Umstellung der

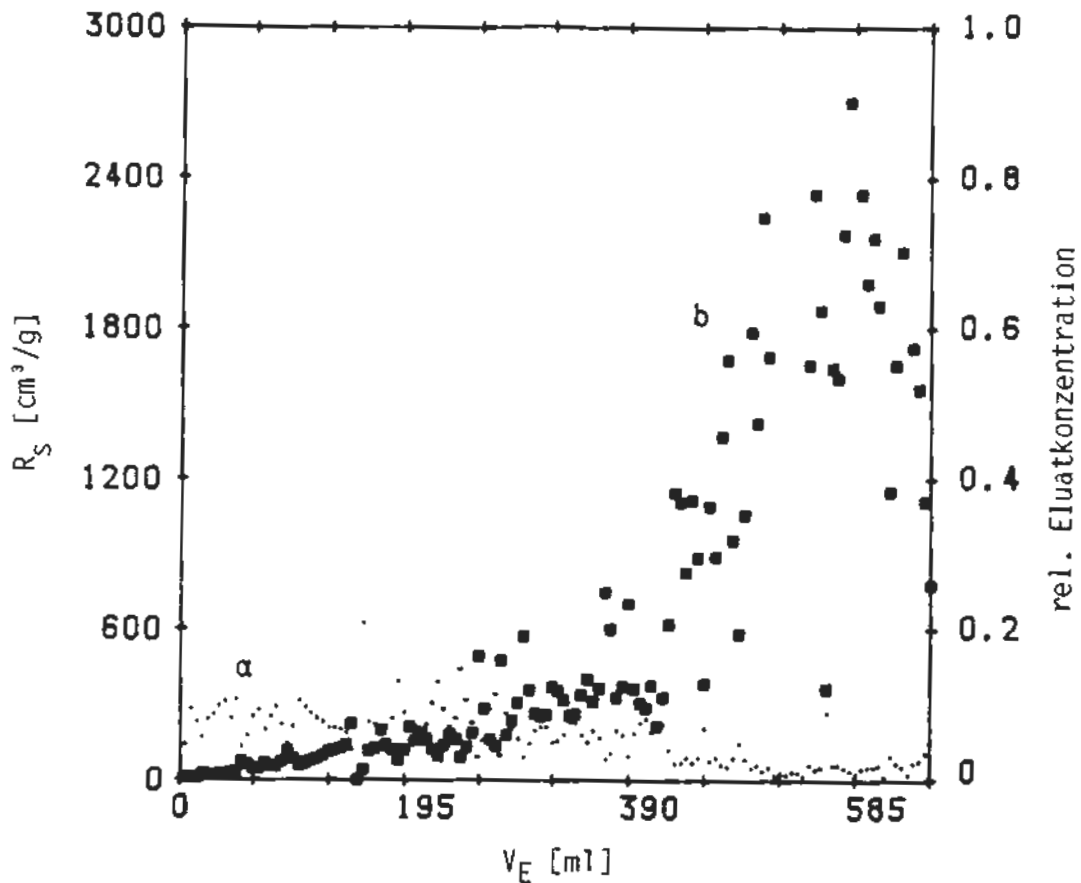


Abb. 6-9: Säulendurchlaufversuch mit  $^{238}\text{Pu}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gesteins Kimmeridge.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration  
 b)  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen

Säule mit Cornbrash (Abb. 6-10) auf Desorption, bei welcher die Pu-Konzentration im Eluat nach der Umstellung sofort stark abfiel. Bis Versuchsende ließ sich nur 1 % des sorbierten Plutoniums desorbieren.

Insgesamt erwies sich die gewählte Dimensionierung der Säulen bei den vorgegebenen Durchlaufgeschwindigkeiten als geeignet für Versuche an Sorptionsproben mit einem  $R_S$ -Wert zwischen 5 und  $150 \text{ cm}^3/\text{g}$ .

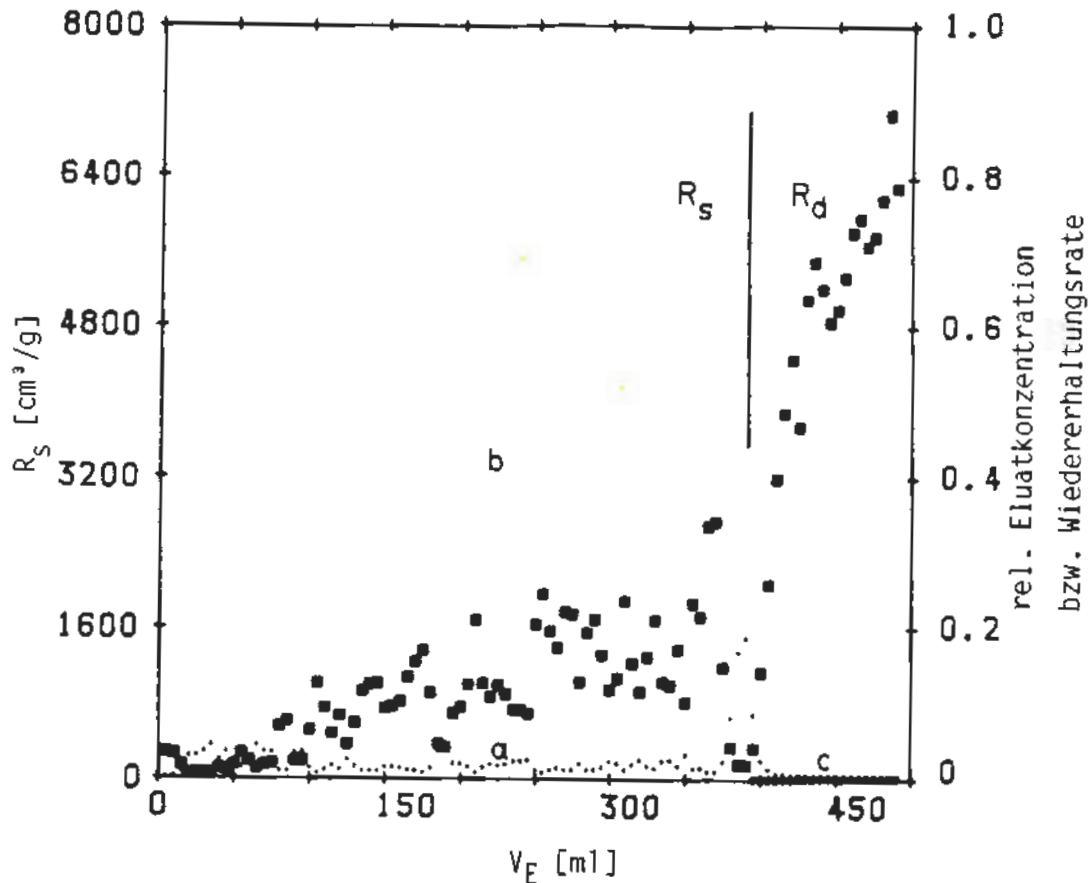


Abb. 6-10: Säulendurchlaufversuch mit  $^{238}\text{Pu}$ , Str.670-Wasser und der Feinfraktion des Gesteins Cornbrash.

- a) relative Nuklidkonzentration im Eluat bezogen auf die Ausgangskonzentration  
 b)  $R_S$ -Werte in Abhängigkeit vom Eluatvolumen  
 c) Wiedererhaltungsrate von  $^{238}\text{Pu}$

Ein Vergleich der  $R_S$ -Werte aus den Batch-Versuchen mit den  $R_S$ -Werten aus den Säulenversuchen zeigt dann Unterschiede auf, wenn die  $R_S$ -Werte der Batch-Versuche mit der Zeit ansteigen, was meistens der Fall ist. Bei den Batch-Versuchen, bei denen die  $R_S$ -Werte nicht anstiegen (Tab. 4.6-5: Hangendes Erz/Str.670-Wasser/ $^{237}\text{Np}$ , Cornbrash/Str.670-Wasser/ $^{237}\text{Np}$ ) stimmen die  $R_S$ -Werte von Säulen- und Batch-Experimenten gut überein. Bei dem Vergleich ist zu berücksichtigen, daß die Kontaktzeiten zwischen fester und flüssiger Phase bei Batch- und Säulenversuchen unterschiedlich zu bewerten sind. Bei den Batch-

versuchen steht stets die gleiche flüssige Phase über die ganze Versuchsdauer (bis ca. 50 Wo) mit der festen Phase in Kontakt, bei den Säulenversuchen wird die flüssige Phase laufend ausgetauscht. Die Kontaktzeit, eines Bruchteils der flüssigen Phase in Kontakt mit der Säulenfüllung, beträgt nur ca. 1 Tag. Vergleicht man die  $R_S$ -Werte der Batch-Versuche mit einer Kontaktzeit von 1 bis 9 Wochen mit den  $R_S$ -Werten der Säulenversuche, so findet man für das System Sorp7/Ort-300-Wasser/ $^{237}\text{Np}$  (Tab. 4.6-6) sowie für die Systeme mit Str.670-Wasser und  $^{237}\text{Np}$  (Tab. 4.6-5) eine gute Übereinstimmung, mit Ausnahme der Systeme mit Fladentonstein und Erzkalken, deren  $R_S$ -Werte eher mit den  $R_S$ -Werten der Batchversuche mit einer Kontaktzeit von 38 bis 52 Wochen übereinstimmen, was, zumindest bei dem System mit Erzkalken, auf teilweise irreversible Sorption des Neptuniums zurückzuführen ist. Die  $R_S$ -Werte aus den Säulenversuchen berücksichtigen demnach weit weniger als die  $R_S$ -Werte aus Batchversuchen eine langsame Gleichgewichtseinstellung.

### 6.3 Kolloideffekt bei Säulenexperimenten

Anhand der Säulenexperimente kann die Frage untersucht werden, inwieweit Kolloide am Nuklidtransport beteiligt sind. Hierzu wurde das Eluat der Säulen, die eine nachweisbare Nuklidkonzentration im Eluat aufwiesen, nach 5 Wochen Laufzeit mit Filtern der Porengrößen 450 nm (Millex), 30 nm (Nucleopore) und ca. 2 nm (20 KD Sartorius) filtriert und die Nuklidkonzentration im Filtrat gemessen. Bei keiner der untersuchten Proben von Neptunium in Str.670-Wasser als Eluat der Säulen mit Hangendes Erz, Liegendes Erz, Kimmeridge, Fladentonstein, Heersumer Schichten und Cornbrash als Säulenfüllung konnte ein Unterschied der Filtrate zu den unfiltrierten Eluaten festgestellt werden (Tabelle 4.6-69). Dies zeigt, daß ein Nuklidtransport von Neptunium durch Kolloide, in dem stark salinen Str.670-Wasser, nicht stattfindet.

7 LITERATUR

- [1] "Site characterisation report for the basalt waste isolation project"  
DOE / RL 82-3 U.S. Department of Energy, Nevada Operation Office, Las Vegas (1982)
- [2] T.O.Early, D.R.Drewes, G.K.Jakobs, R.C.Routson  
"Geochemical controls on radionuclide releases from a nuclear waste repository in basalt: Estimated solubilities for selected elements"  
RHO-BW-ST-39 P, Rockwell Hanford Operations Richland, Wash. (1982)
- [3] P.F.Salter, G.K.Jakobs  
"Evaluation of radionuclide transport: Effect of radionuclide sorption and solubility"  
RH-BW-SA-192 A, Rockwell Hanford Operations, Richland, Wash. (1981)
- [4] A.D.Kelmers, R.J.Clark, N.H.Cutshall, G.K.Jakobs, J.S.Johnson, J.H.Kessler, R.E.Meyer  
"Evaluation of radionuclide geochemical information developed by DOE high-level nuclear waste repository site projects"  
NUREG/CR-3730, ORNL/TM-9109 (1984)
- [5] E.Bondietti  
"The effects of redox potentials on sorption of radionuclides by geologic media"  
PNL-SA-7352, Vol. I, 377 (1978)
- [6] Ch.Lierse, W.Treiber, J.I.Kim  
"Hydrolysis reaction of Neptunium(V)"  
Radiochimica Acta 38 27 (1985)

- [7] A.I.Moskvin  
"Hydrolytic behavior of Neptunium(IV,V,VI)"  
Radiokhimiya 13 681 (1971)
- [8] E.P. Sevostyanova, G.V.Khalturin  
"Hydrolytic behavior of Neptunium(V)"  
Radiokhimiya 18 870 (1976)
- [9] K.A.Kraus, F.Nelson  
Report AECD - 1864 (1948)
- [10] J.Paquette, J.A.K.Raid, E.L.J.Rosinger  
"Review of Technetium behavior in relation to nuclear waste disposal"  
Report TR-25 (1980)
- [11] J.I.Kim, H.Rommel et.al.  
"Nuklidmigration (Np, Pu, Am, Cm) im Deckgebirge des Endlagerortes Gorleben"  
Institut für Radiochemie der TU München, RCM 02585 (1985)
- [12] K.Ueno, A.Saito  
"Solubility and absorption spectra of a carbonato complex of pentavalent Neptunium"  
Radiochem. Radioanal. Letters 22 127 (1975)
- [13] B.Allard, K.Andersson, J.Rydberg  
"Actinide sorption on rock minerals"  
Department of Nuclear Chemistry, Chalmers University of Technology, S-412, 96 Göteborg, Sweden (1981)
- [14] K.Skagius, J.Neretnicks  
"Diffusion in crystallin rocks of some sorbing and nonsorbing species"  
SKBF/KBS 82-12 (1982)

- [15] T.E.Eriksen, A.Jacobsson  
"Diffusion in clay - experimental techniques and theoretical models"  
SKBF/KBS 84-06 (1984)
- [16] H.Meier et. al.  
"Bestimmung des Sorptions-/Desorptionsverhaltens ausgewählter Radionuklide (U, Th, Ra u.a.) an repräsentativen Gesteinen für den Standort Schachanlage Konrad"  
Staatliches Forschungsinstitut für Geochemie, Bamberg;  
3. Zwischenbericht 1.7.1984 bis 31.12.1984
- [17] G. Tittel  
PTB-Mitteilung vom 18.4.1985
- [18] PTB-Besprechung vom 11.4.1985, Protokollblatt 1 und  
PTB-Besprechung vom 6.8.1985, Protokollblatt 5
- [19] H. Meier, W. Hecker, E. Zimmerhackl, G. Zeitler, P. Menge  
"Zur Ableitung von  $K_d$ -Werten aus Diffusionsversuchen"  
PTB-SE-14 (1986)

8 TABELLEN



Tabelle 1-1: Sorptionskoeffizienten für  $^{237}\text{Np}$  für unbeeinflusste Sediment/Grundwasser-Systeme unter aeroben und anaeroben Bedingungen; Mittelwerte aus drei Parallelproben; Kontaktzeit 27 bis 50 Wochen;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm

Gestein	GW	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
		aerob		anaerob
		Feinfraktion	Grobfraktion	Grobfraktion
Quartär, Sand	Quartär	$9.3 \pm 0.6$	-	-
Quartär, bindig	"	$36.6 \pm 2.6$	-	-
Rotpläner	Söhlde 1	$317 \pm 10$	$83 \pm 10$	-
Rhotomagensis Pläner	"	$>200$	$>360$	-
Lamarcki Pläner	"	$217 \pm 30$	$>260$	-
U/M Cenoman	"	$>300$	$>340$	-
"	Str.670	$18.4 \pm 1.3$	-	$13.2 \pm 0.9$
Kimmeridge	Hils 1	$136 \pm 28$	-	-
"	Str.670	$44 \pm 9$	$14.3 \pm 0.6$	$21.8 \pm 2.3$
Hangendes Erz	Hils 1	$115 \pm 43$	$88 \pm 8$	-
"	Str.670	$104 \pm 46$	$85 \pm 10$	$105 \pm 21$
Liegendes Erz	Hils 1	$177 \pm 12$	$88 \pm 6$	-
"	Str.670	$186 \pm 20$	$197 \pm 42$	-
Versatzmaterial	Str.670	$137 \pm 28$	-	-
Erzkalke	Hils 1	$230 \pm 90$	-	-
"	Str.670	$66 \pm 24$	$32 \pm 10$	-
Fladentonstein	Hils 1	$137 \pm 20$	-	-
"	Str.670	$46 \pm 4$	$89 \pm 21$	-
Heersumer Schichten	Hils 1	$68 \pm 4$	$93 \pm 46$	-
"	Str.670	$52 \pm 3$	$54 \pm 6$	$34.1 \pm 1.9$
Cornbrash	"	$8.9 \pm 0.9$	-	-
			Mittelfraktion	Mittelfraktion
Sorp 1	Söhlde 2	$>500$	-	-
Sorp 2	MW 2	$>670$	-	-
Sorp 3	Hils 2	$117 \pm 26$	-	-
Sorp 4	"	$58 \pm 15$	-	-
Sorp 5	"	$2.75 \pm 0.38$	-	$8.34 \pm 0.66$
Sorp 6	Ort 300	$25.0 \pm 1.2$	-	-
Sorp 7	"	$32.5 \pm 4.2$	-	$28.8 \pm 3.2$
Sorp 9	"	$150 \pm 7$	-	-
Sorp 10	"	$87 \pm 11$	-	$29.8 \pm 1.0$

