

## Anmeldung

Das Anmeldeformular liegt unter  
[www.ptka.kit.edu/wte](http://www.ptka.kit.edu/wte)

Für die Anmeldung bitte  
das Anmeldeformular  
als PDF im Anhang einer E-Mail  
an die Adresse  
[elritta.foerster@kit.edu](mailto:elritta.foerster@kit.edu) oder  
bis 10.03.2015 zurücksenden.

Die Teilnahme ist kostenlos.

## Veranstaltungsort

### art'otel dresden

Ostra - Allee 33  
01067 Dresden  
t: +49 351 4922 702 / f: +49 351 4922 778 /

Hinweise zur Anreise:

<http://www.artotels.com/dresden-hotel-de-d-01067/gerdrart/area/map>

PROJEKTRÄGER FÜR DAS



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

## Organisation:

Projekträger Karlsruhe Wassertechnologie  
und Entsorgung (PTKA-WTE)

### Außenstelle Dresden

Hallwachsstraße 3  
01069 Dresden

Tel.: +49 351 463-31433 (E. Förster)  
Fax: +49 351 463-31444  
Internet: [www.ptka.kit.edu/wte/](http://www.ptka.kit.edu/wte/)

## Ansprechpartner:

Dr. Silvia Stumpf  
Telefon: +49 351-463-33060  
E-Mail: [silvia.stumpf@kit.edu](mailto:silvia.stumpf@kit.edu)

Sylvia Gräber  
Telefon: +49 351-463-31438  
E-Mail: [sylvia.graeber@kit.edu](mailto:sylvia.graeber@kit.edu)



**PTKA**  
**Projekträger Karlsruhe**

Karlsruher Institut für Technologie

[www.ptka.kit.edu/wte](http://www.ptka.kit.edu/wte)



## 2. PROJEKTSTATUSGESPRÄCH

zur BMBF-geförderten

## Nuklearen Sicherheitsforschung

Dresden  
25. - 26. März 2015

Projekträger Karlsruhe  
Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE)



## Programm

### Mittwoch 25. März 2015

#### Begrüßung

12:30 - 12:45

C. RÖVEKAMP Bundesministerium für Bildung und  
Forschung

12:45 - 13:00

S. STUMPF Projektträger Karlsruhe

#### Reaktorsicherheitsforschung

A. Ehrlich 13:00 - 15:45

#### Kompetenzverbund Kerntechnik

13:00 - 13:30

J. KNEBEL Karlsruher Institut für Technologie

#### Nichtinvasive Zustandsüberwachung von Kernreaktoren

13:30 - 14:15

U. HAMPEL Helmholtz-Zentrum Dresden-  
Rossendorf

S. SCHMIDT Hochschule Zittau/Görlitz

#### Innovative Extinktionsphotometrie zur Charakterisierung eines Mehrkomponenten- Aerosols und zur Feuchtemessung

14:15 - 15:00

H. J. ALLELEIN Forschungszentrum Jülich

J. KÖSER Technische Universität Darmstadt

#### Sicherheitsrelevante Analyse des Verhaltens von Armaturen, Kreiselpumpen und Einlaufgeometrien unter Berücksichtigung störfallbedingter Belastungen

15:00 - 15:45

M. SCHLÜTER Technische Universität Hamburg

T. SCHÄFER Helmholtz-Zentrum Dresden-  
Rossendorf

#### Kaffeepause

15:45 - 16:15

#### Entsorgungsforschung

S. Stumpf 16:15 - 19:00

#### Helmholtzenergieprogramm - NUSAFE

16:15 - 16:45

D. BOSBACH Forschungszentrum Jülich

#### Immobilisierung von Radionukliden

16:45 - 17:30

T. SCHÄFER Karlsruher Institut für Technologie,  
Institut für Nukleare Entsorgung

S. HOFMANN Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf

#### Selektive Komplexierung von f-Elementen

17:30 - 18:15

A. GEIST Karlsruher Institut für Technologie,  
Institut für Nukleare Entsorgung

P. KADEN Karlsruher Institut für Technologie,  
Institut für Nukleare Entsorgung

#### Konditionierung radioaktiver Abfälle

18:15 - 19:00

S. NEUMEIER Forschungszentrum Jülich

Y. ARINICHEVA Forschungszentrum Jülich

#### Empfang

19:30 - 22:00

### Donnerstag 26. März 2015

#### Strahlenforschung

S. Gräber 09:00 - 11:00

#### Kompetenzverbund Strahlenforschung

09:00 - 09:30

E. DIKOMEY Universitätsklinikum Hamburg-Eppendorf

#### Genetische Risiken und entzündungshemmende Wirkung von dicht-ionisierender Strahlung

09:30 - 10:15

C. FOURNIER GSI Helmholtzzentrum für  
Schwerionenforschung

J. MIRSCH Technische Universität Darmstadt

#### Pränatale Entwicklung

10:15 - 11:00

S. RITTER GSI Helmholtzzentrum für  
Schwerionenforschung

M. MAYER

Hochschule Aschaffenburg

#### Kaffeepause

11:00 - 11:30

#### Strahlenforschung

S. Gräber 11:30 - 13:45

#### Personalisierte Abschätzung von Spätfolgen nach Strahlenexposition und Orientierungshilfe für Strahlenanwendungen in der Medizin

11:30 - 12:15

H. SCHMIDBERGER Universitätsklinik Mainz

A. ZVEREVA Helmholtz-Zentrum München

#### Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen

12:15 - 13:00

K. HÜRKAMP Helmholtz Zentrum München

U. GERBER. HELMHOLTZ ZENTRUM DRESDEN-  
ROSSENDORF

#### Simulation von Hoch-LET-Effekten mittels fokussierter Niedrig-LET-Strahlung

13:00 - 13:45

G. DOLLINGER Universität der Bundeswehr München

CH. GREUBEL Universität der Bundeswehr München

#### Schlusswort

#### Mittags-Imbiss vom Buffet

Ab 14:00

Änderungen, Druckfehler und Irrtümer vorbehalten.

# Research for the safe management of radioactive waste

## in the Helmholtz - Association

Dirk Bosbach

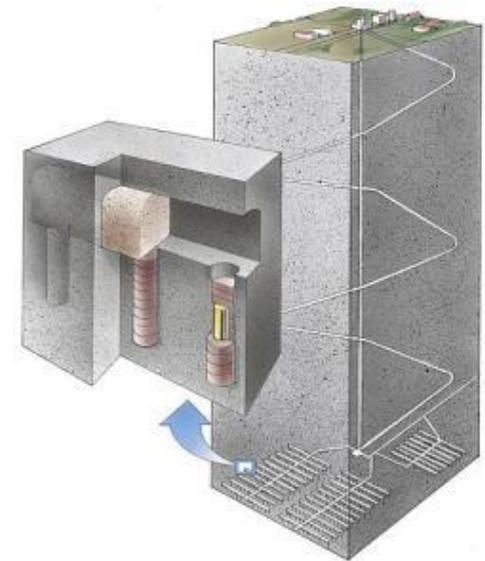
# Nuclear Energy in Germany

- **Electricity production by nuclear energy will be terminated by 2022** (Atomic Energy Act, August 2011).
- **Decommissioning of all nuclear power plants** will take several decades.
- The repository site selection act (July 2013) re-defines the site selection procedure for the **high level waste repository**.
- **Repository Konrad for low- and intermediate level waste** will start operation in the next decade.



# Nuclear Energy beyond Germany

- *On an international level*, nuclear energy seems to have a **long-term perspective** with currently 68 new builds in various countries including neighbouring countries.
- The first **deep-geological repositories** for high level waste in Europe will start operation within the next 10 – 15 years.