Tabelle 1-2: Sorptionskoeffizienten für  $^{238}\text{Pu}$  für unbeeinflusste Sediment/Grundwasser-Systeme unter aeroben Bedingungen; Mittelwerte aus drei Parallelproben; Kontaktzeit 28 bis 50 Wochen;  $V/n = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm

Gestein	GW	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		Feinfraktion	Grobfraktion
Quartär, Sand	Quartär	96000 $\pm$ 10000	-
Quartär, bindig	"	8400 $\pm$ 3500	-
Rotpläner	Söhlde 1	30500 $\pm$ 7100	4490 $\pm$ 90
Rhotomagensis Pläner		>100000	2430 $\pm$ 170
Lamarecki Pläner	"	24800 $\pm$ 1200	3300 $\pm$ 190
U/M Cenoman	"	18950 $\pm$ 6170	7460 $\pm$ 1120
U/M Cenoman	Str.670	11500 $\pm$ 1200	-
Kimmeridge	Hils 1	18000 $\pm$ 6800	2670 $\pm$ 340
"	Str.670	>29000	4980 $\pm$ 870
Hangendes Erz	Hils 1	21000 $\pm$ 2000	12750 $\pm$ 1040
"	Str.670	102000 $\pm$ 17000	-
Liegendes Erz	Hils 1	>26000	9720 $\pm$ 1710
"	Str.670	18200 $\pm$ 2700	18720 $\pm$ 6150
Versatzmaterial	Str.670	>200000	-
Erzkalke	Hils 1	>80000	-
"	Str.670	>28000	19600 $\pm$ 5600
Fladentonstein	Hils 1	>30000	-
"	Str.670	>80000	37340 $\pm$ 13400
Heersumer Schichten	Hils 1	14500 $\pm$ 5600	21150 $\pm$ 2350
"	Str.670	>51000	38500 $\pm$ 11800
Cornbrash	"	11250 $\pm$ 150	-
		Mittelfraktion	
Sorp 5	Hils 2	>55000	
Sorp 7	Ort 300	> 6800	
Sorp 9	"	>26000	
Sorp 10	"	>38000	

Tabelle 1-3: Sorptionskoeffizienten für  $^{241}\text{Am}$  für unbeeinflusste Sediment/Grundwasser-Systeme unter aeroben Bedingungen; Mittelwerte aus drei Parallelproben; Kontaktzeit 30 bis 50 Wochen;  $V/n = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm

Gestein	GW	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		Feinfraktion	Grobfraktion
Quartär, Sand	Quartär	11200 ± 800	-
Quartär, bindig	"	48500 ± 3200	-
Rotpläner	Söhlde 1	18150 ± 910	-
Rhotomagensis Pläner	"	10400 ± 1800	-
Lamarcki Pläner	"	2070 ± 60	-
U/M Cenoman	"	>20000	-
U/M Cenoman	Str.670	>21000	-
Kimmeridge	Str.670	>12000	-
Hangendes Erz	Hils 1	>25000	-
"	Str.670	26000 ± 3800	4260 ± 500
Liegendes Erz	Hils 1	>30000	-
"	Str.670	39000 ± 6000	3220 ± 140
Erzkalke	Str.670	>20000	-
Fladentonstein	Str.670	15600 ± 650	-
Heersumer Schichten	Hils 1	>30000	-
"	Str.670	9900 ± 2300	5120 ± 420

Tabelle 1-4: Sorptionskoeffizienten für  $^{99}\text{Tc}$  für unbeeinflusste Sediment/Grundwasser-Systeme unter aeroben und anaeroben Bedingungen; Mittelwerte aus drei Parallelproben; Kontaktzeit 27 bis 30 Wochen;  $V/n = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm; Mittelfraktion

Gestein	GW	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		aerob	anaerob
Sorp 5	Hils 2	0.78 ± 0.06	0.35 ± 0.07
Sorp 7	Ort 300	2.58 ± 0.01	1.88 ± 0.12

Tabelle 2-1: Zuordnung der Gesteine zu den Grundwässern

Interne Probenbe- zeichnung	Gestein	Wasser
Koge 1	Rotpläner	Söhlde 1 und bidest.
Koge 2	Rhotomagensis Pläner	Söhlde 1 und bidest.
Koge 3	Lamarcki Pläner	Söhlde 1 und bidest.
Koge 4	U/M Cenoman	Söhlde 1, bidest. und Str.670
Koge 5	Kimmeridge	Hils 1 und Str.670
Koge 6	Hangendes Erz	Hils 1 und Str.670
Koge 7	Liegendes Erz	Hils 1 und Str.670
Koge 8	Versatzmaterial	MW 1 und Str.670
Koge 9	Erzkalke	Hils 1 und Str.670
Koge 10	Fladentonstein	Hils 1 und Str.670
Koge 11	Heersumer Schichten	Hils 1 und Str.670
Koge 12	Cornbrash	Str.670
Koge 13	Quartär, sandig	Quartär
Koge 14	Quartär, bindig	Quartär
Sorp 1	Turon	Söhlde 2
Sorp 2	Cenoman	MW 2
Sorp 3	Alb, Mergeltonstein	Hils 2
Sorp 4	Unteralb, Tonstein	Hils 2
Sorp 5	Unteralb, Hilssandstein	Hils 2
Sorp 6	Hauterive, Mergeltonstein	Ort 300
Sorp 7	Cornbrash, unterer Teil	Ort 300
Sorp 8	Cornbrash, oberer Teil	Ort 300
Sorp 9	Liegendton des Cornbrash	Ort 300
Sorp 10	Kimmeridge	Ort 300

Tabelle 2-2: Zuordnung der Konrad I- zu den Konrad II-Proben

Geologische Einheit	Konrad I Koge-Proben	Konrad II Sorp-Proben
Quartär	Quartär, sandig	
Quartär	Quartär, bindig	
Turon	Lamarki Pläner	Sorp 1
Turon	Rotpläner	
Cenoman	Rhotomagensis Pläner	
Cenoman	U/M Cenoman	Sorp 2
Alb / Hauterive		Sorp 3
Alb / Hauterive		Sorp 4
Alb / Hauterive		Sorp 6
Hils		Sorp 5
Kimmeridge	Kimmeridge	Sorp 10
Dogger Bajocium		Sorp 9
Cornbrash	Cornbrash	Sorp 7
Cornbrash		Sorp 8

Tabelle 4.1-1: Physikalische Größen der Ausgangswässer (Okt.85)

Wasser	pH	Eh [mV]	Dichte [g/cm <sup>3</sup> ]	spez.Leitf. [µS/cm]
Quartär	7.49	385	0.998	1370
Söhlde 1	8.12	500	0.998	1040
Söhlde 2	7.60	406	0.998	780
Hils 1	6.52	190	1.103	144000
Hils 2	6.50	190	1.101	163000
Str.670	4.78	311	1.142	175000
Ort 300	5.79	230	1.128	169000

Tabelle 4.1-2: Makro- und Spurenelementbestimmung in Konrad-Wässern mittels Aktivierungs-, ICP- und HPIC-Analyse

	Wasser						
	Söhle 1		Söhle 2		Quartär		
	NAA [mg/l]	HPIC [mg/l]	ICP [mg/l]	HPIC [mg/l]	NAA	ICP [mg/l]	HPIC
Li <sup>+</sup>	-	0.019	-	0.011	-	-	0.03
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	-	0.13	-	<0.025	-	-	<0.025
Na <sup>+</sup>	24.8	25.4	-	18.2	76.9	81.2	71.2
K <sup>+</sup>	-	4.96	-	4.16	-	-	10.0
Rb <sup>+</sup>	0.0023	-	-	-	0.0042	-	-
Cs <sup>+</sup>	-	-	-	-	2.5 x 10 <sup>-5</sup>	-	-
Mg <sup>2+</sup>	-	-	10.9	-	-	14.1	-
Ca <sup>2+</sup>	150.4	-	126	-	264	217	-
Sr <sup>2+</sup>	4.35	-	4.33	-	1.28	1.37	-
Ba <sup>2+</sup>	0.013	-	0.021	-	0.09	0.054	-
B <sup>3+</sup>	-	-	-	-	-	-	-
Si <sup>4+</sup>	-	-	6.10	-	-	3.9	-
Sb <sup>5+</sup>	-	-	-	-	2.9 x 10 <sup>-4</sup>	-	-
Sc <sup>3+</sup>	-	-	-	-	6 x 10 <sup>-6</sup>	-	-
Eu <sup>3+</sup>	-	-	-	-	-	-	-
Zr <sup>4+</sup>	-	-	-	-	-	-	-
Mn <sup>2+</sup>	-	-	<0.001	-	-	0.33	-
Fe <sup>2+/3+</sup>	<0.003	-	<0.006	-	-	0.021	-
Cu <sup>2+</sup>	-	-	-	-	-	-	-
Zn <sup>2+</sup>	0.13	-	-	-	0.006	-	-
F <sup>-</sup>	-	0.48	-	0.53	-	-	1.49
Cl <sup>-</sup>	-	45	-	53.1	-	-	103.2
Br <sup>-</sup>	0.06	0.066	-	0.072	0.23	-	0.14
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	-	3.45	-	10.32	-	-	12.5
SO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	-	143.0	-	164.6	-	-	648.7

Tabelle 4.1-3: Makro- und Spurenelementbestimmung in Konrad-Wässern mittels Aktivierungs-, ICP- und HPIC-Analyse

	Wasser						
	MW2			Hils 1		Hils 2	
	ICP [mg/l]	HPIC	NAA	ICP [mg/l]	HPIC	ICP [mg/l]	HPIC
Li <sup>+</sup>	-	-	-	1.0	0.48	-	<0.04
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	-	-	-	-	31.3	-	19.1
Na <sup>+</sup>	531	-	-	<u>52200</u>	49800	-	44500
K <sup>+</sup>	-	-	-	147	99.2	-	134
Rb <sup>+</sup>	-	-	0.092	-	-	-	-
Cs <sup>+</sup>	-	-	0.002	-	-	-	-
Mg <sup>2+</sup>	17.4	-	-	1340	-	1170	-
Ca <sup>2+</sup>	89	-	4360	4560	-	4160	-
Sr <sup>2+</sup>	<0.001	-	-	464	-	486	-
Ba <sup>2+</sup>	<0.003	-	1.01	1.74	-	1.04	-
B <sup>3+</sup>	-	-	-	21	-	-	-
Si <sup>4+</sup>	0.35	-	-	2.3	-	1.56	-
Sb <sup>5+</sup>	-	-	-	-	-	-	-
Sc <sup>3+</sup>	-	-	2x10 <sup>-5</sup>	-	-	-	-
Eu <sup>3+</sup>	-	-	9x10 <sup>-5</sup>	-	-	-	-
Zr <sup>4+</sup>	-	-	0.06	-	-	-	-
Mn <sup>2+</sup>	2.15	-	-	5.31	-	0.23	-
Fe <sup>2+/3+</sup>	<0.005	-	16.91	18.2	-	3.8	-
Cu <sup>2+</sup>	-	-	0.05	-	-	-	-
Zn <sup>2+</sup>	-	-	0.09	0.08	-	-	-
F <sup>-</sup>	-	2.64	-	-	247	-	230
Cl <sup>-</sup>	-	13200	<u>97300*</u>	-	132000	-	102000
Br <sup>-</sup>	-	0.02	45.3	-	<u>212</u>	-	250
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	-	7.05	-	-	-	-	-
SO <sub>4</sub> <sup>-2</sup>	-	153	375*	-	274	-	323

\* Naßanalytisch

Tabelle 4.1-4: Makro- und Spurenelementbestimmung in Konrad-Wässern mittels Aktivierungs-, ICP- und HPIC-Analyse

	Wasser					
	Sohle 5		Str.670		Ort 300	
	NAA [mg/l]	ICP [mg/l]	ICP [mg/l]	HPIC [mg/l]	ICP [mg/l]	HPIC [mg/l]
Li <sup>+</sup>	-	2.5	-	4.34	-	2.35
NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	-	-	-	44.2	-	51.2
Na <sup>+</sup>	-	65100	-	59000	-	48800
K <sup>+</sup>	-	234	-	217	-	213
Rb <sup>+</sup>	0.261	-	-	-	-	-
Cs <sup>+</sup>	0.014	-	-	-	-	-
Mg <sup>2+</sup>	-	2210	2360	-	1930	-
Ca <sup>2+</sup>	11020	11650	12100	-	9110	-
Sr <sup>2+</sup>	-	325	358	-	486	-
Ba <sup>2+</sup>	-	0.12	0.08	-	0.36	-
B <sup>3+</sup>	-	40	-	-	-	-
Si <sup>4+</sup>	-	2.4	2.6	-	1.6	-
Sb <sup>5+</sup>	3 x 10 <sup>-4</sup>	-	-	-	-	-
Sc <sup>3+</sup>	7 x 10 <sup>-5</sup>	-	-	-	-	-
Eu <sup>3+</sup>	9 x 10 <sup>-5</sup>	-	-	-	-	-
Zr <sup>4+</sup>	-	0.05	-	-	-	-
Mn <sup>2+</sup>	-	5.26	1.0	-	0.61	-
Fe <sup>2+/3+</sup>	7.19	7.4	13.8	-	16.3	-
Cu <sup>2+</sup>	-	0.04	-	-	-	-
Zn <sup>2+</sup>	0.81	0.99	-	-	-	-
F <sup>-</sup>	-	-	-	353	-	331
Cl <sup>-</sup>	134700*	-	-	198000	-	125000
Br <sup>-</sup>	47.8	-	-	1270	-	746
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	-	-	-	-	-	-
SO <sub>4</sub> <sup>-</sup>	750*	-	-	1340	-	522

\*NaBanalytisch



Tabelle 4.1-5: Analysen von konditionierten Konrad-Wässern

Element	Rotpläner		Rhotomagensis		Lamarcki Pläner		
	bidest.	Söhlde	bidest.	Söhlde	bidest.	Söhlde	Söhlde**
	[mg/l]						
Na <sup>+</sup>	13.1	24.9	9.39	26.6	3.40	25.4	24.8
K <sup>+</sup>	4	5	5	6	4	5	4.1*
Mg <sup>2+</sup>	0.37	1.55	1.13	4.42	0.232	9.37	15*
Ca <sup>2+</sup>	49.5	68.1	45.3	59.9	16.6	62.77	150
Sr <sup>2+</sup>	0.082	0.35	0.16	0.77	0.073	3.01	4.35
Ba <sup>2+</sup>	0.013	0.029	0.0045	0.10	0.010	0.109	0.013
Si <sup>4+</sup>	1.93	2.7	1.84	4.27	2.39	5.3	8.1*
Mn <sup>2+</sup>	<0.001	<0.0008	<0.0008	<0.0008	<0.0008	<0.0008	0.004*
Fe <sup>2+/3+</sup>	<0.002	<0.002	<0.002	<0.003	<0.004	<0.003	0.2*

\* nach FUB

\*\* nicht konditioniert

Tabelle 4.4-1: Löslichkeit von  $\text{NpO}_2\text{OH}$  in konditioniertem Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Zeit

Hils-1-Wasser konditioniert mit dem Gestein		Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]			
		2 Wo		15 Wo	
		unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*
Kimmeridge	a	2.83	1.75	9.01	3.97
Kimmeridge	b	1.12	0.50	5.61	2.51
Kimmeridge	c	4.96	1.65	10.0	3.33
Hangendes Erz		2.83	1.15	13.5	4.99
Liegendes Erz	a	2.11	2.60	9.51	7.47
Liegendes Erz	b	2.48	2.02	14.2	9.30
Erzkalke	a	1.12	0.84	5.28	1.35
Erzkalke	b	-	-	37.6	7.42
Fladentonstein	a	0.50	0.50	2.41	1.44
Fladentonstein	b	1.20	0.61	5.60	2.51
Fladentonstein	c	-	-	5.54	2.81
Heersumer Schichten		0.88	0.86	8.89	3.47

(Für c-Proben siehe Text)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.4-2: Löslichkeit von  $\text{NpO}_2\text{OH}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Wässern in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Ausgangs-		Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]							
		pH	Eh[mV]	4/7 Wo		11/16 Wo		46/52 Wo		(pH)	(pH/Eh)
				unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*	filtr.*			
Söhlde 1	Rotpläner	7.68	450	8.47	2.70	(8.03)	11.2	7.34	-	11.9	(8.23/505)
Söhlde 1	Rhotomagensis Pläner	7.46	536	2.06	1.04	(7.95)	-	-	-	5.41	(8.29/468)
Söhlde 1	Lamarcki Pläner	7.46	542	2.15	1.57	(7.98)	3.55	2.05	-	5.52	(8.18/461)
Söhlde 1	U/M Cenoman	7.44	560	2.47	1.57	(7.89)	3.13	2.01	-	9.12	(8.21/468)
Str.670	U/M Cenoman	-	408	-	8.08	-	-	12.3	(7.14)	8.75	(6.99/533)
Str.670	Kimmeridge a	6.05	402	6.62	2.21	(6.51)	17.6	2.83	(6.86)	5.73	(6.93/446)
Str.670	Kimmeridge b	-		0.62	0.42	-	1.73	0.47	-	1.17	-
Str.670	Hangendes Erz	6.05	334	4.13	1.75	-	3.72	1.98	(7.04)	15.0	(7.06/477)
Str.670	Liegendes Erz a	6.05	332	5.79	2.52	-	12.4	2.73	(6.13)	23.6	(7.11/457)
Str.670	Liegendes Erz b	-		1.98	1.46	-	-	-	-	3.97	-
Str.670	Versatzmaterial	-	344	-	22.0	-	-	30.7	(6.36)	30.0	(7.05/447)
Str.670	Erzkalke a	6.05	285	5.90	1.96	(6.62)	13.1	3.08	(7.04)	14.7	(7.00/471)
Str.670	Erzkalke b	-		1.28	0.63	-	1.98	0.62	-	0.78	-
Str.670	Fladentonstein	6.05	398	3.09	2.16	(6.68)	-	-	(7.00)	3.84	(7.06/451)
Str.670	Heersumer Schichten a	6.05	324	4.18	1.59	-	6.40	1.85	(6.98)	7.43	(7.02/451)
Str.670	Heersumer Schichten b	-		4.64	1.05	-	-	-	-	3.90	-
Str.670	Cornbrash	-	458	-	-	-	-	7.77	(7.16)	14.2	(7.11/520)
Quartär	Quartär, sandig	6.97	496	10.4	7.11	-	-	6.03	(8.13)	7.06	(7.97/468)
Quartär	Quartär, bindig	6.97	473	10.3	5.14	-	-	3.84	(8.09)	4.51	(8.07/478)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.4-3: Löslichkeit von  $\text{NpO}_2\text{OH}$  in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Ausgangs-		Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]					
		pH	Eh [mV]	5 Wo		11 Wo		41 Wo	
				filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)
Söhlde 2	Sorp 1	7.65	540	2.81	(8.33/452)	1.34	(7.94/454)	0.68	(7.95/529)
MW 2	Sorp 2	8.30	436	3.16	(8.06/507)	4.06	(8.55/431)	5.29	(8.59/436)
Hils 2	Sorp 3	6.64	472	1.80	(7.07/463)	1.86	(7.35/465)	0.98	(7.36/462)
Hils 2	Sorp 4	6.57	488	2.37	(7.09/453)	2.33	(7.31/457)	2.34	(7.38/445)
Hils 2	Sorp 5	6.40	310	2.96	(7.08/437)	3.04	(7.40/463)	2.54	(7.41/451)
Ort 300	Sorp 6	5.90	362	2.83	(6.67/436)	2.85	(7.03/452)	2.11	(7.09/426)
Ort 300	Sorp 7	6.08	189	0.71	(6.25/457)	2.90	(6.85/468)	2.98	(6.87/455)
Ort 300	Sorp 9	6.10	193	3.59	(6.18/456)	3.66	(6.84/465)	4.34	(6.97/455)
Ort 300	Sorp 10	6.12	213	4.23	(6.57/438)	4.22	(6.94/432)	3.93	(7.11/419)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.4-4: Löslichkeit von  $\text{NpO}_2\text{OH}$  in konditioniertem "anaerobem" Wasser in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Ausgangs-		Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]					
		pH	Eh [mV]	5 Wo		11 Wo		34 Wo	
				filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)
Söhlde 1	U/M Cenoman	7.44	560	0.10	(7.45/ 29)	0.03	(7.47/ 33)	0.01	(7.52/-100)
Str.670	U/M Cenoman	6.05	408	8.14	(6.17/512)	8.13	(6.28/238)	8.63	(6.34/301)
Str.670	Kimmeridge	6.05	402	2.65	(6.33/359)	2.70	(6.28/347)	2.80	(6.40/246)
Str.670	Hangendes Erz	6.05	334	2.50	(6.33/359)	2.57	(6.33/363)	2.45	(6.40/286)
Str.670	Heersumer Schichten	6.05	324	3.25	(6.28/383)	3.21	(6.26/355)	3.46	(6.38/280)
Hils 2	Sorp 5	6.40	310	4.50	(6.52/385)	4.14	(6.49/308)	0.47	(6.68/-151)
Ort 300	Sorp 7	6.08	189	2.80	(6.24/159)	0.21	(6.12/172)	0.41	(5.87/260)
Ort 300	Sorp 9	6.10	193	0.46	(6.34/140)	0.04	(6.27/148)	0.05	(6.23/133)
Ort 300	Sorp 10	6.12	213	1.87	(6.39/148)	0.44	(6.31/162)	0.14	(6.36/133)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.4-5: Löslichkeit von  $\text{PuO}_2$  in den mit Koge-Proben konditionierten Wässern in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Ausgangs-pH des Wassers	Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]							
			3/5 Wo		(pH)	9/14 Wo		45/54 Wo		
			unfiltr.	filtr.*		unfiltr.	filtr.*	filtr.*	(pH/Eh)	
Söhlde 1	Rotpläner	7.68	5.65	1.61	(7.85)	3.50	3.29	-	24.8	(8.22/485)
Söhlde 1	Rhotomagensis Pläner	7.46	10.7	2.63	(7.71)	-	-	-	15.5	(8.25/460)
Söhlde 1	Lamarcki Pläner	7.46	3.91	3.69	(7.74)	16.6	12.6	-	-	-
Söhlde 1	U/M Cenoman	7.44	6.41	4.16	(7.64)	14.9	10.3	-	118.8	(7.45/433)
Str.670	U/M Cenoman	-	4.59	2.87	-	-	-	(6.85)	1.32	(7.05/418)
Str.670	Kimmeridge a	6.05	6.17	0.899	(6.47)	-	-	(6.67)	32.2	(6.43/406)
Str.670	Kimmeridge b	-	2.61	0.172	-	2.90	1.74	-	2.48	-
Str.670	Hangendes Erz	6.05	-	-	-	14.4	8.93	(6.74)	15.0	(6.47/382)
Str.670	Liegendes Erz b	6.05	1.04	0.592	-	-	-	(6.98)	1.49	(6.78/455)
Str.670	Versatzmaterial	-	-	-	-	-	21.2	-	50.5	(6.76/459)
Str.670	Erzkalke a	6.05	10.6	0.822	(6.55)	-	-	(6.51)	62.5	(6.40/493)
Str.670	Erzkalke b	-	3.97	0.226	-	5.93	1.65	-	21.3	-
Str.670	Fladentonstein	6.05	2.53	2.13	(6.63)	-	-	(6.42)	14.0	(5.86/412)
Str.670	Heersumer Schichten a	6.05	1.30	0.030	(6.46)	-	-	(6.93)	42.8	(6.69/530)
Str.670	Heersumer Schichten b	-	2.98	1.40	-	-	-	-	23.2	-
Str.670	Cornbrash	-	-	-	-	-	21.5	(6.50)	50.3	(6.03/560)
Quartär	Quartär, sandig	6.97	-	-	-	7.84	7.67	(7.88)	0.75	(8.17/453)
Quartär	Quartär, bindig	6.97	-	-	-	0.59	0.55	(7.87)	0.02	(8.12/473)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.4-6: Löslichkeit von  $\text{PuO}_2$  in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Ausgangs- pH Eh [mV]		Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]					
				5 Wo		15 Wo		40 Wo	
				filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)
Hils 2	Sorp 5	6.40	310	1.95	(6.48/661)	7.22	(7.28/737)	2.77	(7.28/273)
Ort 300	Sorp 7	6.08	189	0.02	(5.24/576)	0.08	(7.02/586)	1.74	(7.00/733)
Ort 300	Sorp 9	6.10	193	0.44	(5.46/654)	0.49	(6.61/693)	14.8	(6.69/712)
Ort 300	Sorp 10	6.12	213	1.23	(5.62/427)	2.22	(6.83/584)	18.7	(6.69/568)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.4-7: Löslichkeit von  $\text{Am}(\text{OH})_3$  in konditioniertem Wasser. Ausgangskonzentration  $1.5 \times 10^{-5}$  [mol/l]  $^{241}\text{Am}$

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Am-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]			
		20 Wo		52 Wo	
		filtr.*	(pH)	filtr.*	(pH/Eh)
Söhlde 1	Rotpläner	0.22	(8.24)	0.28	(7.77/287)
Söhlde 1	Rhotomagensis Pläner	0.23	(8.37)	0.22	(7.81/343)
Söhlde 1	Lamarcki Pläner	0.24	(8.27)	0.15	(7.86/351)
Söhlde 1	U/M Cenoman	0.20	(8.39)	0.24	(7.91/353)
Str.670	Kimmeridge	2.87	(6.57)	14.8	(4.45/521)
Str.670	Hangendes Erz	0.70	(7.29)	1.72	(6.25/345)
Str.670	Liegendes Erz	0.68	(7.28)	1.35	(6.55/301)
Str.670	Erzkalke	1.99	(6.98)	3.66	(5.98/424)
Str.670	Fladentonstein	1.18	(7.06)	1.11	(6.85/347)
Str.670	Heersumer Schichten	1.15	(7.17)	1.43	(6.66/325)
MW 1	Versatzmaterial	-	-	5.50	(3.32/ -)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.4-8: Löslichkeit von  $\text{NpO}_2$  in nicht konditioniertem Söhlde-1- und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]				
	19 Wo			50 Wo	
	unfiltr.	filtr.*	(pH)	filtr.*	(pH)
Söhlde 1	0.020	0.017	(7.98)	0.370	(8.02)
Str.670	0.273	0.086	(3.66)	26.4	(3.48)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.4-9: Löslichkeit von  $\text{NpO}_2\text{OH}$  in nicht konditioniertem Söhlde-1- und konditioniertem Modellwasser in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]									
	1 Wo		5/7 Wo		24 Wo			54 Wo		
	unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*	(pH)	filtr.*	(pH)	
Söhlde	2.08	0.81	1.75	1.47	0.61	0.47	(7.89)	2.31	(8.13)	
MW 1**	17.1	4.56	12.1	6.88	24.2	18.3	(7.31)	9.30	(7.19)	

\* Filtration über 450 nm

\*\* Mit Versatzmaterial konditioniert



Tabelle 4.4-10: Löslichkeit von  $\text{PuO}_2$  in nicht konditioniertem Wasser in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]									
	1/3 Wo		5/9 Wo		14/22 Wo			27/32 Wo		
	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	(pH)	unf.	filtr.*	(pH)
bidest.	2.22	1.07	2.92	2.92	40.3	32.8	(3.85)	-	-	-
Söhle 1	2.50	0.97	4.60	3.26	4.28	3.99	(8.08)	-	-	-
0.1 M NaCl(a)	9.42	5.02	-	-	28.8	29.1	(3.59)	-	-	-
0.1 M NaCl(b)	13.9	5.59	-	-	13.6	13.3	-	-	-	-
MW 1**	-	-	32.6	32.2	79.8	73.4	(3.65)	-	-	-
Hils 1(a)	0.02	-	0.42	0.38	1.71	0.64	-	1.58	0.80	(7.17)
Hils 1(b)	0.18	0.14	2.48	0.74	-	-	-	1.23	0.73	-
Str.670(a)	0.14	0.13	0.62	0.52	-	-	-	0.93	0.88	(2.72)
Str.670(b)	0.18	0.17	0.68	0.55	-	-	-	0.66	0.65	-

\* Filtration über 450 nm

\*\* mit Versatzmaterial konditioniert

Tabelle 4.4-11: Löslichkeit von  $\text{AmO}_2$  in nicht konditioniertem Wasser in Abhängigkeit von der Zeit

Wasser	Am-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]						
	1 Wo		5/6 Wo		14/32 Wo		
	unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*	(pH)
bidest.	42.4	27.5	135	120	72.5	49.1	(5.89)
Söhle 1	4.45	1.85	7.05	6.59	2.98	2.22	(8.15)
MW 1**	-	475	-	-	88.2	88.9	(6.39)
Hils 1	-	-	0.71	0.55	7.85	0.40	(7.23)

\* Filtration über 450 nm

\*\* mit Versatzmaterial konditioniert

Tabelle 4.5-1: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Quartär-Wässern; Filtration über 450 nm

Quartär-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]			
	Anfang	6 Wo	12 Wo	40 Wo
Quartär, sandig	7.11	6.69	6.70	0.03
Quartär, bindig	5.14	4.91	4.41	0.02

Tabelle 4.5-2: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  in den mit Koge-Proben konditionierten bidest. Wässern

bidest. Wasser konditioniert mit dem Gestein	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]			
	Anfang filtr.*	6 Wo		32 Wo
		unfiltr.	filtr.*	filtr.*
Rotpläner	1.31	-	0.94	1.30
Rhotomagensis Pläner	2.36	1.89	1.84	2.96
Lurücki Pläner	1.78	1.47	1.47	1.78
Cenoman	1.14	0.93	0.93	1.14

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-3: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Söhle-1-Wässern

Söhle-1-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]				
	Anfang filtr.*	3 Wo		32 Wo	
		unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*
Rotpläner	2.68	3.27	3.22	0.02	0.007
Rhotomagensis Pläner	1.04	1.05	1.08	<0.006	<0.006
Lamarcki Pläner	1.57	1.65	1.67	<0.005	<0.005
U/M Cenoman	1.57	0.96	0.92	<0.005	<0.005

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-4: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Hils-1-Wässern

Hils-1-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]							
	Anfang filtr.*	1 Wo filtr.*	5 Wo		15 Wo		36 Wo	
			unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*
Kimmeridge	1.65	1.87	1.56	1.34	1.28	1.30	1.87	1.87
Hangendes Erz	1.15	1.32	0.94	0.50	0.80	0.64	-	0.13
Liegendes Erz	2.02	2.35	2.82	2.76	2.41	2.22	0.65	0.65
Erzkalke	2.20	1.84	0.77	0.51	0.13	0.14	0.06	0.06
Fladentonstein	1.28	1.39	1.02	1.06	0.84	0.86	0.30	0.26
Heersumer Schichten	0.86	0.75	0.73	0.43	0.45	0.32	0.04	0.04

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-5: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Str.670-Wässern

Str.670-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]				
	Anfang filtr.*	3/6 Wo		32 Wo	
		unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*
Kimmeridge	2.21	1.76	1.78	2.28	2.28
Hangendes Erz	1.75	0.92	0.78	1.07	1.07
Liegendes Erz	2.52	1.70	1.80	1.62	1.62
Er 'alke	1.95	1.54	1.56	1.96	1.96
uentonstein	3.95	3.56	3.09	4.02	4.02
Heersumer Schichten	1.59	1.00	1.00	1.00	1.00

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-6: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern; Filtration über 450 nm

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]				
		Anfang	1 Wo	5 Wo	15 Wo	29 Wo
Söhlde 2	Sorp 1	2.71	2.71	2.71	2.71	2.71
MW 2	Sorp 2	3.22	3.22	3.22	3.22	3.22
Hils 2	Sorp 3	1.84	1.84	1.84	1.84	1.84
Hils 2	Sorp 4	2.17	2.17	2.17	2.17	2.17
Hils 2	Sorp 5	2.97	2.97	2.97	2.97	2.97
Ort 300	Sorp 6	2.73	2.73	2.73	2.73	2.73
Ort 300	Sorp 7	2.93	2.93	2.93	2.93	2.93
Ort 300	Sorp 9	3.48	3.48	3.48	3.48	3.48
Ort 300	Sorp 10	4.24	4.24	4.24	4.24	4.24

Tabelle 4.5-7: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{238}\text{Pu}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Quartär-Wässern; Filtration über 450 nm

Quartär-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]			
	Anfang	6 Wo	12 Wo	40 Wo
Quartär, sand	7.67	3.13	1.82	0.02
Quartär, bindig	0.55	-	0.06	0.0005

Tabelle 4.5-8: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{238}\text{Pu}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Söhle-1-Wässern

Söhle-1-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]							
	Anfang filtr.*	3 Wo		18 Wo		32/48 Wo		
		unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	
Rotpläner	1.61	-	-	-	0.004	0.0008	0.0007	
Rhotomagensis Pläner	3.72	3.74	3.72	0.004	0.003	0.003	0.003	
Lamarcki Pläner	5.98	5.94	5.98	0.006	0.006	0.005	0.005	
U/M Cenoman	5.61	5.73	5.61	0.009	0.009	0.009	0.009	

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-9: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{238}\text{Pu}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Hils-1-Wässern

Hils-1-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Pu-Konzentration [ $10^{-9}$ mol/l]								
	Anfang	1 Wo		5 Wo		15 Wo		32/44 Wo	
	filtr.*	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	
Kimmeridge	7.44	7.18	7.15	5.54	6.68	6.67	6.39	6.24	
Hangendes Erz	6.16	6.09	5.87	5.75	1.71	1.70	0.54	0.54	
Liegendes Erz	6.89	6.70	6.39	6.30	6.12	5.42	1.04	1.04	
Erzkalke	21.8	21.8	21.2	13.7	5.38	4.81	2.26	1.01	
Fladentonstein	8.27	8.05	7.79	6.98	2.94	2.95	1.40	1.37	
Heersumer Schichten	6.53	4.21	5.72	3.80	1.77	1.76	0.72	0.72	

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-10: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{238}\text{Pu}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Str.670-Wässern