# Geological Disposal seems to be the best option

## OECD NEA RWMC collective statement, 2008

- There is overwhelming scientific consensus world-wide that geological disposal is technically feasible

## 30+ years of R&D needed for the first license applications in Europe

- Sweden 76: March 2011 (35 yrs)  
operation 2029 (53 yrs)
- Finland 78: Dec. 2012 (34 yrs)  
operation 2022 (44 yrs)
- France 70's: 2015-2017 (35-40 yrs)  
operation 2025 (ca.50 yrs)



C.Davis, EC





## **States that each Member State (MS) is responsible for its policy on RWM**

- But need to include planning and implementation of disposal options
- Recognises that development of a disposal facility needs many decades
- Radioactive Waste management (RWM) is based on state-of-the-art science and technology

## **Requires establishment and implementation of national programmes, Art. 12**

- milestones & timeframes for implementation
- Technical solutions for all steps including disposal
- RD&D activities

## **Requires arrangements for expertise and skills, Art.8**

- "arrangements for education and training, as well as research and development activities in order to obtain, maintain and to further develop necessary expertise and skills."

## **Requires competent regulatory authorities for safety of Spent Fuel (SF) and RWM**

## **Requires int.l Peer Reviews of nat.l Framework & prog. every 10 years**

# Experience on research for geological disposal (GD)



## Management and strategy for RW:

- **Waste inventory:** methods available
- **Characterisation, treatment/packaging:** techniques available, R&D for improvement and specific waste
- **GD for High Level & Long-lived waste (HL-LLW) and SF:** accepted & needed irrespective of Partitioning & Transmutation option and interim storage

## Repository concept & design:

- **Design, testing, demonstration and optimisation:** Large experience in main host rocks, RD&D on-going in particular site/system specific with several improvements steps (design, component development to full-scale)
- **Advanced programmes at final steps for implementation, construction, operational safety, monitoring and closure**



# Experience on research for geological disposal



## Site selection, characterisation and evaluation:

- **Selection process & methods:** different stages in dif. MS (role of public) but technical criteria known
- **Characterisation:** tools available

## Repository behaviour and performance assessment:

- **Basic science and specific system:** continuous progress in all disciplines with extensive experience, knowledge, information, tools and methods to take advantage of (key role of cooperation and joint projects in addition to own projects)
- **Performance assessment:** generic SA and tools widely developed. Own development and competence is central for guidance and integration of all disciplines in view of the safety case. Access to URLs for development, feasibility and prototype testing seems of utmost importance.
- **In all cases:** specific RD&D is needed



# EURATOM contributions



Eight Euratom R&T programmes in the management & disposal of radioactive waste since 1975

**1975-1979: 1st WM P**

**1980-1984: 2nd WM P**

**1985-1989: 3rd WM P**

**1990-1994: 4th WM P**

**1994-1998: 4th FP (// EC FP)**

**1998-2002: 5th FP**

**2002-2006: 6th FP**

**2007-2013: 7th FP**

**2014-2020: Horizon 2020**

**Contracts with single partners**

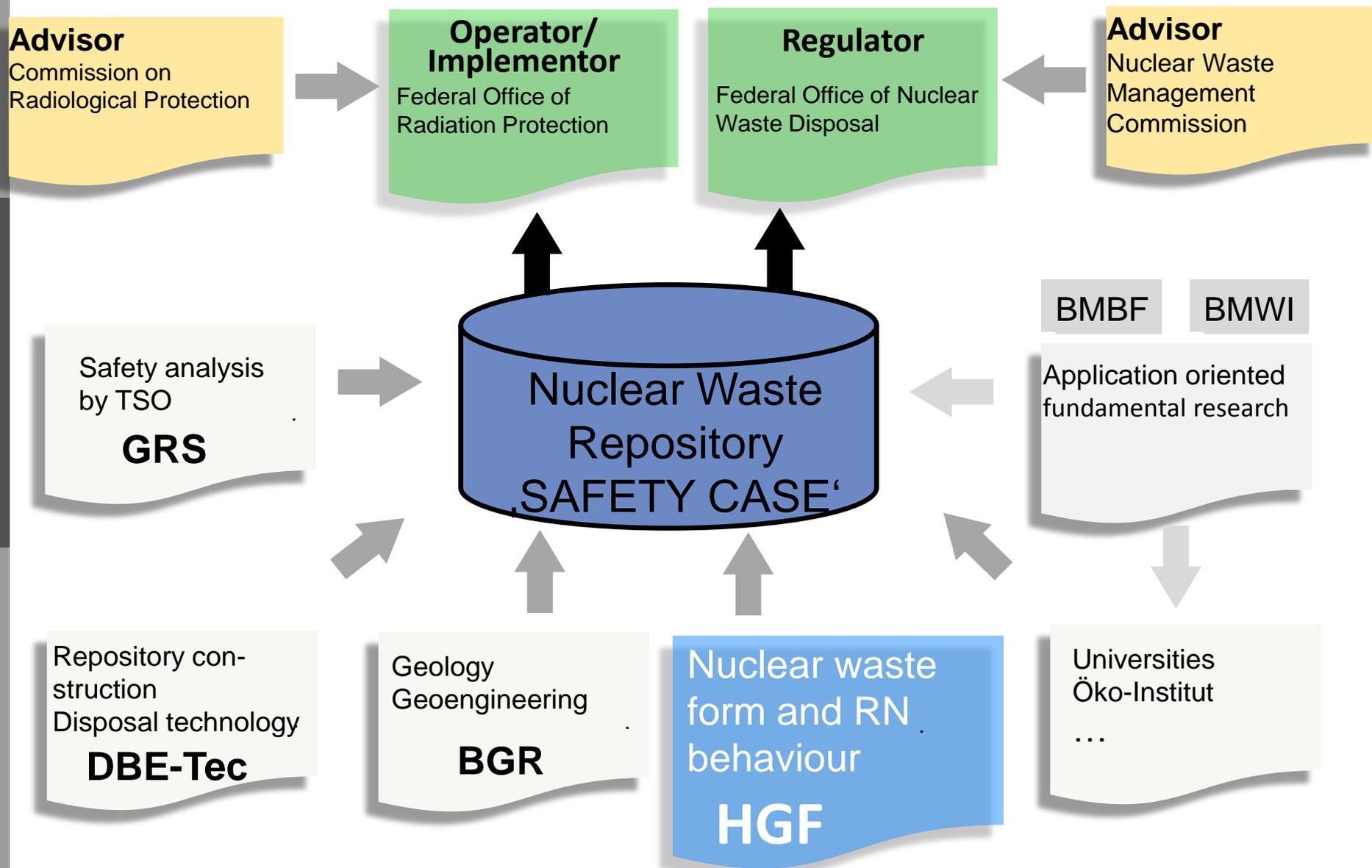
**Consortia**

**Large consortia (Integrated Projects)**

**IGD-TP**

**Towards Joint Programming**

# Nuclear Waste Disposal in Germany





DBE TECHNOLOGY GmbH, Forschungszentrum Jülich GmbH, Gesellschaft für Anlagen- und Reaktorsicherheit (GRS) mbH, Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (HZDR), IfG Institut für Gebirgsmechanik GmbH, Institut für Sicherheitstechnologie (ISTec) GmbH, Karlsruher Institut für Technologie (KIT), Öko-Institut e.V., Institut für Bergbau und Spezialtiefbau der Technischen Universität Bergakademie Freiberg, Institut für Endlagerforschung der Technischen Universität Clausthal.