Str.670-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]							
	Anfang	1/3 Wo		18 Wo		44 Wo		
	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	
U/M Cenoman	2.87	-	-	-	1.22	-	-	
Kimmeridge	1.12	1.11	1.12	-	-	0.70	0.69	
Hangendes Erz	8.93	-	-	-	8.63	-	-	
Liegendes Erz	1.11	0.90	0.95	-	-	0.37	0.36	
Versatzmaterial	13.8	-	-	-	9.62	-	-	
Erzkalke	1.07	1.07	1.07	-	-	0.99	0.99	
Fladentonstein	3.05	3.02	3.05	1.97	1.79	1.51	1.47	
Heersumer Schichten	1.97	1.95	1.97	1.78	1.78	1.61	1.61	
Cornbrash	7.68	-	-	-	1.30	-	-	

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-11: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{238}\text{Pu}$  in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern; Filtration über 450 nm

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]				
		Anfang	1 Wo	5 Wo	12 Wo	29 Wo
Hils 2	Sorp 5	2.36	2.35	2.29	0.67	0.22
Ort 300	Sorp 7	0.29	0.29	0.29	0.29	0.28
Ort 300	Sorp 9	1.13	1.12	1.11	1.08	0.93
Ort 300	Sorp 10	1.64	1.62	1.59	1.48	1.27

Tabelle 4.5-12: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{241}\text{Am}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Quartär-Wässern; Filtration über 450 nm

Quartär-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Am-Konzentration [ $10^{-7}$ mol/l]			
	Anfang	6 Wo	12 Wo	40 Wo
Quartär, sandig	3.66	1.91	1.88	1.50
Quartär, bindig	3.49	1.84	2.30	1.51

Tabelle 4.5-13: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{241}\text{Am}$  in den mit Koge-Proben konditionierten bidest. Wässern

bidest. Wasser konditioniert mit dem Gestein	Am-Konzentration [ $10^{-9}$ mol/l]				
	Anfang filtr.*	3 Wo		32 Wo	
		unf.	filtr.*	unf.	filtr.*
Rotpläner	36.0	5.59	1.83	9.16	4.10
Rhotomagensis Pläner	19.9	5.55	2.91	3.39	1.48
Lamarcki Pläner	36.0	3.27	2.33	3.92	2.89
U/M Cenoman	36.3	2.29	1.05	3.84	2.09

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-14: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{241}\text{Am}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Söhle-1-Wässern

Söhle-1-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Am-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]				
	Anfang filtr.*	3 Wo		31 Wo	
		unf.	filtr.*	unf.	filtr.*
Rotpläner	5.34	4.33	4.19	0.001	0.001
Rhotomagensis Pläner	5.24	4.14	3.74	0.002	0.002
Lamarcki Pläner	6.08	3.27	-	0.01	0.01

\* Filtration über 450 nm



Tabelle 4.5-15: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{241}\text{Am}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Hils-1-Wässern

Hils-1-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Am-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]							
	Anfang	1 Wo	5 Wo		15 Wo		45 Wo	
	filtr.*	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*
Hangendes Erz	3.40	3.30	2.99	1.61	-	0.18	0.005	<0.001
Liegendes Erz	4.14	3.85	3.85	2.92	3.34	2.90	0.001	0.001
Heersumer Schichten	4.14	3.93	3.48	3.28	3.65	3.59	0.36	0.36

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-16: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{241}\text{Am}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Str.670-Wässern

Str.670-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Am-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]				
	Anfang	3/5 Wo		47 Wo	
	filtr.*	unf.	filtr.*	unf.	filtr.*
Kimmeridge	2.35	2.33	2.35	2.22	2.20
Hangendes Erz	5.99	5.69	5.66	5.02	5.02
Liegendes Erz	9.07	8.56	8.70	8.22	8.22
Erzkalke	3.96	3.87	3.88	3.87	3.66
Fladentonstein	8.99	8.52	8.36	8.32	8.18
Heersumer Schichten	2.65	2.05	2.03	<0.001	<0.001

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-17: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{99}\text{Tc}$  in den mit Sorp-Proben konditionierten Wässern

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Tc-Konzentration [ $10^{-4}$ mol/l]							
		Anfang		5 Wo		16 Wo		40 Wo	
		filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)	filtr.*	(pH/Eh)
Hils 2	Sorp 5	3.33	(6.40/310)	3.19	(6.73/438)	3.21	(6.89/436)	3.22	(6.91/455)
Ort 300	Sorp 7	0.98	(6.08/189)	0.92	(5.84/444)	0.92	(6.45/451)	0.93	(6.50/473)

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.5-18: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$  in den mit Koge-Proben konditionierten Söhlde-Wässern mit verschiedenen NaCl-Gehalten; Filtration über 450 nm

NaCl-Gehalt [mol/l]	Söhlde-1-Wasser konditioniert mit dem Gestein	Konzentration			
		$^{237}\text{Np}$ [ $10^{-6}$ mol/l]		$^{238}\text{Pu}$ [ $10^{-8}$ mol/l]	
		Anfang	5 Wo	Anfang	5 Wo
5.4	Rotpläner	6.22	6.22	0.353	0.353
1.0	Rotpläner	6.37	6.37	5.71	1.59
0.1	Rotpläner	5.30	5.10	2.54	0.032
0.01	Rotpläner	5.03	5.03	2.44	0.093
5.4	Rhotomagensis Pläner	3.64	3.22	12.4	3.67
1.0	Rhotomagensis Pläner	3.47	3.09	9.43	9.16
0.1	Rhotomagensis Pläner	2.60	1.84	13.1	7.00
0.01	Rhotomagensis Pläner	2.25	0.95	4.56	0.36
5.4	U/M Cenoman	4.55	2.37	2.99	0.35
1.0	U/M Cenoman	5.33	5.33	3.18	0.36
0.1	U/M Cenoman	3.91	3.91	4.36	0.54
0.01	U/M Cenoman	1.63	0.20	3.43	0.41

Tabelle 4.5-19: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{241}\text{Am}$  in den mit Koge-Proben konditionierten bidest. Wässern mit verschiedenen NaCl-Gehalten; Filtration über 450 nm

NaCl-Gehalt [mol/l]	bidest. Wasser konditioniert mit dem Gestein	Am-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]	
		Anfang	5 Wo
		4.6	Hangendes Erz
1.0	Hangendes Erz	7.33	4.95
0.1	Hangendes Erz	6.71	4.34
0.01	Hangendes Erz	3.33	2.30
4.6	Heersumer Schichten	7.49	4.55
1.0	Heersumer Schichten	6.42	3.52
0.1	Heersumer Schichten	6.46	4.08
0.01	Heersumer Schichten	2.84	1.24

Tabelle 4.5-20: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  in den mit Koge-Proben konditionierten "anaeroben" Str.670-Wässern; Filtration über 450 nm

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]				
		Anfang	1 Wo	4 Wo	12 Wo	27 Wo
Str.670	U/M Cenoman	8.28	8.28	8.28	8.28	8.28
Str.670	Kimmeridge	2.65	2.60	2.60	2.60	2.60
Str.670	Hangendes Erz	2.50	2.47	2.45	2.47	2.50
Str.670	Heersumer Schichten	3.25	3.18	3.18	3.18	3.18

Tabelle 4.5-21: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{237}\text{Np}$  in den mit Sorp-Proben konditionierten "anaeroben" Wässern; Filtration über 450 nm

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]				
		Anfang	1 Wo	4 Wo	12 Wo	27 Wo
Hils 2	Sorp 5	4.63	4.63	4.63	4.63	4.63
Ort 300	Sorp 7	1.82	1.41	0.40	0.36	0.43
Ort 300	Sorp 10	1.50	1.48	0.80	0.32	0.20

Tabelle 4.5-24: Stabilitätsuntersuchungen des  $^{238}\text{Pu}$  in Söhle-1-Wasser; Temperaturabhängigkeit

Temperatur [°C]	Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]				
	Anfang	5 Wo		18 Wo	
		unfiltr.	filtr.*	unfiltr.	filtr.*
8	5.45	1.55	1.08	0.518	0.458
23	3.72	0.053	0.017	0.0037	0.0024
50	5.45	0.238	0.196	0.211	0.211

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 4.6-1: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Quartär-Gesteinen und Wässern in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Quartär-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
		7 Wo	12 Wo	40 Wo
Quartär, sandig	$7.11 \times 10^{-6}$	$3.82 \pm 0.2$	$4.24 \pm 0.3$	$9.3 \pm 0.6$
Quartär, bindig	$5.14 \times 10^{-6}$	$25.4 \pm 2.0$	$23.3 \pm 1.9$	$36.6 \pm 2.6$

Tabelle 4.6-2: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und bidest. Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

bidest. Wasser mit Gestein(Feinf.)	Ausgangs- konzentration  [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		6 Wo	31 Wo
Rotpläner	$1.31 \times 10^{-6}$	$116 \pm 4$	$1270$
Rhotomagensis Pläner	$2.36 \times 10^{-6}$	$330 \pm 39$	$330 \pm 150$
Lamarcki Pläner	$1.78 \times 10^{-6}$	$146 \pm 9$	$334 \pm 40$
U/M Cenoman	$1.14 \times 10^{-6}$	$127 \pm 25$	$169 \pm 56$

Tabelle 4.6-3: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Söhle-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Söhle-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration  [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		3 Wo	33 Wo
Rotpläner	$2.68 \times 10^{-6}$	$159 \pm 11$	$317 \pm 10$
Rhotomagensis Pläner	$1.04 \times 10^{-6}$	$97 \pm 20$	$1200$
Lamarcki Pläner	$1.57 \times 10^{-6}$	$50 \pm 11$	$217 \pm 30$
U/M Cenoman	$1.57 \times 10^{-6}$	$220 \pm 47$	$1300$

Tabelle 4.6-4: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwert aus drei Proben;  $V/m = 4.4$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Hils-1-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]			
		1 Wo	5 Wo	14/18 Wo	41/45 Wo
Kimmeridge	$1.65 \times 10^{-6}$	$18 \pm 1$	$28 \pm 2$	$36 \pm 1$	$136 \pm 28$
Hangendes Erz	$1.15 \times 10^{-6}$	$298 \pm 40$	$256 \pm 57$	-	$115 \pm 43$
Liegendes Erz	$2.02 \times 10^{-6}$	$92 \pm 17$	$105 \pm 7$	$130 \pm 4$	$177 \pm 12$
Erzkalke	$2.20 \times 10^{-6}$	$36 \pm 1$	$57 \pm 3$	$77 \pm 4$	$233 \pm 90$
Fladentonstein	$1.28 \times 10^{-6}$	$16 \pm 1$	$32 \pm 2$	$46 \pm 1$	$137 \pm 20$
Heersumer Schichten	$8.63 \times 10^{-7}$	$49 \pm 2$	$70 \pm 3$	$54 \pm 6$	$68 \pm 4$

Tabelle 4.6-5: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwert aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]		
		1/3 Wo	6/9 Wo	38/52 Wo
U/M Cenoman	$8.07 \times 10^{-6}$	-	$15 \pm 1^*$	$18.4 \pm 1.3$
Kimmeridge	$2.21 \times 10^{-6}$	$6.5 \pm 0.2$	-	$44 \pm 9$
Hangendes Erz	$1.75 \times 10^{-6}$	$109 \pm 3$	$74 \pm 7$	$104 \pm 46$
Liegendes Erz	$2.52 \times 10^{-6}$	$68 \pm 5$	$74 \pm 3$	$186 \pm 20$
Versatzmaterial	$2.21 \times 10^{-5}$	-	$85 \pm 4$	$137 \pm 28$
Erzkalke	$1.95 \times 10^{-6}$	$9.5 \pm 0.3$	-	$66 \pm 24$
Fladentonstein	$3.95 \times 10^{-6}$	$9.6 \pm 0.3$	-	$46 \pm 4$
Heersumer Schichten	$1.59 \times 10^{-6}$	$20 \pm 1$	$25 \pm 2$	$52 \pm 3$
Cornbrash	$7.77 \times 10^{-6}$	-	$7.1 \pm 0.8$	$8.9 \pm 0.9$

\* 14 Wochen

Tabelle 4.6-6: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$  und den Mittelfractionen der Gesteine in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwert aus drei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Wasser	Gestein (Mittelfr.)	Ausgangs- konzentration  [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]			
			1 Wo	5 Wo	14 Wo	29 Wo
Söhlde 2	Sorp 1	$2.71 \times 10^{-6}$	$230 \pm 87$	$470 \pm 40$	$460 \pm 70$	$>500$
MW2	Sorp 2	$3.22 \times 10^{-6}$	$690 \pm 140$	$670 \pm 140$	$470 \pm 130$	$>670$
Hils 2	Sorp 3	$1.84 \times 10^{-6}$	$50.9 \pm 3.0$	$118 \pm 26$	$136 \pm 20$	$117 \pm 26$
Hils 2	Sorp 4	$2.17 \times 10^{-6}$	$21.1 \pm 0.5$	$41.2 \pm 4.2$	$55 \pm 11$	$58 \pm 15$
Hils 2	Sorp 5	$2.97 \times 10^{-6}$	$2.86 \pm 0.30$	$3.08 \pm 0.36$	$2.76 \pm 0.34$	$2.75 \pm 0.38$
Ort 300	Sorp 6	$2.73 \times 10^{-6}$	$12.4 \pm 0.3$	$19.6 \pm 3.4$	$17.4 \pm 1.1$	$25.0 \pm 1.2$
Ort 300	Sorp 7	$2.93 \times 10^{-6}$	$4.86 \pm 0.23$	$11.2 \pm 0.7$	$20.0 \pm 1.7$	$32.5 \pm 4.2$
Ort 300	Sorp 9	$3.48 \times 10^{-6}$	$13.5 \pm 1.3$	$49.7 \pm 1.7$	$112 \pm 8$	$150 \pm 7$
Ort 300	Sorp 10	$4.24 \times 10^{-6}$	$8.4 \pm 0.6$	$22.0 \pm 0.4$	$47.2 \pm 3.9$	$87 \pm 11$



Tabelle 4.6-7: Sorptionsexperimente mit den Quartär-Gesteinen und Wässern und  $^{238}\text{Pu}$  in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Quartär-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]		
		7 Wo	12 Wo	40 Wo
Quartär, sandig	$7.67 \times 10^{-8}$	$6470 \pm 15$	$6800 \pm 640$	$96000 \pm 10000$
Quartär, bindig	$5.46 \times 10^{-9}$	$15350 \pm 1450$	$>12000$	$8400 \pm 3500$

Tabelle 4.6-8: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Söhlde-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Söhlde-1-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
		3 Wo	20/32 Wo
Rotpläner	$1.61 \times 10^{-8}$	$1690 \pm 100$	$30500 \pm 7100$
Rhotomagensis Pläner	$3.72 \times 10^{-8}$	$2470 \pm 70$	$>100000$
Lamarcki Pläner	$5.98 \times 10^{-8}$	$803 \pm 94$	$24800 \pm 1220$
U/M Cenoman	$5.61 \times 10^{-8}$	$8820 \pm 520$	$18950 \pm 6170$

Tabelle 4.6-9: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Modellwasser 1 in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Ausgangskonzentration  $3.72 \times 10^{-8} \text{ mol/l } ^{238}\text{Pu}$ ; Filtration über 450 nm)

Modellwasser 1 mit Gestein(Feinfr.)	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]					
	1 Wo	2 Wo	7 Wo	12 Wo	39 Wo	51 Wo
Rotpläner	12.1	$72.7 \pm 0.4$	905	$4250 \pm 520$	$6350 \pm 350$	11000
Rhotomagensis Pläner	11.5	$64 \pm 14$	753	$5450 \pm 290$	$8910 \pm 900$	18600
Lamarcki Pläner	7.9	$22.9 \pm 1.4$	150	$910 \pm 170$	$1550 \pm 66$	2450
U/M Cenoman	58	$960 \pm 130$	5860	$13090 \pm 3900$	$5640 \pm 520$	10200
Kimmeridge	1260	3450	9670	$52000 \pm 16000$	$48000 \pm 9900$	92200
Hangendes Erz	>96000	-	-	-	-	>96000
Liegendes Erz	>96000	-	-	-	-	>96000
Versatzmaterial	>96000	-	-	-	-	>96000
Erzkalke	13800	$56400 \pm 8060$	>96000	-	-	>96000
Fladentonstein	13800	64500	-	-	-	>96000
Heersumer Schichten	>96000	-	-	-	-	>96000

Tabelle 4.6-10: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 4.4$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Hils-1-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration  [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]			
		1 Wo	5 Wo	15 Wo	41/45 Wo
Kimmeridge	$7.44 \times 10^{-9}$	570 ± 10	1720 ± 40	4600 ± 290	18000 ± 6800
Kimmeridge*	$7.44 \times 10^{-9}$	560 ± 40	1760 ± 60	5180 ± 160	>19000
Hangendes Erz	$6.16 \times 10^{-9}$	7950 ± 930	20700 ± 2700	>20700	21000 ± 2000
Liegendes Erz	$6.89 \times 10^{-9}$	4580 ± 430	11820 ± 480	24140 ± 1700	>26000
Liegendes Erz*	$6.89 \times 10^{-9}$	6280 ± 120	-	20420 ± 3700	9670 ± 460
Erzkalke	$2.18 \times 10^{-8}$	2700 ± 140	11350 ± 680	25340 ± 840	>80000
Fladentonstein	$8.27 \times 10^{-9}$	1020 ± 20	4290 ± 310	10350 ± 310	>30000
Heersumer Schichten	$6.53 \times 10^{-9}$	2690 ± 180	10170 ± 850	11300 ± 1100	14500 ± 5600

\* Proben nicht gewaschen, Staub- und Feinfraktion

Tabelle 4.6-11: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
		1/3 $W_0$	7/14 $W_0$	38/52 $W_0$
U/M Cenoman	$2.87 \times 10^{-8}$	-	$7125 \pm 440$	$11500 \pm 1200$
Kimmeridge	$1.12 \times 10^{-8}$	$1260 \pm 45$	-	$>29000$
Hangendes Erz	$8.95 \times 10^{-8}$	-	$138000 \pm 21500$	$102000 \pm 17000$
Liegendes Erz	$1.11 \times 10^{-8}$	$3840 \pm 260$	$4170 \pm 620$	$18200 \pm 2650$
Versatzmaterial	$1.38 \times 10^{-7}$	-	$140400 \pm 10600$	$>200000$
Erzkalke	$1.07 \times 10^{-8}$	$11170 \pm 810$	-	$>28000$
Fladentonstein	$3.05 \times 10^{-8}$	-	$24840 \pm 1160$	$>80000$
Heersumer Schichten	$1.97 \times 10^{-8}$	-	$26920 \pm 16100$	$>51000$
Cornbrash	$7.70 \times 10^{-8}$	-	$7690 \pm 220$	$11250 \pm 150$

Tabelle 4.6-12: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$  und den Mittelfraktionen der Gesteine in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Wasser	Gestein (Mittelfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]			
			1 $W_0$	5 $W_0$	12 $W_0$	28 $W_0$
Hils 2	Sorp 5	$2.36 \times 10^{-8}$	$5890 \pm 680$	$19800 \pm 3200$	$16800 \pm 4100$	$>55000$
Ort 300	Sorp 7	$2.89 \times 10^{-9}$	$2680 \pm 590$	$>6800$	$>6800$	$>6800$
Ort 300	Sorp 9	$1.13 \times 10^{-8}$	$>22000$	$>26000$	$>26000$	$>26000$
Ort 300	Sorp 10	$1.64 \times 10^{-8}$	$10020 \pm 650$	$20900 \pm 3100$	$>21000$	$>38000$

Tabelle 4.6-13: Sorptionsexperimente mit den Quartär-Gesteinen und Wässern und  $^{241}\text{Am}$  in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Quartär-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
		7 Wo	12 Wo	40 Wo
Quartär, sandig	$3.66 \times 10^{-7}$	$15590 \pm 1130$	$11520 \pm 930$	$11240 \pm 800$
Quartär, bindig	$3.49 \times 10^{-7}$	$52860 \pm 6170$	$31000 \pm 11100$	$48500 \pm 3200$

Tabelle 4.6-14: Sorptionsexperimente mit  $^{241}\text{Am}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und bidest. Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

bidest. Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		6 Wo	31 Wo
Rotpläner	$3.60 \times 10^{-8}$	$1830 \pm 230$	$4690 \pm 720$
Rhotomagensis Pläner	$1.99 \times 10^{-8}$	$1340 \pm 60$	$8040 \pm 1400$
Lamarcki Pläner	$3.60 \times 10^{-8}$	$3210 \pm 20$	$7600 \pm 610$
U/M Cenoman	$3.63 \times 10^{-8}$	$6680 \pm 440$	$>18000$

Tabelle 4.6-15: Sorptionsexperimente mit  $^{241}\text{Am}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Söhle-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Söhle-1-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
		3/12 Wo	23/32 Wo
Rotpläner	$5.34 \times 10^{-8}$	$5920 \pm 270$	$18150 \pm 910$
Rhotomagensis Pläner	$5.24 \times 10^{-8}$	$3840 \pm 170$	$10400 \pm 1800$
Lamarcki Pläner	$6.08 \times 10^{-8}$	$890 \pm 30$	$2070 \pm 60$
U/M Cenoman	$4.20 \times 10^{-8}$	>20000	>20000

Tabelle 4.6-16: Sorptionsexperimente mit  $^{241}\text{Am}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 4.4$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Hils-1-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]		
		1 Wo	5 Wo	41 Wo
Hangendes Erz	$3.40 \times 10^{-8}$	>16000	>16000	>25000
Liegendes Erz	$4.14 \times 10^{-8}$	>20000	>20000	>30000
Liegendes Erz *	$4.14 \times 10^{-8}$	>20000	>20000	>30000
Heersumer Schichten	$4.14 \times 10^{-8}$	$15900 \pm 3300$	>20000	>30000

\* Probe nicht gewaschen, Fein- und Staubfraktion

Tabelle 4.6-17: Sorptionsexperimente mit  $^{241}\text{Am}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
		1/3 Wo	5/14 Wo	32/38 Wo
U/M Cenoman	$4.20 \times 10^{-8}$	-	>21000	-
Kimmeridge	$2.35 \times 10^{-8}$	$500 \pm 13$	-	>12000
Hangendes Erz	$5.99 \times 10^{-8}$	$3610 \pm 270$	$5800 \pm 340$	$26000 \pm 3800$
Liegendes Erz	$9.07 \times 10^{-8}$	$3060 \pm 1100$	$7970 \pm 350$	$39000 \pm 6000$
Erzkalke	$3.96 \times 10^{-8}$	$2260 \pm 300$	-	>20000
Fladentonstein	$8.99 \times 10^{-8}$	-	$447 \pm 4$	$15600 \pm 650$
Heersumer Schichten	$2.65 \times 10^{-8}$	$2790 \pm 450$	$4550 \pm 300$	$9900 \pm 2300$

Tabelle 4.6-18: Sorptionsexperimente mit  $^{99}\text{Tc}$  und den Mittelfraktionen der Gesteine in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwert aus drei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Wasser	Gestein (Mittelfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]			
			1 Wo	6 Wo	14 Wo	30 Wo
Hils 2	Sorp 5	$3.18 \times 10^{-7}$	$0.04 \pm 0.08$	$0.33 \pm 0.10$	$0.22 \pm 0.05$	$0.78 \pm 0.06$
Ort 300	Sorp 7	$8.73 \times 10^{-8}$	$0.34 \pm 0.13$	$0.69 \pm 0.02$	$0.61 \pm 0.05$	$2.58 \pm 0.01$

Tabelle 4.6-19: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Grobfraktionen der Gesteine und Söhle-1-Wasser in Abhängigkeit von der Konzentration (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.0$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Söhle-1-Wasser mit Gestein(Grobfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
		3 Wo	13/20 Wo	41/52 Wo
Rotpläner	$2.69 \times 10^{-6}$	$28.1 \pm 3.3$	$79 \pm 11$	$83 \pm 10$
Rhotomagensis Pläner	$1.75 \times 10^{-6}$	-	$170 \pm 50$	$>360$
Lamarcki Pläner	$1.02 \times 10^{-6}$	-	$143 \pm 70$	$>260$
U/M Cenoman	$1.99 \times 10^{-6}$	-	$260 \pm 90$	$>340$

Tabelle 4.6-20: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Grobfraktionen der Gesteine und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 2.9$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Hils-1-Wasser mit Gestein(Grobfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]			
		1 Wo	5 Wo	15 Wo	39 Wo
Hangendes Erz	$1.15 \times 10^{-6}$	$3.0 \pm 1.0$	$38 \pm 8$	$53 \pm 4$	$88 \pm 8$
Liegendes Erz	$2.02 \times 10^{-6}$	$0.8 \pm 0.6$	$20 \pm 11$	$47 \pm 3$	$88 \pm 6$
Heersumer Schichten	$8.63 \times 10^{-7}$	$3.5 \pm 0.5$	$25 \pm 4$	$33 \pm 3$	$93 \pm 46$



Tabelle 4.6-21: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Grobfraktionen der Gesteine und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.0$ ;  $T = 23 \pm 3 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Grobfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]			
		1 Wo	3/5 Wo	19/24 Wo	41/46 Wo
Kimmeridge	$2.21 \times 10^{-6}$	-	$2.1 \pm 0.4$	$9.5 \pm 0.9$	$14.3 \pm 0.6$
Kimmeridge	$3.83 \times 10^{-6}$	-	-	$8.5 \pm 0.4$	-
Hangendes Erz	$1.75 \times 10^{-6}$	$14.6 \pm 3.0$	$42.0 \pm 1.7$	$111 \pm 27$	$85 \pm 10$
Lienendes Erz	$2.52 \times 10^{-6}$	$18.4 \pm 3.5$	$40.4 \pm 6.5$	$101 \pm 16$	$197 \pm 42$
Frankulke	$1.95 \times 10^{-6}$	-	$1.5 \pm 0.5$	$15.8 \pm 4.9$	$32 \pm 10$
Fladentonstein	$3.95 \times 10^{-6}$	-	$2.7 \pm 0.1$	$28.6 \pm 2.6$	$89 \pm 21$
Heersumer Schichten	$1.59 \times 10^{-6}$	$9.4 \pm 2.1$	$18.6 \pm 1.1$	$43.7 \pm 1.2$	$54 \pm 6$

Tabelle 4.6-22: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Grobfraktion der Gesteine und Söhldel-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.0$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Söhldel-Wasser mit Gestein(Grobfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
		3 Wo	26 Wo	41 Wo
Rotpläner	$1.61 \times 10^{-8}$	$320 \pm 10$	$3560 \pm 1470$	$4490 \pm 90$
Rhotomagensis Pläner	$3.72 \times 10^{-8}$	$340 \pm 175$	$1660 \pm 320$	$2430 \pm 170$
Lamarcki Pläner	$5.98 \times 10^{-8}$	$180 \pm 7$	$1820 \pm 210$	$3300 \pm 190$
U/M Cenoman	$5.61 \times 10^{-8}$	$1330 \pm 260$	$6320 \pm 970$	$7460 \pm 1120$

Tabelle 4.6-23: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Grobfraktionen der Gesteine und Hils-1-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 2.9$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Hils-1-Wasser mit Gestein(Grobfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]			
		1 Wo	5 Wo	15 Wo	39 Wo
Kimmeridge	$7.44 \times 10^{-9}$	$12.7 \pm 4.6$	$330 \pm 60$	$1110 \pm 240$	$2670 \pm 340$
Hangendes Erz	$6.17 \times 10^{-9}$	$18.0 \pm 7.3$	$2420 \pm 80$	$6510 \pm 990$	$12700 \pm 1040$
Liegendes Erz	$6.89 \times 10^{-9}$	$8.6 \pm 2.8$	$1800 \pm 220$	$4470 \pm 740$	$9720 \pm 1710$
Heersumer Schichten	$6.53 \times 10^{-9}$	$100 \pm 40$	$1430 \pm 90$	$4430 \pm 440$	$21150 \pm 2350$

Tabelle 4.6-24: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Grobfraktionen der Gesteine und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.0$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Grobfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]			
		1/3 Wo	5/7 Wo	19/24 Wo	41/45 Wo
Kimmeridge	$1.12 \times 10^{-8}$	$162 \pm 12$	-	$1490 \pm 85$	$4980 \pm 870$
Liegendes Erz	$1.11 \times 10^{-8}$	$780 \pm 50$	$3140 \pm 160$	$11780 \pm 1860$	$18720 \pm 6150$
Erzkalke	$1.07 \times 10^{-8}$	$1800 \pm 530$	-	$19640 \pm 2430$	$19600 \pm 5600$
Fladentonstein	$3.05 \times 10^{-8}$	-	$3730 \pm 950$	$20060 \pm 2880$	$37340 \pm 13400$
Heersumer Schichten	$1.97 \times 10^{-8}$	-	$6220 \pm 420$	$20750 \pm 3040$	$38500 \pm 11800$

Tabelle 4.6-25: Sorptionsexperimente mit  $^{241}\text{Am}$ , den Grobfraktionen der Gesteine und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 2.9$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Grobfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]			
		1 Wo	6 Wo	24 Wo	38/45 Wo
Hangendes Erz	$5.99 \times 10^{-8}$	126 ± 13	600 ± 100	2400 ± 340	4260 ± 500
Liegendes Erz	$9.07 \times 10^{-8}$	150 ± 7	560 ± 30	1850 ± 110	3220 ± 140
Heersumer Schichten	$2.65 \times 10^{-8}$	340 ± 120	1150 ± 140	5530 ± 1270	5120 ± 420

Tabelle 4.6-26: Vergleich der Sorptionskoeffizienten von  $^{237}\text{Np}$  an Fein- und Grobfraktion der Gesteine; Kontaktzeit ca. 30 Wochen; Filtration über 450 nm

Wasser	Gestein	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
		Feinfraktion	Grobfraktion
Söhlde 1	Rotpläner	317 ± 10	79 ± 11
Söhlde 1	Rhotomagensis Pläner	200	170 ± 50
Söhlde 1	Lamarcki Pläner	217 ± 30	143 ± 70
Söhlde 1	U/M Cenoman	300	260 ± 90
Str.670	Kimmeridge	44 ± 9	14.3 ± 0.6
Str.670	Hangendes Erz	104 ± 46	85 ± 10
Str.670	Liegendes Erz	186 ± 20	197 ± 42
Str.670	Erzkalke	66 ± 24	32 ± 10
Str.670	Fladentonstein	46 ± 4	89 ± 21
Str.670	Heersumer Schichten	52 ± 3	54 ± 6
Hils 1	Kimmeridge	136 ± 28	-
Hils 1	Hangendes Erz	115 ± 43	88 ± 8
Hils 1	Liegendes Erz	177 ± 12	88 ± 6
Hils 1	Erzkalke	233 ± 90	-
Hils 1	Fladentonstein	137 ± 20	-
Hils 1	Heersumer Schichten	68 ± 4	93 ± 46

Tabelle 4.6-27: Vergleich der Sorptionskoeffizienten von  $^{238}\text{Pu}$  an Fein- und Grobfraktion der Gesteine, Kontaktzeit: ca. 30 Wochen; Filtration über 450 nm

Wasser	Gestein	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		Feinfraktion	Grobfraktion
Söhlde 1	Rotpläner	30500 ± 7100	4490 ± 90
Söhlde 1	Rhotomagensis Pläner	>100000	2430 ± 170
Söhlde 1	Lamarcki Pläner	24800 ± 1220	3300 ± 190
Söhlde 1	U/M Cenoman	18950 ± 6170	7460 ± 1120
Str.670	Kimmeridge	>29000	4980 ± 870
Str.670	Hangendes Erz	102000 ± 17000	-
Str.670	Liegendes Erz	18200 ± 2650	18700 ± 6200
Str.670	Erzkalke	>28000	19600 ± 2430
Str.670	Fladentonstein	>80000	37300 ± 13400
Str.670	Heersumer Schichten	>51000	38500 ± 11700
Hils 1	Kimmeridge	18000 ± 6800	2670 ± 340
Hils 1	Hangendes Erz	21000 ± 2000	12700 ± 1040
Hils 1	Liegendes Erz	>26000	9720 ± 1700
Hils 1	Erzkalke	>80000	-
Hils 1	Fladentonstein	>30000	-
Hils 1	Heersumer Schichten	14500 ± 5600	21150 ± 2350

Tabelle 4.6-28: Vergleich der Sorptionskoeffizienten von  $^{241}\text{Am}$  an Fein- und Grobfraktion der Gesteine; Kontaktzeit: ca. 30 Wochen; Filtration über 450 nm

Wasser	Gestein	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		Feinfraktion	Grobfraktion
Str.670	Hangendes Erz	26000 ± 3800	4260 ± 500
Str.670	Liegendes Erz	39000 ± 6000	3220 ± 140
Str.670	Heersumer Schichten	9900 ± 2300	5120 ± 420

Tabelle 4.6-29: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Söhlede-1-Wasser mit Variation des V/m-Verhältnisses und in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Np-Konz.  $1.62 \times 10^{-6}/*1.04 \times 10^{-6}$  mol/l f. Rhotomagensis Pläner;  $1.88 \times 10^{-6}/*1.57 \times 10^{-6}$  mol/l f. U/M Cenoman; Mittelwerte aus zwei Proben;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

V/m [ml/g]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
	Rhotomagensis Pläner 14 Wo	U/M Cenoman 14 Wo
14 <sup>^</sup>	2650 ± 140	537 ± 150
	726 ± 89	355 ± 65
7.3	1100 ± 250	242 ± 34
3.2*	280 ± 140	>300

Tabelle 4.6-30: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Str.670-Wasser mit Variation des V/m-Verhältnisses und in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Ausgangskonzentration  $^{237}\text{Np} = 2.52 \times 10^{-6}$  mol/l f. Liegendes Erz;  $3.75 \times 10^{-6}/*2.21 \times 10^{-6}$  mol/l f. Kimmeridge; Mittelwerte aus zwei Proben;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

V [g]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]			
	Kimmeridge 14 Wo	1/3 Wo	Liegendes Erz 5 Wo	37 Wo
140	4.7 ± 2.7	67 ± 9	54 ± 4	120 ± 5
28	7.8 ± 0.4	53 ± 1	41 ± 1	72 ± 5
7.3	14.8 ± 0.9	66 ± 6	58 ± 7	128 ± 9
3.2*	44 ± 9	68 ± 5	74 ± 3	186 ± 20