Programme NUSAFE

# Nuclear Waste Management and Safety as well as Radiation Research

*Programme speaker – Dirk Bosbach*

# NUSAFE



Forschungszentrum Jülich GmbH  
(FZJ)

Materials science aspects of Nuclear  
Waste Management



Helmholtz – Zentrum Dresden –  
Rossendorf (HZDR)  
Radionuclides in ecosystems



Karlsruher Institut für Technologie (KIT)  
Aquatic geochemistry of actinides and  
fission products



# NUSAFE programme structure

- **Topic 1**

  - **Nuclear Waste Management (67%)**

    - Speaker: Prof. Dr. Horst Geckeis

      - **Safety Research for Nuclear Waste Disposal**
      - **Waste Management Strategies**

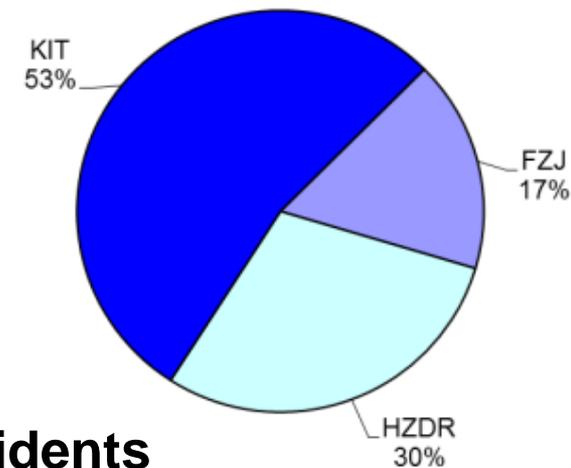
- **Topic 2**

  - **Reactor Safety (33%)**

    - Speaker: Dr. Sören Kliem

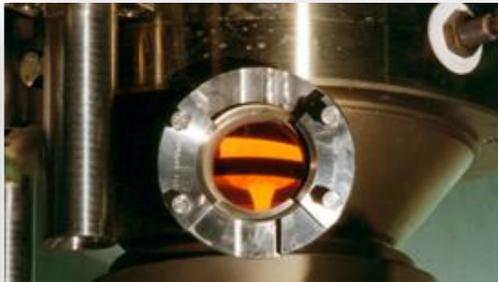
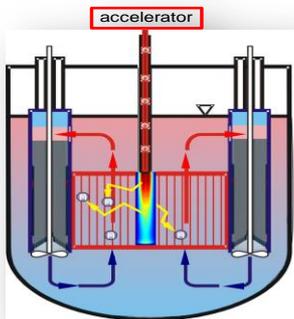
      - **Reactor Operation and Design Basis Accidents**
      - **Beyond Design Basis Accidents and Emergency Management**

234 FTE



# NUSAFE programme structure

- **Topic 1 - Nuclear Waste Management**
  - **Safety Research for Nuclear Waste Disposal**
  - **Waste Management Strategies**
    - **Partitioning & Transmutation/Conditioning**
    - **Nuclear Legacy Waste and Decommissioning**
    - **Safeguards**



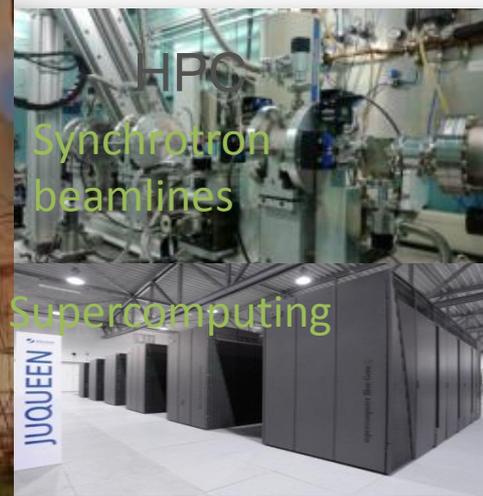
# NUSAFE large Research Infrastructure (selected)



Radiochemistry laboratories with hot cells



MOCKA



HPC  
Synchrotron beamlines  
Supercomputing



Topflow



KALLA



Theades

# Education in nuclear waste disposal

- Link to universities



- Graduate schools



- Teaching activities and cooperation with various universities in Germany and abroad
- 158 doctoral students (incl. affiliated university institutes)

# Objectives of NUSAFE

- Scientific support for the safety case of deep geological disposal
- Develop integrated waste management concepts for decommissioning & special nuclear wastes
- Evaluate innovative waste management strategies
- Support IAEA safeguards programme



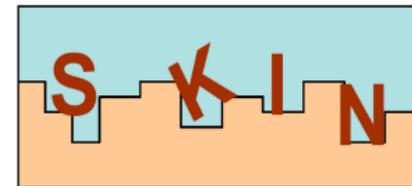
# Strategy of NUSAFE

- Focus on **nuclear** waste forms & **long-term behaviour** of radiotoxic waste components
- Translation of **molecular level** understanding to **macroscopic behaviour** of repository systems
- Tailored waste management concepts **for Germany** and in an international context



# Research in Europe

– supported by the European Commission (EC)



CEBAMA (submitted)

SAFEROCK (submitted)

GENUIN (submitted)



# Implementation of Geological Disposal – Technology Platform (IGD-TP)



- In 2009, several European waste management agencies have established a technology platform to accelerate the implementation of geological disposal of radioactive waste in Europe (under EC auspices)
- Industry-led to ensure relevancy of priorities and implementation of RD&D results
- Open to all science providers (consulting companies, academics, research centers, ...)



- 116 participants (EU countries, Switzerland, Canada, Japan, Australia)

# Implementation of Geological Disposal – Technology Platform (IGD-TP)



*„Our vision is that by 2025, the first geological disposal facilities for spent fuel, high-level waste, and other long-lived radioactive waste will be operating safely in Europe“*

**Focus on RD&D needs for countries closest to licensing.**

Specific issues intentionally left at national level: site characterisation, transportation, quality assurance, safeguards, ...)

**Strategic Research Agenda (SRA) priorities:** safety case, waste forms, monitoring, technical feasibility, development strategy of a repository, safety of construction & operation, governance & stakeholder involvement

# Research in Europa

## – supported by the Waste Management Agencies



Bundesministerium  
für Wirtschaft  
und Technologie



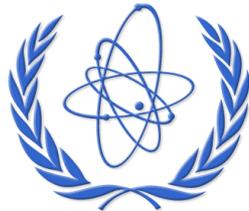
nagra.