Tabelle 4.6-31: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Feinfraktion des Gesteins Kimberidge und Str.670-Wasser mit Variation des V/m-Verhältnisses und in Abhängigkeit von der Kontaktzeit; Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 9.62 \times 10^{-9} / 1.12 \times 10^{-8} \text{ mol/l}$  (Mittelwerte aus zwei Proben;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

V/m [ml/g]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
	4 Wo	9 Wo	38 Wo
140	230 ± 70	720 ± 180	23900 ± 2400
70	272 ± 8	1190 ± 90	18770 ± 840
28	695 ± 15	2620 ± 10	20300 ± 400
3.2*	1260 ± 45	-	> 29000

Tabelle 4.6-32: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Feinfraktion des Gesteins Liegendes Erz und Str.670-Wasser mit Variation des V/m-Verhältnisses und in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 1.11 \times 10^{-8} \text{ mol/l}$ ; Mittelwerte aus drei Proben;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

V/m [ml/g]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
	1 Wo	7 Wo	37 Wo
140	12670 ± 3050	23830 ± 2280	48300 ± 8480
28	6830 ± 220	12020 ± 330	31380 ± 520
7.3	3820 ± 10	6920 ± 500	19200 ± 550
3.2*	3840 ± 260	4170 ± 630	18200 ± 2650

**Tabelle 4.6-33:** Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Feinfraktion des Gesteins Cornbrash und Str.670-Wasser mit Variation des V/m-Verhältnisses und in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 2.15 \times 10^{-7}/*7.70 \times 10^{-8}$  mol/l; (Mittelwerte aus zwei Proben;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

V/m [ml/g]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]		
	4 Wo	9 Wo	38 Wo
140	1570 ± 50	3390 ± 120	22430 ± 250
70	2520 ± 50	5150 ± 50	21800 ± 1300
28	3900 ± 200	5840 ± 120	20910 ± 80
3.2*	-	7690 ± 220	18820 ± 670

**Tabelle 4.6-34:** Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Söhle-1-Wasser mit Variation des NaCl-Gehaltes (Mittelwerte aus drei Proben; V/m = 3.2;  $T = 23 \pm 2$  °C; Kontaktzeit 5 Wochen; Filtration über 450 nm)

NaCl-Konz. [mol/l]	Rotpläner		Rhotomagensis Pläner		U/M Cenoman	
	Ausgangs-konzentration [mol/l]	$R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	Ausgangs-konzentration [mol/l]	$R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	Ausgangs-konzentration [mol/l]	$R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]
5.4	$6.23 \times 10^{-6}$	367 ± 62	$3.65 \times 10^{-6}$	158 ± 42	$5.57 \times 10^{-6}$	440 ± 260
1.0	$6.38 \times 10^{-6}$	371 ± 33	$3.48 \times 10^{-6}$	122 ± 22	$5.34 \times 10^{-6}$	120 ± 6
0.1	$5.71 \times 10^{-6}$	259 ± 19	$2.61 \times 10^{-6}$	114 ± 4	$3.92 \times 10^{-6}$	91 ± 8
0.01	$5.04 \times 10^{-6}$	85 ± 8	$2.26 \times 10^{-6}$	66 ± 14	$1.64 \times 10^{-6}$	153 ± 64
0	$2.68 \times 10^{-6}$	159 ± 11	$1.04 \times 10^{-6}$	97 ± 47	$1.57 \times 10^{-6}$	220 ± 47

Tabelle 4.6-35: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Söhle-1-Wasser mit Variation des NaCl-Gehaltes (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Kontaktzeit 5 Wochen; Filtration über 450 nm)

NaCl-Konz. [mol/l]	Rotpläner		Rhotomagensis Pläner		U/M Cenoman	
	Ausgangskonzentration [mol/l]	$R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	Ausgangskonzentration [mol/l]	$R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	Ausgangskonzentration [mol/l]	$R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]
5.4	$3.53 \times 10^{-9}$	$343 \pm 83$ *	$1.24 \times 10^{-7}$	$16970 \pm 1870$	$2.98 \times 10^{-8}$	$6130 \pm 1470$
1.0	$5.71 \times 10^{-8}$	$4980 \pm 560$	$9.15 \times 10^{-8}$	$14760 \pm 5760$	$3.17 \times 10^{-8}$	$7580 \pm 290$
0.1	$2.54 \times 10^{-8}$	$2170 \pm 960$	$1.22 \times 10^{-7}$	$13880 \pm 1740$	$4.36 \times 10^{-8}$	$14660 \pm 1830$
0.01	$2.44 \times 10^{-8}$	$3210 \pm 180$	$4.56 \times 10^{-8}$	$7540 \pm 110$	$4.24 \times 10^{-8}$	$11310 \pm 1940$
0	$1.61 \times 10^{-8}$	$1690 \pm 110$	$3.72 \times 10^{-8}$	$2470 \pm 20$	$5.61 \times 10^{-8}$	$8820 \pm 520$

\* nach 50 Wochen;  $R_s > 9000$  [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]

Tabelle 4.6-36: Sorptionsexperimente mit  $^{241}\text{Am}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und bidest. Wasser mit Variation des NaCl-Gehaltes (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Kontaktzeit 5 Wochen; Filtration über 450 nm)

NaCl-Konzentration [mol/l]	Hangendes Erz		Heersumer Schichten	
	Ausgangskonzentration [mol/l]	$R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	Ausgangskonzentration [mol/l]	$R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]
4.6	$8.45 \times 10^{-8}$	$10140 \pm 4970$	$7.49 \times 10^{-8}$	$11150 \pm 2580$
1.0	$7.33 \times 10^{-8}$	$9120 \pm 1180$	$6.42 \times 10^{-8}$	$10580 \pm 1530$
0.1	$6.71 \times 10^{-8}$	$14420 \pm 1780$	$6.46 \times 10^{-8}$	$6600 \pm 850$
0.01	$3.33 \times 10^{-8}$	$8540 \pm 3510$	$2.84 \times 10^{-8}$	$2070 \pm 70$



Tabelle 4.6-37: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$  und  $^{238}\text{Pu}$ , der Feinfraktion des Gesteins Rotpläner und Söhle-1-Wasser mit Variation des Carbonat-Gehaltes (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $^{237}\text{Np}$ -Konz.  $7.32 \times 10^{-6} \text{ mol/l}$ ;  $^{238}\text{Pu}$ -Konz.  $3.29 \times 10^{-6} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Carbonat- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
	$^{237}\text{Np}$	$^{238}\text{Pu}$	
	9 Wo	9 Wo	30 Wo
$10^{-1}$	$1260 \pm 310$	$8070 \pm 310$	$8540 \pm 230$
$10^{-2}$	$605 \pm 180$	$18340 \pm 840$	$14120 \pm 920$
$10^{-3}$	$287 \pm 54$	$14580 \pm 2500$	$15670 \pm 1250$

Tabelle 4.6-38: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Söhle-1-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen ( $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $^1$ ) Ausgangskonzentration  $^{237}\text{Np} = 1.07 \times 10^{-6} \text{ mol/l}$ ;  $^2$ ) Ausgangskonzentration  $^{237}\text{Np} = 3.57 \times 10^{-6} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Konzentration des Komplexbildners [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]			
	Citrat <sup>1</sup>	Lamarcki Pläner Laurylsulfat <sup>1</sup>	EDTA <sup>1</sup>	Rotpläner Maranil <sup>2</sup>
	11 Wo	11 Wo	11 Wo	6 Wo
$10^{-3}$	60	108	36	214
$10^{-4}$	85	220	40	270
$10^{-5}$	85	108	30	260
$10^{-6}$	64	71	68	270

Tabelle 4.6-39: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , der Feinfraktion Kimmeridge und Str.670-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen ( $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $^1$ ) Ausgangskonzentration  $^{237}\text{Np} = 3.84 \times 10^{-6} \text{ mol/l}$ ;  $^2$ ) Ausgangskonzentration  $^{237}\text{Np} = 1.17 \times 10^{-5} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Konzentration des Komplexbildners [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]				
	Citrat <sup>1</sup>		Laurylsulfat <sup>1</sup>	EDTA <sup>1</sup>	MaraniI <sup>2</sup>
	10 Wo	10 Wo	10 Wo	6 Wo	
$10^{-3}$	68	12.6	96	13.2	
$10^{-4}$	80	10.6	81	14.4	
$10^{-5}$	79	11.0	81	18.5	
$10^{-6}$	66	8.4	75	14.8	

Tabelle 4.6-40: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Söhle-1-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen ( $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $^1$ ) Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 1.26 \times 10^{-7} \text{ mol/l}$ ;  $^2$ ) Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 1.67 \times 10^{-8} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Konzentration des Komplex- bildners [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]					
	Citrat <sup>1</sup>		Lamarcki Pläner Laurylsulfat <sup>1</sup>	EDTA <sup>1</sup>		Rotpläner MaraniI <sup>2</sup>
	11 Wo	31 Wo	11 Wo	11 Wo	31 Wo	6 Wo
$10^{-3}$	22700	42900	4260	1160	2350	2480
$10^{-4}$	13500	23900	8360	4410	8960	9140
$10^{-5}$	14400	22000	9460	7770	16500	7890
$10^{-6}$	12000	21100	8470	10840	18000	5490

Tabelle 4.6-41: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Feinfraktion Kimmeridge und Str.670-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildner-konzentrationen ( $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ;  $^1$ ) Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 1.74 \times 10^{-8} \text{ mol/l}$ ;  $^2$ ) Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 9.05 \times 10^{-9} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Konzentration des Komplex bildners [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]						
	Citrat <sup>1</sup>		Laurylsulfat <sup>1</sup>	EDTA <sup>1</sup>			Marani <sup>2</sup>
	10 Wo	31 Wo	10 Wo	10 Wo	31 Wo	50 Wo	6 Wo
$10^{-3}$	3080	8760	4950	458	810	2400	3290
$10^{-4}$	5940	11900	3590	2120	6490	22600	3220
$10^{-5}$	6690	13300	5950	3870	7650	27000	3670
$10^{-6}$	4880	9920	3620	5680	10800	27000	3620

Tabelle 4.6-42: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Mittelfraktion des Gesteins Sorp 5 und Hils-2-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen ( $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 2.33 \times 10^{-8} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Konzentration des Komplex- bildners [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]										
	Citrat				EDTA				Maranil		
	1 Wo	5 Wo	12 Wo	29 Wo	1 Wo	5 Wo	12 Wo	29 Wo	1 Wo	5 Wo	12 Wo
$10^{-2}$	6.4	6.4	3.7	4.0	138	122	36.5	30.5	5630	19960	22900
$10^{-3}$	26.5	43.2	1920	16600	258	201	148	243	4200	13100	12100
$10^{-4}$	3160	7130	15700	35400	578	734	692	920	5600	18000	9980
$10^{-5}$	4090	11700	18300	>55000	3470	8190	12200	29000	3670	10900	15700
$10^{-6}$	4800	13700	18300	>55000	5010	9220	15700	>55000	5200	12100	18600

Tabelle 4.6-43: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Mittelfraktion des Gesteins Sorp 7 und Ort-300-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen ( $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 2.89 \times 10^{-9} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Konzentration des Komplex- bildners [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]										
	Citrat				EDTA				Maranil		
	1 Wo	4 Wo	12 Wo	28 Wo	1 Wo	4 Wo	12 Wo	28 Wo	1 Wo	4 Wo	12 Wo
$10^{-2}$	7.5	8.0	7.8	7.5	56.7	85.5	104	170	>6800	>6800	>6800
$10^{-3}$	24.4	639	>6800	>6800	293	439	740	2120	>6800	>6800	>6800
$10^{-4}$	2390	4550	>6800	>6800	1260	4710	5900	4200	>6800	>6800	>6800
$10^{-5}$	6210	>6800	>6800	>6800	5460	>6800	>6800	>6800	4900	>6800	>6800
$10^{-6}$	6500	>6800	>6800	>6800	>6800	>6800	>6800	>6800	>6800	>6800	>6800

Tabelle 4.6-44: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Mittelfraktion des Gesteins Sorp 9 und Ort-300-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen ( $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 1.10 \times 10^{-8} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Konzentration des Komplex- bildners [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]										
	Citrat				EDTA				Maranil		
	1 Wo	5 Wo	12 Wo	29 Wo	1 Wo	5 Wo	12 Wo	29 Wo	1 Wo	5 Wo	12 Wo
$10^{-2}$	7.2	10.2	16.2	>26000	84	211	205	570	16600	>26000	>26000
$10^{-3}$	69.5	25800	>26000	>26000	308	730	1840	7100	11200	>26000	>26000
$10^{-4}$	11200	>26000	>26000	>26000	1310	4480	8600	>26000	17800	>26000	>26000
$10^{-5}$	23400	>26000	>26000	>26000	12600	>26000	>26000	>26000	22400	>26000	>26000
$10^{-6}$	17800	>26000	>26000	>26000	>26000	>26000	>26000	>26000	>26000	>26000	>26000

Tabelle 4.6-45: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Mittelfraktion des Gesteins Sorp 10 und Ort-300-Wasser für verschiedene Komplexbildner und Komplexbildnerkonzentrationen ( $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Ausgangskonzentration  $^{238}\text{Pu} = 1.49 \times 10^{-8} \text{ mol/l}$ ; Filtration über 450 nm)

Konzentration des Komplex- bildners [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]										
	Citrat				EDTA				Maranil		
	1 Wo	5 Wo	12 Wo	29 Wo	1 Wo	5 Wo	12 Wo	29 Wo	1 Wo	5 Wo	12 Wo
$10^{-2}$	3.5	5.4	7.6	24.7	186	435	348	314	2490	14300	18500
$10^{-3}$	6.5	2570	17100	9340	434	676	1340	5850	5280	14900	16300
$10^{-4}$	1090	10600	17600	>35000	950	3730	10030	>35000	4180	15900	19500
$10^{-5}$	5010	12800	21300	29500	5480	13000	16300	>35000	5440	21300	12800
$10^{-6}$	5400	16000	21300	>35000	5870	15300	11300	>35000	5440	20100	19500

Tabelle 4.6-46: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , der Feinfraktion von U/M Cenoman und Söhle-1-Wasser mit Variation des pH-Wertes der Ausgangslösung in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Ausgangskonzentration  $1.86 \times 10^{-6}$  mol/l; Ursprünglicher pH-Wert 7.44; Mittelwerte aus drei Proben; V/m = 3.2; T =  $23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

eingest. pH-Wert	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
	9 Wo	25 Wo	(pH)
3.37	$130 \pm 22$	$270 \pm 70$	(7.55)
6.09	$101 \pm 17$	>350	(7.59)
8.25	$153 \pm 11$	>350	(7.64)

Tabelle 4.6-47: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , der Feinfraktion Erzkalke und Str.670-Wasser mit Variation des pH-Wertes der Ausgangslösung in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Ausgangskonzentration  $3.0 \times 10^{-6}$  mol/l; Ursprünglicher pH-Wert 6.05; Mittelwerte aus drei Proben; V/m = 3.2; T =  $23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

eingest. pH-Wert	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
	9 Wo	25 Wo	(pH)
3.3	$24.3 \pm 1.2$	$57.8 \pm 6.9$	(5.94)
5.32	$24.0 \pm 1.0$	$56.4 \pm 2.0$	(5.94)
8.02	$27.9 \pm 1.4$	$62.3 \pm 1.8$	(5.95)



Tabelle 4.6-48: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Feinfraktion von U/M Cenoman und Söhle-1-Wasser mit Variation des pH-Wertes der Ausgangslösung in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Ausgangskonzentration  $1.0 \times 10^{-7}$  mol/l; Ursprünglicher pH-Wert 7.44; Mittelwerte aus drei Proben; V/m = 3.2; T =  $23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

eingest. pH-Wert	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
	9 Wo	25 Wo	(pH)
3.86	31150 ± 130	66100 ± 3300	(7.74)
6.33	16320 ± 290	38300 ± 4700	(7.59)
8.19	16360 ± 2030	40330 ± 1730	(7.75)

Tabelle 4.6-49: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Feinfraktion Erzkalke und Str.670-Wasser mit Variation des pH-Wertes der Ausgangslösung in Abhängigkeit von der Kontaktzeit (Ausgangskonzentration  $1.62 \times 10^{-8}$  mol/l; Ursprünglicher pH-Wert: 6.05; Mittelwerte aus drei Proben V/m = 3.2; T =  $23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

eingest. pH-Wert	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
	9 Wo	25 Wo	(pH)
3.19	24200 ± 3860	>42000	(5.80)
5.89	27400 ± 2600	33400 ± 5140	(5.98)
8.43	21860 ± 1270	38940 ± 3400	(5.90)

Tabelle 4.6-50: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$  und den Grobfraktionen der Gesteine in Abhängigkeit von der Kontaktzeit unter anaeroben Bedingungen (Mittelwert aus drei Proben;  $V/m = 3,1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Wasser	Gestein (Grobfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Eh [mV]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]				
				1 Wo	4 Wo	(Eh)	12 Wo	27 Wo
Str.670	U/M Cenoman	$8.28 \times 10^{-6}$	512	$3.3 \pm 0.2$	$7.1 \pm 0.4$	-	$11.5 \pm 0.5$	$13.2 \pm 0.9$
Str.670	Kimmeridge	$2.65 \times 10^{-6}$	385	$2.8 \pm 0.7$	$6.1 \pm 0.3$	(297)	$15.8 \pm 1.6$	$21.8 \pm 2.3$
Str.670	Hangendes Erz	$2.50 \times 10^{-6}$	359	$24.3 \pm 2.0$	$44.9 \pm 6.6$	(290)	$79.4 \pm 2.3$	$105 \pm 21$
Str.670	Heersumer Schichten	$3.25 \times 10^{-6}$	383	$7.5 \pm 1.4$	$14.7 \pm 0.2$	(300)	$27.0 \pm 2.3$	$34.1 \pm 1.9$

Tabelle 4.6-51: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$  und den Mittelfractionen der Gesteine in Abhängigkeit von der Kontaktzeit unter anaeroben Bedingungen (Mittelwert aus drei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Wasser	Gestein (Mittelfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Eh [mV]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]				
				1 Wo	4 Wo	(Eh)	12 Wo	27 Wo
Hils 2	Sorp 5	$4.63 \times 10^{-6}$	385	$1.93 \pm 0.54$	$3.80 \pm 0.81$	(259)	$7.73 \pm 0.38$	$8.34 \pm 0.66$
Ort 300	Sorp 7	$1.82 \times 10^{-6}$	159	$11.4 \pm 0.8$	$24.3 \pm 3.9$	(272)	$51.2 \pm 13.0$	$28.8 \pm 3.2$
Ort 300	Sorp 10	$1.50 \times 10^{-6}$	148	$5.8 \pm 2.0$	$13.4 \pm 1.8$	(257)	$25.0 \pm 4.0$	$29.8 \pm 1.0$

Tabelle 4.6-52: Sorptionsexperimente mit  $^{99}\text{Tc}$  und den Mittelfractionen der Gesteine in Abhängigkeit von der Kontaktzeit unter anaeroben Bedingungen (Mittelwert aus drei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Wasser	Gestein (Mittelfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Eh [mV]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]				
				1 Wo	4 Wo	(Eh)	12 Wo	27 Wo
Hils 2	Sorp 5	$4.76 \times 10^{-6}$	368	$0.16 \pm 0.05$	$0.19 \pm 0.02$	(338)	$0.55 \pm 0.08$	$0.35 \pm 0.07$
Ort 300	Sorp 7	$5.51 \times 10^{-6}$	303	$0.21 \pm 0.02$	$0.59 \pm 0.09$	(376)	$1.07 \pm 0.07$	$1.88 \pm 0.12$

Tabelle 4.6-53: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , der Grobfraktion Rhotomagensis Pläner und Söhlede-1-Wasser mit Variation der Temperatur in Abhängigkeit von der Kontaktzeit; ( $V/m = 3.0$ ; Mittelwerte aus drei Proben; Filtration über 450 nm) Ausgangskonzentration:  $1.63 \times 10^{-6}$  mol/l (für 8 und 50 °C) und  $1.73 \times 10^{-6}$  mol/l (für 23 °C)

Temperatur [°C]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
	5 Wo	18 Wo
8	40.8 ± 4.3	143 ± 30
23	-	169 ± 54
50	49.5 ± 11	166 ± 38

Tabelle 4.6-54: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Grobfraktion Rhotomagensis Pläner und Söhlede-1-Wasser mit Variation der Temperatur in Abhängigkeit von der Kontaktzeit ( $V/m = 3.0$ ; Mittelwerte aus drei Proben; Filtration über 450 nm) Ausgangskonzentration:  $5.45 \times 10^{-8}$  mol/l (für 8 und 50 °C) und  $3.72 \times 10^{-8}$  mol/l (für 23 °C)

Temperatur [°C]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
	5 Wo	18 Wo
8	34.7 ± 2.7	94 ± 22 *
23	342 ± 175	1660 ± 320
50	97 ± 23	1120 ± 80

\* nach 50 Wochen;  $R_s = 1080 \pm 40$  [cm<sup>3</sup>/g]

Tabelle 4.6-55: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Grobfraktion Lamarcki Pläner und Söhle-1-Wasser mit Variation der Temperatur in Abhängigkeit von der Kontaktzeit ( $V/m = 3.0$ ; Mittelwerte aus drei Proben; Filtration über 450 nm) Ausgangskonzentration:  $2.66 \times 10^{-9}$  mol/l

Temperatur [°C]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
	5 Wo	10 Wo
8	$32.8 \pm 3.6$	$96 \pm 24$
23	$163 \pm 16$	$274 \pm 40$
50	$239 \pm 38$	$428 \pm 78$

Tabelle 4.6-56: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Grobfraktion von Kimmeridge und Str.670-Wasser mit Variation der Temperatur in Abhängigkeit von der Kontaktzeit ( $V/m = 3.0$ ; Mittelwerte aus drei Proben; Filtration über 450 nm) Ausgangskonzentration:  $6.06 \times 10^{-8}$  mol/l

Temperatur [°C]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
	5 Wo	10 Wo
8	$328 \pm 58$	$920 \pm 170$
23	$629 \pm 140$	$1410 \pm 400$
50	$7060 \pm 350$	$36180 \pm 1540$

Tabelle 4.6-57: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , der Grobfraktion Heersumer Schichten und Str.670-Wasser mit Variation der Temperatur in Abhängigkeit von der Kontaktzeit ( $V/m = 3.0$ ; Mittelwerte aus drei Proben; Filtration über 450 nm) Ausgangskonzentration:  $5.85 \times 10^{-8}$  mol/l

Temperatur [°C]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
	5 Wo	10 Wo
8	1639 ± 80	2680 ± 120
23	4680 ± 100	6610 ± 340
50	33900 ± 2500	18560 ± 450

Tabelle 4.6-58: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen der Gesteine und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus zwei Proben;  $V/m = 20$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		1 Wo	4 Wo
U/M Cenoman	$0.23 \times 10^{-6}$	21.43 ± 5.59	14.61 ± 4.6
U/M Cenoman	$0.72 \times 10^{-6}$	14.24 ± 1.43	16.67 ± 0.25
U/M Cenoman	$1.22 \times 10^{-6}$	13.79 ± 0.66	14.35 ± 0.03
U/M Cenoman	$7.34 \times 10^{-6}$	9.12 ± 0.23	11.15 ± 0.09

Tabelle 4.6-59: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen des Gesteins Kimmeridge und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus zwei Proben;  $V/m = 20$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
		1 Wo	4 Wo
Kimmeridge	$0.29 \times 10^{-6}$	$10.12 \pm 1.35$	$6.12 \pm 1.22$
Kimmeridge	$0.81 \times 10^{-6}$	$8.9 \pm 0.1$	$10.23 \pm 0.46$
Kimmeridge	$1.59 \times 10^{-6}$	$12.36 \pm 0.15$	$12.54 \pm 0.63$
Kimmeridge	$8.07 \times 10^{-6}$	$5.6 \pm 0.1$	$6.02 \pm 0.2$

Tabelle 4.6-60: Sorptionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$ , den Feinfraktionen des Gesteins Kimmeridge und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus zwei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
		1 Wo	4 Wo
Kimmeridge	$0.29 \times 10^{-6}$	$6.43 \pm 0.37$	$5.25 \pm 0.29$
Kimmeridge	$0.81 \times 10^{-6}$	$8.33 \pm 0.58$	$7.43 \pm 0.75$
Kimmeridge	$1.59 \times 10^{-6}$	$8.58 \pm 0.5$	$10.75 \pm 0.6$
Kimmeridge	$8.07 \times 10^{-6}$	$6.18 \pm 0.06$	$7.50 \pm 0.3$

Tabelle 4.6-61: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen des Gesteins Lamarcki Pläner und Söhlde-1-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus zwei Proben;  $V/m = 20$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Söhlde-1-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
		1 Wo	4 Wo
Lamarcki Pläner	$8.11 \times 10^{-11}$	$1060 \pm 120$	> 1400
Lamarcki Pläner	$6.94 \times 10^{-10}$	$810 \pm 20$	$2600 \pm 100$
Lamarcki Pläner	$5.04 \times 10^{-9}$	$540 \pm 10$	$1330 \pm 10$

Tabelle 4.6-62: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen des Gesteins Lamarcki Pläner und Söhlde-1-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus zwei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Söhlde-1-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]	
		1 Wo	5 Wo
Lamarcki Pläner	$8.11 \times 10^{-11}$	>190	*
Lamarcki Pläner	$6.94 \times 10^{-10}$	$466 \pm 20$	> 1600
Lamarcki Pläner	$5.04 \times 10^{-9}$	$270 \pm 5$	$840 \pm 10$

\* Nuklidkonzentration der wässrigen Phase unter der Nachweisgrenze



Tabelle 4.6-63: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Feinfraktionen des Gesteins Kimmeridge und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus zwei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		1 Wo	5 Wo
Gestein(Feinfr.)			
Kimmeridge	$2.08 \times 10^{-10}$	*	*
Kimmeridge	$2.10 \times 10^{-9}$	$1650 \pm 30$	*
Kimmeridge	$1.99 \times 10^{-8}$	$1610 \pm 60$	$10500 \pm 800$
Kimmeridge	$2.22 \times 10^{-7}$	$1740 \pm 40$	$9090 \pm 160$

\* Nuklidkonzentration der wässrigen Phase unter der Nachweisgrenze

Tabelle 4.6-64: Sorptionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ , den Mittelfraktionen der Gesteine und Hils-2- bzw. Ort-300-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Wasser	Gestein (Mittelfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]		
			1 Wo	5 Wo	12 Wo
Hils 2	Sorp 5	$2.76 \times 10^{-10}$	*	*	*
Hils 2	Sorp 5	$2.35 \times 10^{-9}$	*	*	*
Hils 2	Sorp 5	$2.36 \times 10^{-8}$	$5890 \pm 68$	$19800 \pm 3200$	$16800 \pm 4100$
Ort 300	Sorp 9	$1.24 \times 10^{-10}$	*	*	*
Ort 300	Sorp 9	$1.10 \times 10^{-9}$	*	*	*
Ort 300	Sorp 9	$1.13 \times 10^{-8}$	$>22000$	$>26000$	$>26000$
Ort 300	Sorp 10	$1.77 \times 10^{-10}$	*	*	*
Ort 300	Sorp 10	$1.57 \times 10^{-9}$	*	*	*
Ort 300	Sorp 10	$1.64 \times 10^{-8}$	$10020 \pm 650$	$20900 \pm 3100$	$>21000$

\* Nuklidkonzentration der wässrigen Phase unter der Nachweisgrenze

Tabelle 4.6-65: Sorptionsexperimente mit  $^{241}\text{Am}$ , den Feinfraktionen des Gesteins Lamarcki Pläner und Söhle-1-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Söhle-1-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		1 Wo	9 Wo
Lamarcki Pläner	$1.95 \times 10^{-9}$	*	*
Lamarcki Pläner	$1.92 \times 10^{-8}$	*	*
Lamarcki Pläner	$2.09 \times 10^{-7}$	$30500 \pm 6400$	$46700 \pm 2100$

\* Nuklidkonzentration der wässrigen Phase unter der Nachweisgrenze

Tabelle 4.6-66: Sorptionsexperimente mit  $^{241}\text{Am}$ , den Feinfraktionen des Gesteins Kimmeridge und Str.670-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus zwei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ; Filtration über 450 nm)

Str.670-Wasser mit Gestein(Feinfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	
		1 Wo	9 Wo
Kimmeridge	$3.19 \times 10^{-9}$	>1000	*
Kimmeridge	$3.33 \times 10^{-8}$	$1240 \pm 40$	$7590 \pm 750$
Kimmeridge	$3.16 \times 10^{-7}$	$1160 \pm 30$	$5520 \pm 70$
Kimmeridge	$3.45 \times 10^{-6}$	$1110 \pm 20$	$4990 \pm 390$

\* Nuklidkonzentration der wässrigen Phase unter der Nachweisgrenze

Tabelle 4.6-67: Sorptionsexperimente mit  $^{99}\text{Tc}$ , der Mittelfraktion des Gesteins Sorp 5 und Hils-2-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Hils-2-Wasser mit Gestein (Mittelfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]		
		1 Wo	6 Wo	14 Wo
Sorp 5	$3.18 \times 10^{-7}$	$0.04 \pm 0.08$	$0.33 \pm 0.10$	$0.22 \pm 0.05$
Sorp 5	$4.35 \times 10^{-6}$	$0.22 \pm 0.10$	$0.23 \pm 0.09$	$0.36 \pm 0.05$
Sorp 5	$3.12 \times 10^{-5}$	$0.08 \pm 0.05$	$0.12 \pm 0.03$	$0.23 \pm 0.04$
Sorp 5	$3.33 \times 10^{-4}$	$0.05 \pm 0.02$	$0.10 \pm 0.03$	$0.22 \pm 0.02$

Tabelle 4.6-68: Sorptionsexperimente mit  $^{99}\text{Tc}$ , der Mittelfraktion des Gesteins Sorp 7 und Ort-300-Wasser in Abhängigkeit von der Radionuklidkonzentration und der Kontaktzeit (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.2$ ;  $T = 23 \pm 2$  °C; Filtration über 450 nm)

Ort-300-Wasser mit Gestein (Mittelfr.)	Ausgangs- konzentration [mol/l]	Sorptionkoeffizient $R_s$ [cm <sup>3</sup> /g]		
		1 Wo	6 Wo	14 Wo
Sorp 7	$8.73 \times 10^{-8}$	$0.34 \pm 0.13$	$0.69 \pm 0.02$	$0.61 \pm 0.05$
Sorp 7	$1.10 \times 10^{-6}$	$0.52 \pm 0.03$	$0.69 \pm 0.03$	$1.04 \pm 0.13$
Sorp 7	$8.99 \times 10^{-6}$	$0.44 \pm 0.07$	$0.55 \pm 0.04$	$0.84 \pm 0.04$
Sorp 7	$9.80 \times 10^{-5}$	$0.33 \pm 0.01$	$0.42 \pm 0.06$	$0.59 \pm 0.06$

Tabelle 4.6-69: Kolloiduntersuchungen an  $^{237}\text{Np}$  im Eluat der Säulen nach 5 Wochen Laufzeit. Konzentration in Abhängigkeit von der Filterporengröße

Wasser	Säulenfüllung Gestein (Feinfr.)	Np-Konzentration [ $10^{-6}$ mol/l]			
		Filterporengröße [nm]			
		unf.	450	30	2
Str.670	Kimmeridge	0.70	0.67	0.70	0.70
Str.670	Hangendes Erz	0.11	0.13	0.13	0.16
Str.670	Liegendes Erz	0.33	0.32	0.35	0.35
Str.670	Erzkalke	0.23	0.23	0.24	0.22
Str.670	Fladentonstein	0.96	0.93	0.94	0.98
Str.670	Heersumer Schichten	0.84	0.81	0.84	0.82
Str.670	Cornbrash	1.98	1.98	2.02	2.02

Tabelle 4.6-70: Kolloiduntersuchungen an  $^{238}\text{Pu}$  in Quartär-, Söhlde1- und Str.670-Wasser. Nuklidkonzentration in Abhängigkeit von der Filterporengröße; Wässer mit Überschuß an  $\text{PuO}_2$

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Äquili- brierungs- zeit Wochen	Pu-Konzentration [ $10^{-8}$ mol/l]			
			Filterporengröße [nm]			
			unf.	450	30	2
Söhlde 1	Rotpläner	32	0.53	0.53	0.51	0.48
Söhlde 1	U/M Cenoman	32	0.76	0.76	0.76	0.72
Str.670	U/M Cenoman	40	1.34	1.31	1.27	1.24
Str.670	Kimmeridge	54	2.54	2.48	2.48	2.42
Str.670	Hangendes Erz	52	16.8	16.4	16.4	16.4
Quartär	Quartär, sandig	32	7.93	6.90	6.66	6.33

Tabelle 4.6-71: Kolloiduntersuchungen an  $^{238}\text{Pu}$  und  $^{241}\text{Am}$  in Quartär-, Söhlde-1- und Str.670-Wasser. Sorptionskoeffizienten in Abhängigkeit von der Filterporengröße (Mittelwerte aus drei Proben;  $V/m = 3.1$ ;  $T = 23 \pm 2 \text{ }^\circ\text{C}$ ) 1) Versuchstemperatur =  $8^\circ\text{C}$ ; 2) Versuchstemperatur =  $50^\circ\text{C}$ ; 3)  $V/m = 35$ ; 4)  $V/m = 140$