COVRA<sub>NV</sub>



# International research



**IAEA**

International Atomic Energy Agency

*Atoms For Peace*



U.S. DEPARTMENT OF

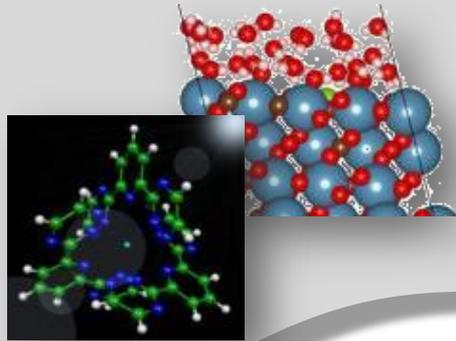
**ENERGY**



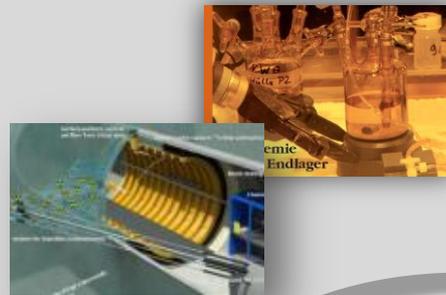
# Research strategy

## Studies

### Fundamental



### Applied



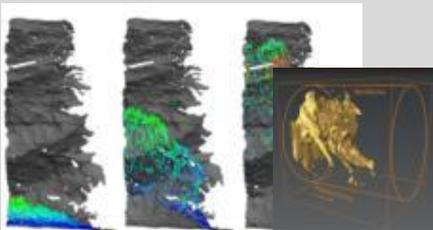
molecular scale



macroscale

## Tools

### Modeling



### Spectroscopy



Process  
under-  
standing

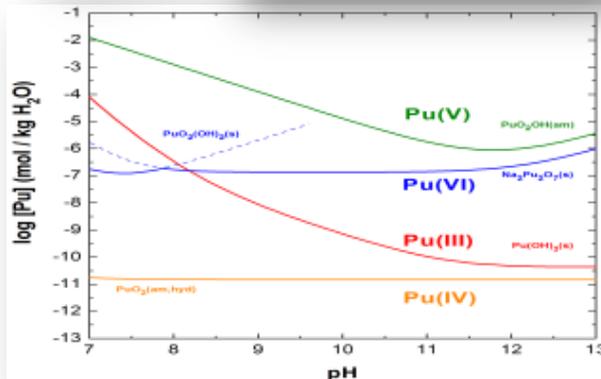
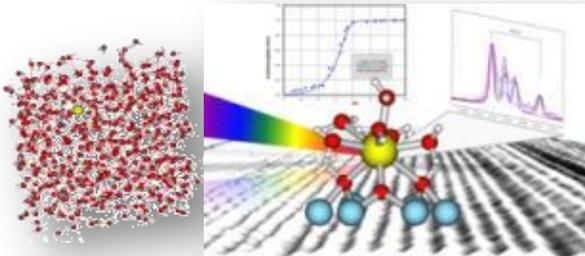


Quantitative  
description



# Fundamental/Modeling studies

- Aim:**
- Provide upper limits for radionuclide solubility
  - Quantify RN retention in repository (sub)systems



## ‘Filling knowledge gaps’

- ‘Mobile’ fission/activation products (<sup>99</sup>Tc, <sup>79</sup>Se, <sup>129</sup>I, <sup>36</sup>Cl, <sup>14</sup>C)
- Elevated temperature data (≤ 200°C)

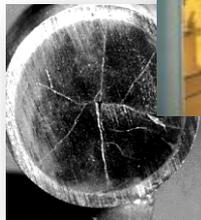
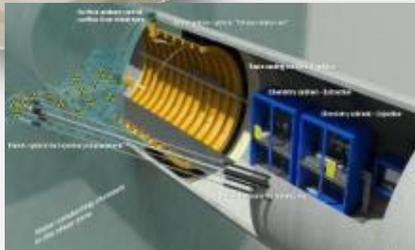
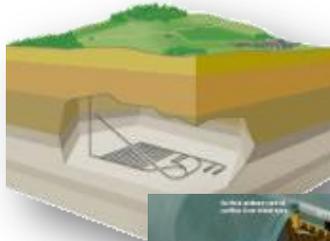
## New simulation approaches:

- Quantum chemistry (QC) → molecular scale
- Coupling chemistry processes to groundwater flow → reactive transport modeling (macroscale)

- **Develop and update** aqueous RN chemistry knowledge/data

# Applied Research

- Aim:**
- Contribution to safety assessment studies (e.g. vSG)
  - Upscaling/validation of predictions
  - Demonstration of safety features



← 10 mm →

**Fuel pellet**

## Waste form behaviour in a repository

- Long term evolution of **cement based materials**
- **spent nuclear fuel behaviour**

Assessment of **microbial effects** on RN mobility;  
RN behaviour in the **ecosphere**

New site selection process → Comparative **„source terms“** for disposal options in Germany

# Speciation methods

- Aim:**
- Develop **innovative** spectroscopic methods → insight into the molecular scale
  - Unique user laboratories = **‘seed crystals’** for international cooperation

microscopy techniques:  
SEM/EDX,  
TEM, AFM



NMR



GeoPET

XPS



XAS



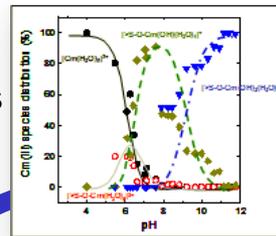
Optical Spectr. :  
ATR-FTIR  
Raman,  
UV-VIS

laser based methods:  
TRLFS, LPAS,  
LIBD, LIBS

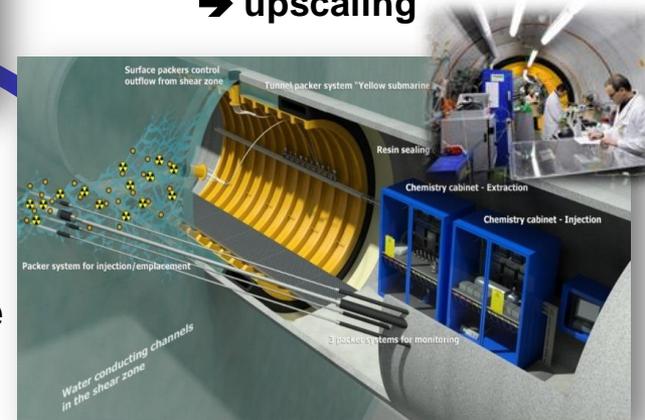
# Comprehensive approach

**Example:** Impact of glacial melt water induced erosion of bentonite barriers in a repository in crystalline rock

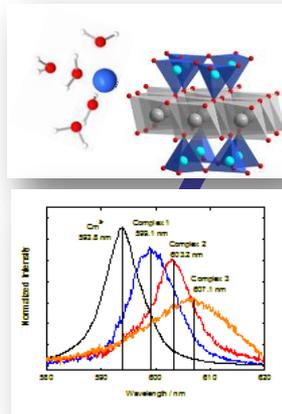
Geochemical speciation,  
Reaction kinetics



In-situ experiments  
(laboratory; underground rock laboratories - Grimsel, Äspö)  
→ **upscaling**

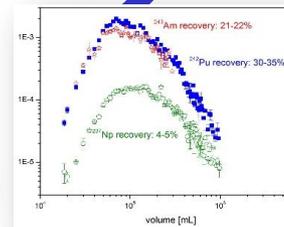
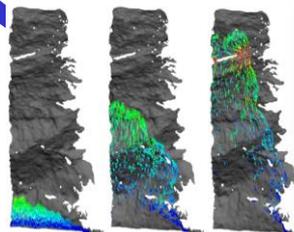


Spectroscopy,  
Quantum  
Chemistry



**Radionuclide  
behaviour in the  
geosphere**

Bundesministerium für Wirtschaft und Technologie  
**KOLLORADOe**



Simulation of radionuclide  
migration by reactive  
transport modeling



# Legacy waste/Decommissioning/Safeguards

- Aim:**
- Develop strategies and technologies for decommissioning
  - Develop technologies for waste characterization/treatment/decontamination
  - Contribute to the IAEA safeguards support programme



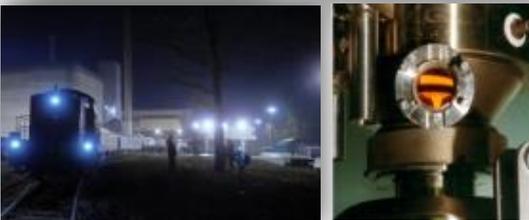
Scientific coordination of the German IAEA **safeguards** support programme

Innovative waste **characterization** methods



Optimization of **decontamination/treatment** procedures for decommissioning and legacy waste (incl. **i-graphite**)

**Decommissioning** scenarios, procedures, technologies



Mature **vitrification** technology  
-Appl. China, Russia, residues

# Concluding perspective ...

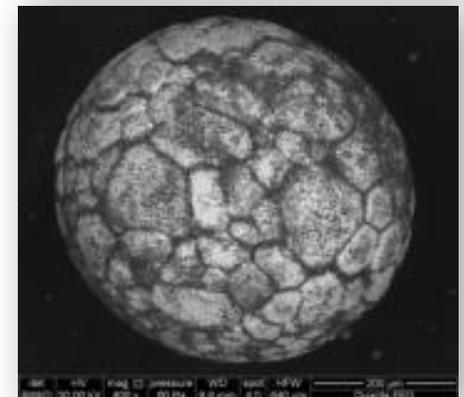
Long-term safety of a deep geological waste repository system cannot be demonstrated by technical means only – importance of **fundamental science** (process understanding on molecular scales)

HGF research is focused on **nuclear aspects** (behavior of radionuclides / nuclear waste materials)

**Education** / keeping competence (cooperation with universities)

Research for geological disposal of radioactive waste needs a **long-term perspective** considering the time frame for the site selection and licensing procedures.