Wasser	Gestein (Fraktion Fein, Grob)	Nuklid	Sorptionskoeffizient $R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]			
			Filterporengröße [nm]			
			unf.	450	30	2
Quartär	Quartär, sandig, F	$^{238}\text{Pu}$	$27200 \pm 5900$	$152500 \pm 5140$	$160200 \pm 11000$	$164800 \pm 7970$
Söhlde 1	Rhotomagensis, G <sup>1</sup>	$^{238}\text{Pu}$	$700 \pm 160$	$1280 \pm 120$	$1360 \pm 100$	$1550 \pm 140$
Söhlde 1	Rhotomagensis, G <sup>2</sup>	$^{238}\text{Pu}$	$4390 \pm 270$	$4100 \pm 300$	$4800 \pm 400$	$5540 \pm 780$
Söhlde 1	Lamarcki Pl., G	$^{238}\text{Pu}$	$4200 \pm 170$	$4600 \pm 210$	$4700 \pm 50$	$4600 \pm 170$
Söhlde 1	U/M Cenoman	$^{238}\text{Pu}$	$7600 \pm 730$	$8400 \pm 2100$	$8900 \pm 2000$	$9000 \pm 1500$
Str.670	Kimmeridge, F <sup>3</sup>	$^{238}\text{Pu}$	$920 \pm 60$	$20930 \pm 200$	$22240 \pm 1400$	$21500 \pm 560$
Str.670	Kimmeridge, F <sup>4</sup>	$^{238}\text{Pu}$	$530 \pm 60$	$25100 \pm 6600$	$23950 \pm 100$	$30600 \pm 150$
Str.670	Cornbrash, F <sup>3</sup>	$^{238}\text{Pu}$	$11900 \pm 4900$	$17500 \pm 900$	$17700 \pm 1100$	$17590 \pm 1300$
Str.670	Cornbrash, F <sup>4</sup>	$^{238}\text{Pu}$	$12100 \pm 1400$	$20800 \pm 300$	$20700 \pm 100$	$20800 \pm 1000$
Quartär	Quartär, sandig, F	$^{241}\text{Am}$	$3330 \pm 830$	$46000 \pm 5600$	$74000 \pm 3600$	$79600 \pm 6600$
Str.670	Liegendes Erz, G	$^{241}\text{Am}$	$4600 \pm 320$	$5080 \pm 60$	$6450 \pm 280$	$5570 \pm 110$

Tabelle 4.6-72: Kolloiduntersuchungen an  $^{241}\text{Am}$  in Söhlde-1- und Str.670-Wasser. Konzentration in Abhängigkeit von der Filterporengröße; Wasser mit Überschuß an  $\text{Am}(\text{OH})_3$

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Äquili- brierungs- zeit  Wochen	Am-Konzentration [ $10^{-7}$ mol/l]			
			unf.	Filterporengröße [nm]		
				450	30	2
Söhlde 1	Rotpläner	32	3.98	2.31	1.91	1.63
Söhlde 1	U/M Cenoman	32	2.48	2.01	1.62	1.48
Str.670	Kimmeridge	32	24.98	24.85	23.80	24.14
Str.670	Hangendes Erz	32	11.65	5.52	5.16	5.23

Tabelle 4.6-73: Kolloiduntersuchungen an  $^{241}\text{Am}$  in Quartär-, Söhlde-1- und Str.670-Wasser. Konzentration in Abhängigkeit von der Filterporengröße; Wasser ungesättigt an  $\text{Am}(\text{OH})_3$

Wasser	konditioniert mit dem Gestein	Äquili- brierungs- zeit  Wochen	Am-Konzentration [ $10^{-10}$ mol/l]			
			unf.	Filterporengröße [nm]		
				450	30	2
Söhlde 1	Rotpläner	54	2.63	0.91	0.80	0.26
Söhlde 1	U/M Cenoman	58	2.90	0.64	0.53	0.17
Str.670	Kimmeridge	54	123.7	121.3	105.6	112.4
Str.670	Hangendes Erz	58	2.93	2.81	2.56	2.17
Quartär	Quartär, sandig	32	2937	1849	1557	1267

Tabelle 5-1: Sorption des  $^{238}\text{Pu}$  in salinem Modellwasser 1 an Teflon

Kontaktzeit	Pu-Konzentration [mol/l]	
	unfiltriert	filtriert*
0		$3.652 \times 10^{-8}$
1	$3.473 \times 10^{-8}$	$3.444 \times 10^{-8}$
5	$2.076 \times 10^{-8}$	$2.074 \times 10^{-8}$
22	$1.302 \times 10^{-8}$	$1.186 \times 10^{-8}$

\* Filtration über 450 nm

Tabelle 5-2: Diffusionsexperimente mit Koge-Proben

Gestein	Wasser	Nuklid	Probendicke [mm]	Durchbruchzeit [Tage]
Lamarcki Pläner	Söhlde 1	$^{237}\text{Np}$	2.6	26
U/M Cenoman	Söhlde 1	$^{237}\text{Np}$	2.9	120
Kimmeridge	Str.670	$^{237}\text{Np}$	3.0	170
Hangendes Erz	Str.670	$^{237}\text{Np}$	3.1	70
Liegendes Erz	Str.670	$^{237}\text{Np}$	3.0	65
Erzkalke	Str.670	$^{237}\text{Np}$	3.2	220
Fladentonstein	Str.670	$^{237}\text{Np}$	2.6	50
Heersumer Schichten	Str.670	$^{237}\text{Np}$	2.4	160
Cornbrash	Str.670	$^{237}\text{Np}$	4.0	12
Cornbrash	Str.670	$^{237}\text{Np}$	4.3	9
Lamarcki Pläner	Söhlde 1	$^{238}\text{Pu}$	3.7	85
Lamarcki Pläner	Söhlde 1	$^{238}\text{Pu}$	3.7	70
U/M Cenoman	Söhlde 1	$^{238}\text{Pu}$	2.0	130
U/M Cenoman	Söhlde 1	$^{238}\text{Pu}$	4.2	>360
Kimmeridge	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	2.4	>260
Hangendes Erz	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	2.9	>260
Liegendes Erz	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	2.9	>260
Erzkalke	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	2.6	>260
Fladentonstein	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	2.5	>260
Heersumer Schichten	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	2.1	>260
Cornbrash	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	4.3	80
Cornbrash	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	4.2	>300

Tabelle 5-3: Diffusionsexperimente mit Sorp-Proben

Gestein	Wasser	Nuklid	Probendicke [mm]	Durchbruchs- zeit [Tage]
Sorp 1	Söhle 2	$^{237}\text{Np}$	3.3	>140
Sorp 2	MW2	$^{237}\text{Np}$	3.1	>140
Sorp 3	Hils 2	$^{237}\text{Np}$	3.2	>140
Sorp 4	Hils 2	$^{237}\text{Np}$	3.2	>140
Sorp 5	Hils 2	$^{237}\text{Np}$	4.9	0.4 *
Sorp 6	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	3.0	14
Sorp 6	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	2.8	14
Sorp 7	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	3.0	14
Sorp 8	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	2.6	>140
Sorp 9	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	3.2	>140
Sorp 9	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	2.5	>140
Sorp 10	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	2.8	45
Sorp 5	Hils 2	$^{238}\text{Pu}$	4.3	65
Sorp 7	Ort 300	$^{238}\text{Pu}$	2.7	>140
Sorp 8	Ort 300	$^{238}\text{Pu}$	2.9	>140
Sorp 9	Ort 300	$^{238}\text{Pu}$	3.0	>140
Sorp 10	Ort 300	$^{238}\text{Pu}$	2.9	>140
Sorp 5	Hils 2	$^{99}\text{Tc}$	5.1	0.18 *
Sorp 7	Ort 300	$^{99}\text{Tc}$	2.7	1.2 *
Sorp 8	Ort 300	$^{99}\text{Tc}$	3.4	1.5

\* Durchbruchzeit aus Diffusionskoeffizient berechnet



Tabelle 5-4: Ergebnisse der Diffusionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$  und den Koge-Proben

Gestein	Wasser	Nuklid	Diffusionskoeffizienten		Kapazitäts- faktor	$K_d$	$R_s$ Batchversuch
			$D_1$	$D_2$			
			[ $\text{cm}^2/\text{sec}$ ]	[ $\text{cm}^2/\text{sec}$ ]			
Lamarcki Pläner	Söhlde 1	$^{237}\text{Np}$	$5.0 \times 10^{-9}$	$2.7 \times 10^{-7}$	53.8	19.8	$217 \pm 30$
U/M Cenoman	Söhlde 1	$^{237}\text{Np}$	$1.4 \times 10^{-9}$	$2.9 \times 10^{-8}$	20.9	7.7	$>300$
Kimmeridge	Str.670	$^{237}\text{Np}$	$1.0 \times 10^{-9}$	$3.45 \times 10^{-9}$	3.45	1.2	$44 \pm 9$
Hängendes Erz	Str.670	$^{237}\text{Np}$	$2.7 \times 10^{-9}$	$3.3 \times 10^{-9}$	1.25	0.4	$104 \pm 46$
Liegendes Erz	Str.670	$^{237}\text{Np}$	$2.7 \times 10^{-9}$	$1.3 \times 10^{-9}$	0.48	0.1	$186 \pm 20$
Erzkalke	Str.670	$^{237}\text{Np}$	$9.0 \times 10^{-10}$	$1 \times 10^{-9}$	1.1	0.3	$66 \pm 24$
Fladentonstein	Str.670	$^{237}\text{Np}$	$2.2 \times 10^{-9}$	$2.0 \times 10^{-9}$	0.9	0.3	$46 \pm 4$
Heersumer Schichten	Str.670	$^{237}\text{Np}$	$6.9 \times 10^{-10}$	$1.8 \times 10^{-9}$	2.6	0.9	$52 \pm 3$
Cornbrash	Str.670	$^{237}\text{Np}$	$2.6 \times 10^{-8}$	$1.75 \times 10^{-7}$	6.8	2.4	$8.9 \pm 0.9$
Cornbrash	Str.670	$^{237}\text{Np}$	$4.0 \times 10^{-8}$	$1.3 \times 10^{-7}$	3.3	1.2	$8.9 \pm 0.9$

Tabelle 5-5: Ergebnisse der Diffusionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$  und den Koge-Proben

Gestein	Wasser	Nuklid	Diffusionskoeffizienten		Kapazitätsfaktor	$K_d$ [cm <sup>3</sup> /g]	$R_s$ Batchversuch [cm <sup>3</sup> /g]
			$D_1$ [cm <sup>2</sup> /sec]	$D_2$ [cm <sup>2</sup> /sec]			
Lamarcki Pläner	Söhle 1	$^{238}\text{Pu}$	$3.1 \times 10^{-9}$	$1.2 \times 10^{-7}$	38.6	14.2	24800 ± 1200
Lamarcki Pläner	Söhle 1	$^{238}\text{Pu}$	$3.8 \times 10^{-9}$	$4.9 \times 10^{-8}$	13.0	4.7	24800 ± 1200
U/M Cenoman	Söhle 1	$^{238}\text{Pu}$	$5.9 \times 10^{-10}$	$7.2 \times 10^{-10}$	1.2	0.4	18950 ± 6170
U/M Cenoman	Söhle 1	$^{238}\text{Pu}$	$< 9.5 \times 10^{-10}$	-	-	-	18950 ± 6170
Kimmeridge	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	$< 4.3 \times 10^{-10}$	-	-	-	>29000
Hangendes Erz	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	$< 6.2 \times 10^{-10}$	-	-	-	102000 ± 17000
Liegendes Erz	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	$< 6.2 \times 10^{-10}$	-	-	-	18200 ± 2650
Erzkalke	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	$< 5.0 \times 10^{-10}$	-	-	-	>28000
Fladentonstein	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	$< 4.6 \times 10^{-10}$	-	-	-	>80000
Heersumer Schichten	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	$< 3.3 \times 10^{-10}$	-	-	-	>51000
Cornbrash	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	$4.5 \times 10^{-9}$	$2.36 \times 10^{-9}$	0.52	0.1	11250 ± 150
Cornbrash	Str.670	$^{238}\text{Pu}$	$< 1.1 \times 10^{-9}$	-	-	-	11250 ± 150

Tabelle 5-6: Ergebnisse der Diffusionsexperimente mit  $^{237}\text{Np}$  und den Sorp-Proben

Gestein	Wasser	Nuklid	Diffusionskoeffizienten		Kapazitätsfaktor	$K_d$	$R_s$ Batchversuch
			$D_1$ [cm <sup>2</sup> /sec]	$D_2$ [cm <sup>2</sup> /sec]			
Sorp 1	Söhlde 2	$^{237}\text{Np}$	$\langle 1.5 \times 10^{-9}$	-	-	-	460 ± 70
Sorp 2	MW2	$^{237}\text{Np}$	$\langle 1.3 \times 10^{-9}$	-	-	-	470 ± 130
Sorp 3	Hils 2	$^{237}\text{Np}$	$\langle 1.4 \times 10^{-9}$	-	-	-	136 ± 20
Sorp 4	Hils 2	$^{237}\text{Np}$	$\langle 1.4 \times 10^{-9}$	-	-	-	55 ± 11
Sorp 5	Hils 2	$^{237}\text{Np}$	$\rangle 1 \times 10^{-6}$	$1.07 \times 10^{-6}$	$\langle 1$	$\langle 0.3$	2.76 ± 0.34
Sorp 6	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	$1.24 \times 10^{-8}$	$3.3 \times 10^{-8}$	2.7	0.9	17.4 ± 1.1
Sorp 6	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	$1.1 \times 10^{-8}$	$2.1 \times 10^{-8}$	1.9	0.6	17.4 ± 1.1
Sorp 7	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	$1.24 \times 10^{-8}$	$1.3 \times 10^{-8}$	1.05	0.3	20.0 ± 1.7
Sorp 8	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	$\langle 9.3 \times 10^{-10}$	-	-	-	-
Sorp 9	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	$\langle 1.4 \times 10^{-9}$	-	-	-	112 ± 8
Sorp 9	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	$\langle 8.6 \times 10^{-10}$	-	-	-	112 ± 8
Sorp 10	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	$\langle 3.4 \times 10^{-9}$	-	-	-	47 ± 4

Tabelle 5-7: Ergebnisse der Diffusionsexperimente mit  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  und den Sorp-Proben

Gestein	Wasser	Nuklid	Diffusionskoeffizienten		Kapazitätsfaktor	$K_d$ [cm <sup>3</sup> /g]	$R_s$ Batchversuch [cm <sup>3</sup> /g]
			$D_1$ [cm <sup>2</sup> /sec]	$D_2$ [cm <sup>2</sup> /sec]			
Sorp 5	Hils 2	$^{238}\text{Pu}$	$5.5 \times 10^{-9}$	$1.0 \times 10^{-8}$	1.8	0.6	16800 ± 4100
Sorp 7	Ort 300	$^{238}\text{Pu}$	$< 1.0 \times 10^{-9}$	-	-	-	> 6800
Sorp 8	Ort 300	$^{238}\text{Pu}$	$< 1.2 \times 10^{-9}$	-	-	-	-
Sorp 9	Ort 300	$^{238}\text{Pu}$	$< 1.2 \times 10^{-9}$	-	-	-	> 26000
Sorp 10	Ort 300	$^{238}\text{Pu}$	$< 1.2 \times 10^{-9}$	-	-	-	> 21000
Sorp 5	Hils 2	$^{99}\text{Tc}$	$> 2.7 \times 10^{-6}$	$2.7 \times 10^{-6}$	-	-	0.22 ± 0.05
Sorp 7	Ort 300	$^{99}\text{Tc}$	$> 1.2 \times 10^{-7}$	$1.2 \times 10^{-7}$	-	-	0.61 ± 0.05
Sorp 8	Ort 300	$^{99}\text{Tc}$	$1.5 \times 10^{-7}$	$1.2 \times 10^{-8}$	0.08	-	-

Tabelle 6-1: Ergebnisse der Säulenexperimente

Gestein	Wasser	Nuklid	Säule		Batch	
			$R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	$R_d$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]	Feinfraktion	Grobfraktion
			Kontaktzeit ca. 20 Wochen			
			$R_s$ [ $\text{cm}^3/\text{g}$ ]			
Rhotomagensis Pläner	Söhlde 1	$^{237}\text{Np}$	>200	-	>200	170 ± 50
Lamarcki Pläner	Söhlde 1	$^{237}\text{Np}$	>200	-	217 ± 30	143 ± 70
U/M Cenoman	Söhlde 1	$^{237}\text{Np}$	>400	-	>300	260 ± 90
Kimmeridge	Str.670	$^{237}\text{Np}$	5 ± 2	10 ± 2	44 ± 9	14.3 ± 0.6
Hangendes Erz	Str.670	$^{237}\text{Np}$	88 ± 10	100 ± 6	104 ± 46	85 ± 10
Liegendes Erz	Str.670	$^{237}\text{Np}$	65 ± 7	73 ± 7	186 ± 20	19.7 ± 4.2
Erzkalke	Str.670	$^{237}\text{Np}$	64 ± 26	550 ± 130	66 ± 24	32 ± 10
Fladentonstein	Str.670	$^{237}\text{Np}$	45 ± 3	-	46 ± 4	89 ± 21
Heersumer Schichten	Str.670	$^{237}\text{Np}$	28 ± 3	65 ± 6	52 ± 3	54 ± 6
Cornbrash	Str.670	$^{237}\text{Np}$	10 ± 1	-	8.3 ± 1.2	-
Sorp 7	Ort 300	$^{237}\text{Np}$	5.8 ± 0.7	11 ± 3	20.0 ± 1.7*	-
Kimmeridge	Str.670	$^{239}\text{Pu}$	~2000	-	>29000	4980 ± 870
Cornbrash	Str.670	$^{239}\text{Pu}$	1300 ± 600	6000 ± 1000	11250 ± 150	-

\* Mittelfraktion