**The Helmholtz Association provides scientific support for the implementation of a deep geological repository for high level radioactive waste in Germany.**

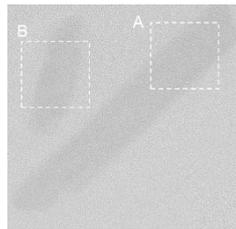




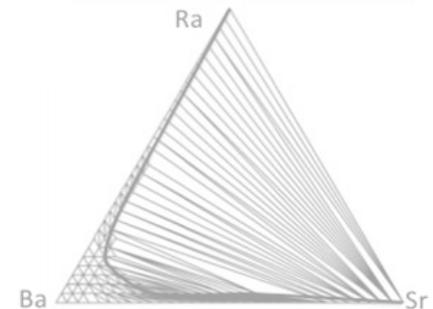
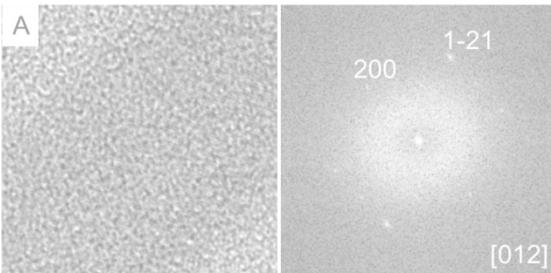
# "Basic Investigations on the **Immobilization** of long-lived **Radionuclides** by Interaction with Secondary Mineral Phases"

Thorsten Schäfer

Institut für Nukleare Entsorgung (INE)



HRTEM  
SrSO<sub>4</sub> nucleation

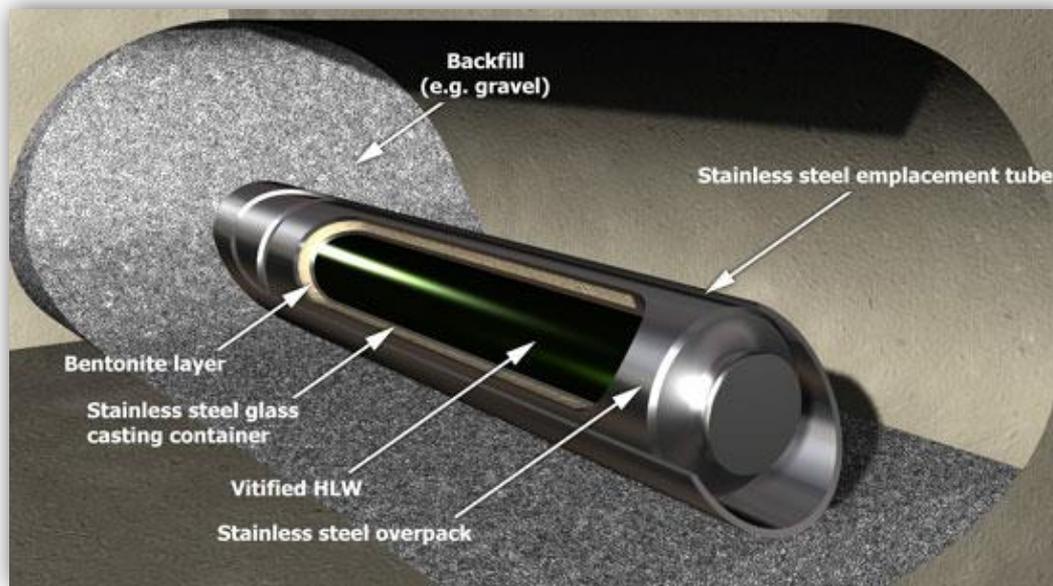
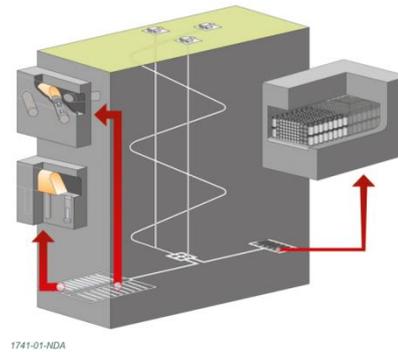


# Outline

- Überblick der ImmoRad Aktivitäten
- Vortrag **Sascha Hofmann:**

„Der Einfluss endlagerrelevanter Elektrolyte auf die Wechselwirkungen dreiwertiger Lanthanide und Actinide mit Calcit“

# Multi-Barrier Concept

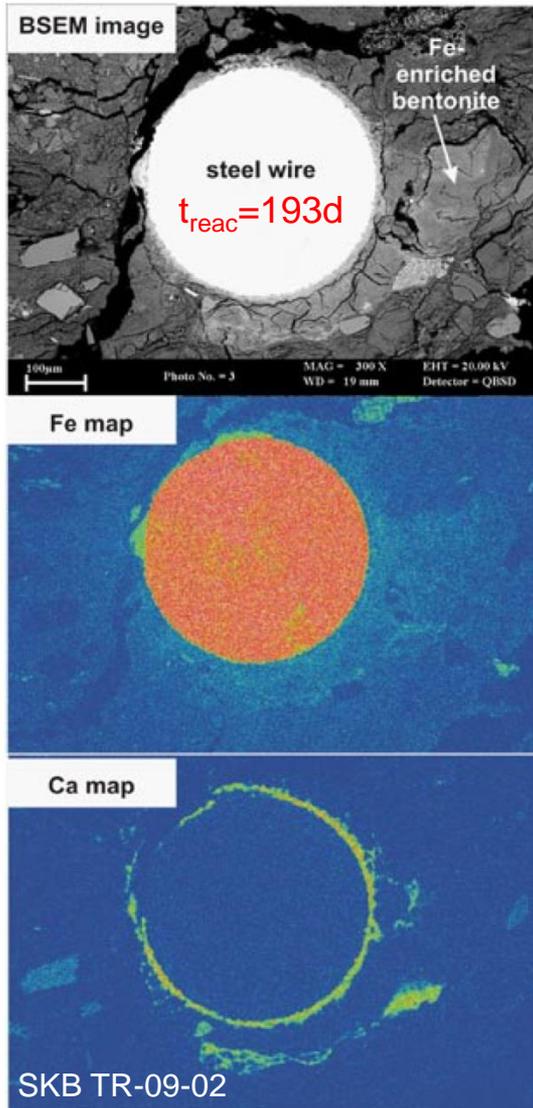


- Conceptual disposal method for High Level Waste (HLW)

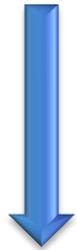
- The Nagra LLW Repository concept - pre-visualisation

Images: [www.dmmultimedia.com](http://www.dmmultimedia.com)

# Steel corrosion: Secondary phase formation



Steel corrosion



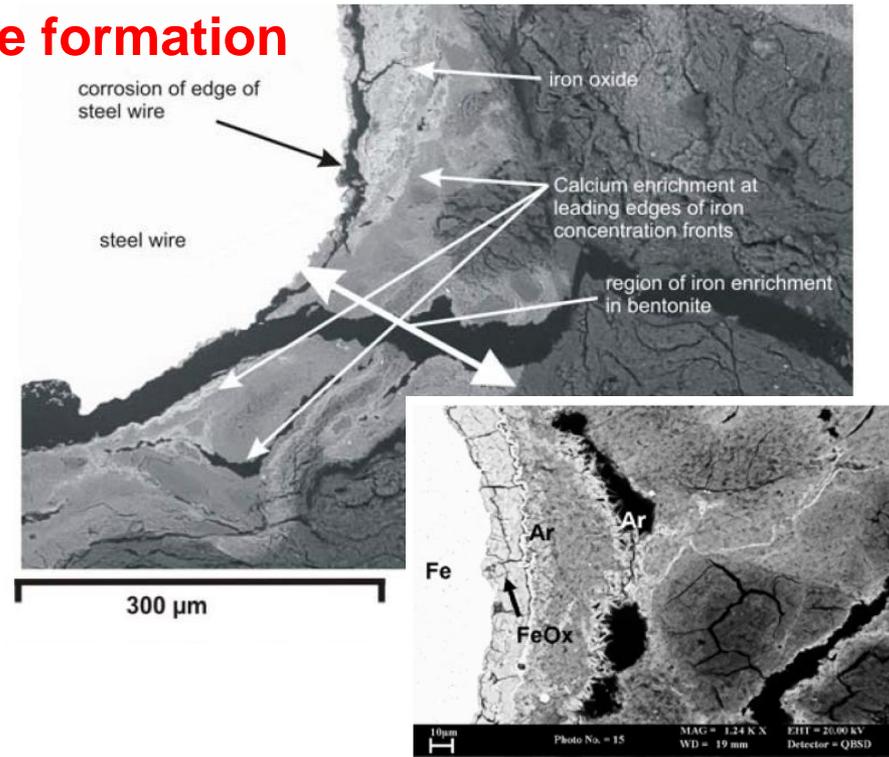
Fe(II) release  
 Fe-Oxide formation



Cation exchange processes



Fe(II) smectite  
 Ca-carbonate formation



## Radionuclide retention

- Surface complexation
- Isotope exchange
- **Co-precipitation**
- **Solid-solution formation**

# ImmoRad fields of research:

Spectroscopy

Microscopy

Model  
approaches

Trivalent actinides (Pu, Am, Cm)

Phosphates, Carbonates,  
Iron(hydr)oxides

Tetravalent actinides (Th, U, Np, Pu)

Silicates, Sulfates, Carbonates  
Sulfides, Iron(hydr)oxides, LDH

Radium and fission products (Se, Tc)

Sulfates, Sulfides, LDH, Carbonates

XANES,  
EXAFS,.....

ESEM,  
AFM,.....

DFT,  
GEMS,.....

# ImmoRad fields of research:

Spectroscopy

Microscopy

Model  
approaches

Trivalent actinides (Pu, Am, Cm)

Phosphates, Carbonates,  
Iron(hydr)oxides

Tetravalent actinides (Th, U, Np, Pu)

Silicates, Sulfates, Carbonates  
Sulfides, Iron(hydr)oxides, LDH

Radium and fission products (Se, Tc)

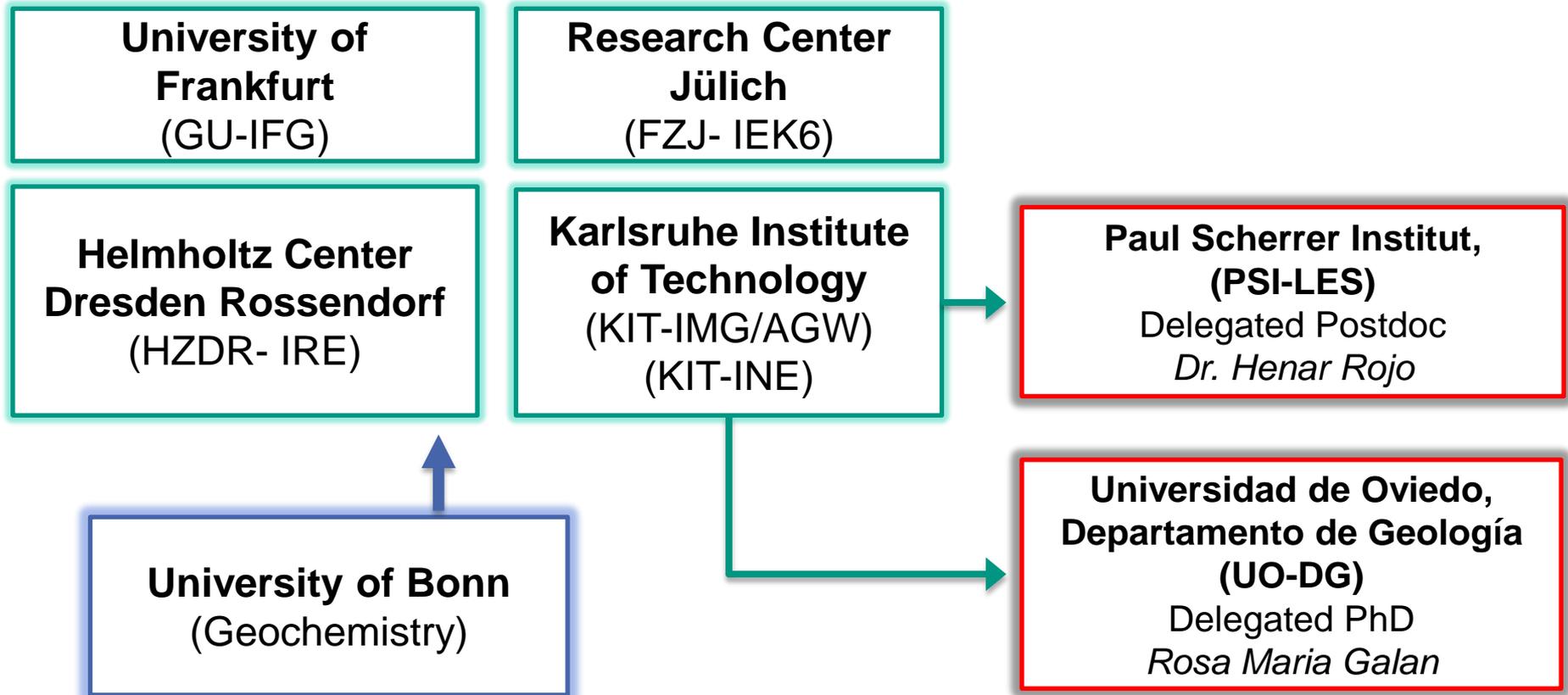
Sulfates, Sulfides, LDH, Carbonates

XANES,  
EXAFS,.....

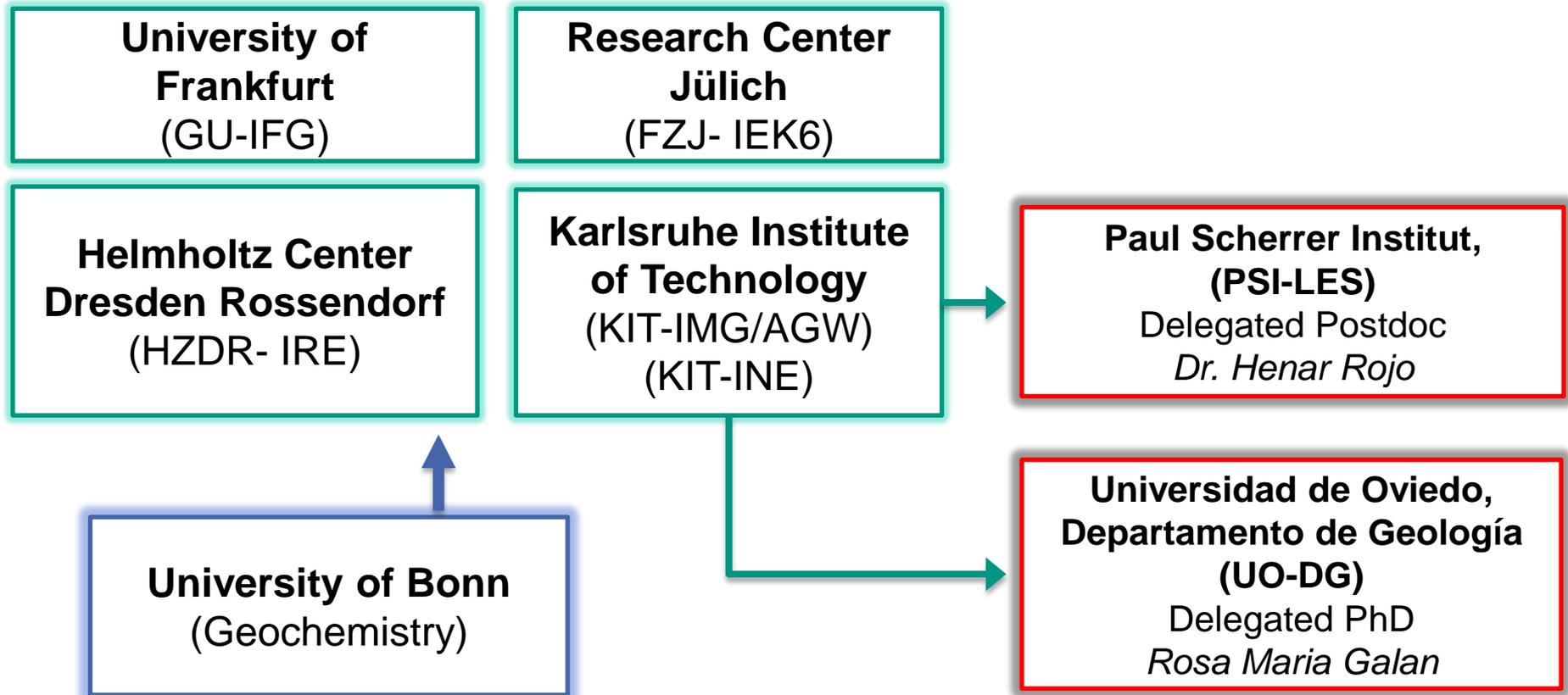
ESEM,  
AFM,.....

DFT,  
GEMS,.....

# ImmoRad structure



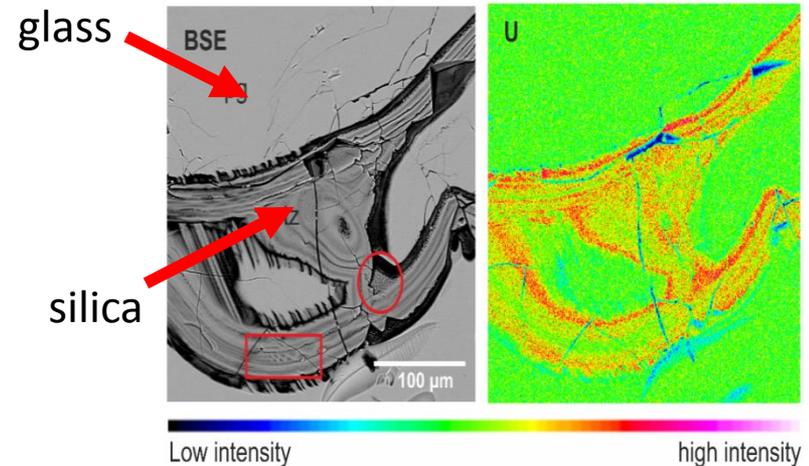
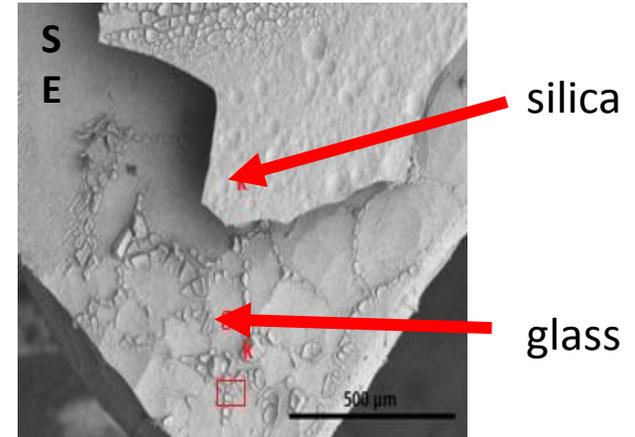
# ImmoRad structure



# Glass corrosion



- **Silica** –precipitation although bulk undersaturation
  - **Flow through reactor experiments** with Na-borosilicate glass (60 wt.% SiO<sub>2</sub>, 20 wt.% B<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 20 wt.% Na<sub>2</sub>O)
    - Permanently new feed solution
      - Always (global) undersaturation with respect to silica.
    - Precipitation of silica observed
      - Local supersaturation at solution- glass interface
- **Uranium** – retention in **silica** fringe
  - U-containing chalk- natron- silicate glass pearl from the 19th century (0.5 wt.% U)
  - Batch-experiments
    - here: 90°C, 14 d, pH = 12 (NaOH)

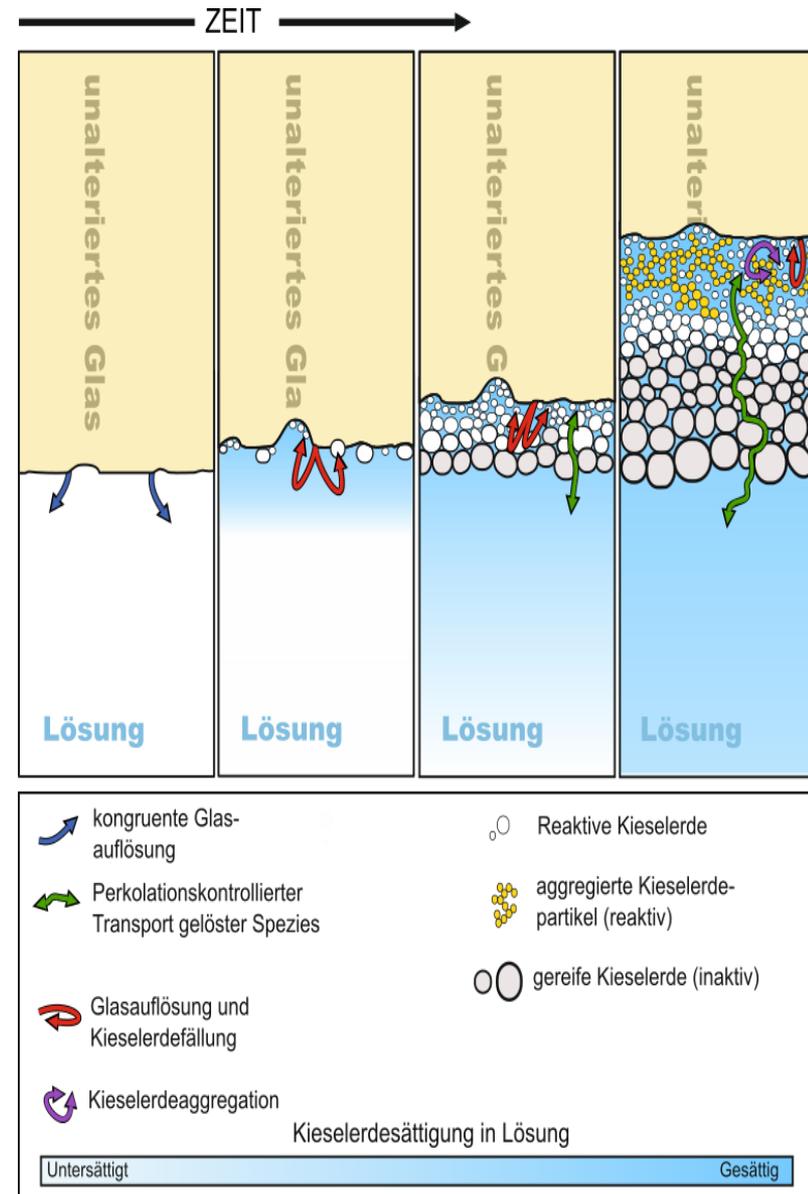


(nach Dohmen et al., 2013)

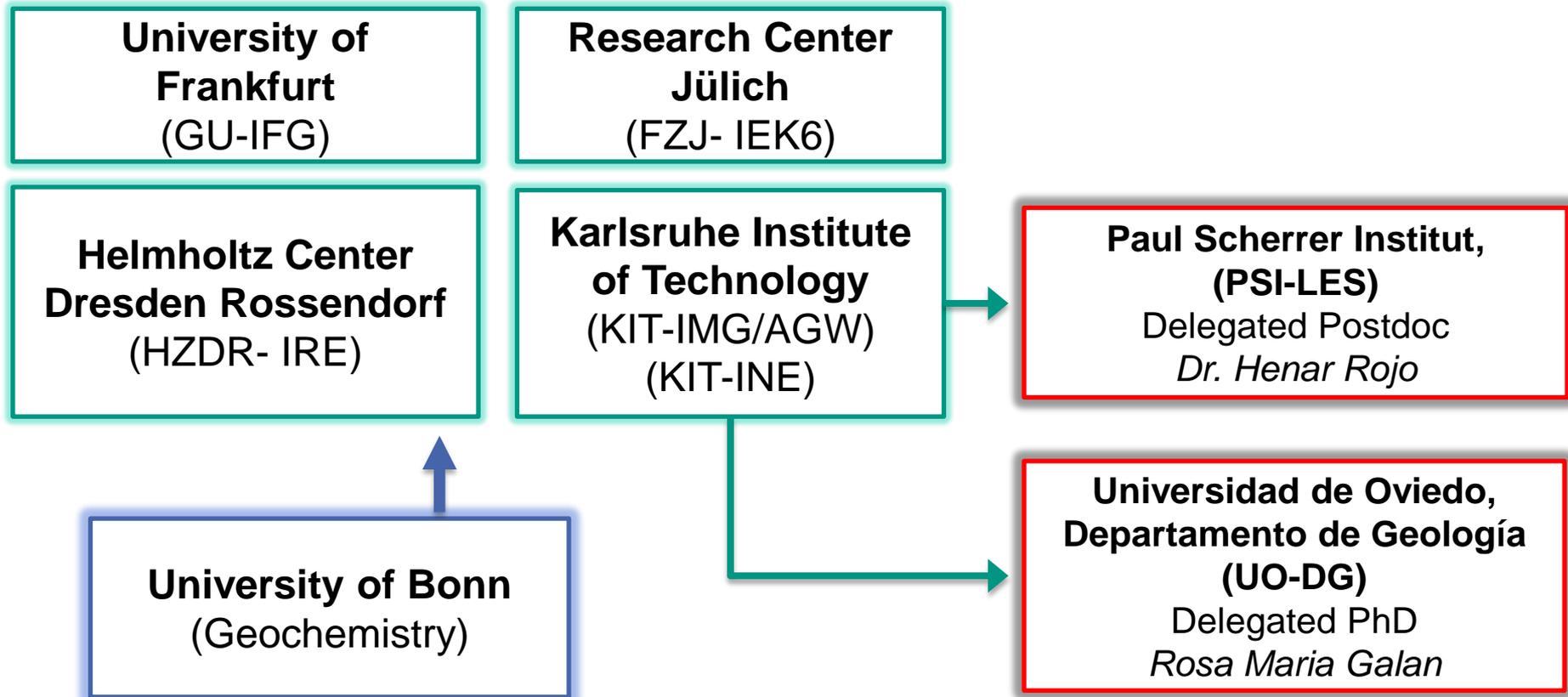
# Glass corrosion (AG Prof. Geisler-Wierwille)

## • New model for reaction mechanism

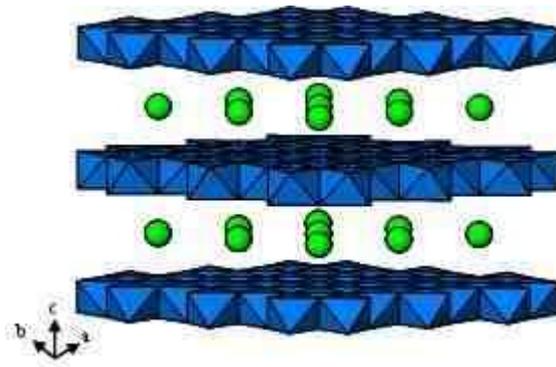
- Based on the **dissolution-precipitation model** (for crystalline materials)
- Interface controlled process:
  - **Congruent dissolution of glass**
  - **Precipitation of silica**
- Compared to diffusion controlled model advantage to explain observed non-linear phenomena like pattern formation.



# ImmoRad structure: LDH „consortium“



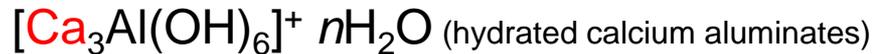
# Layered double hydroxides (LDHs)



## Structure

Brucite-like layers  
(octahedral coordinated  
cations) and interlayers  
(anions and water)

## AFm phases (CO<sub>3</sub>, SO<sub>4</sub>)

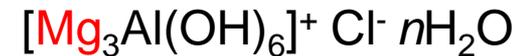


Se(IV) and Se(-II) + C-S-H

Is there immobilisation under the  
alkaline and reducing conditions  
existing in a cement-based repository?

Question  
addressed?

## LDH phases



Zr(IV) as a homologue for  
tetravalent actinides

Retention of AN(IV) by structural  
incorporation (solid solution)?

# Layered double hydroxides (LDHs):

PAUL SCHERRER INSTITUT



## Results

- $-230\text{mV} < E_h < -750\text{ mV}$ ,  
 $10.0 < \text{pH} < 13.5$
- The kinetics and isotherms with AFm phases gives a clear evidence for **anion-exchange** as the dominating sorption process for Se(IV) and Se(-II) onto AFm phases. EXAFS analysis allowed to study the solid speciation and Selenium redox state.

## Conclusion:

The results of these studies highlight the ability of the hydrocalumite-type **anion exchangers present in cementitious materials** to remove Se(IV) and Se(-II) from solution and thus to **reduce the mobility**.



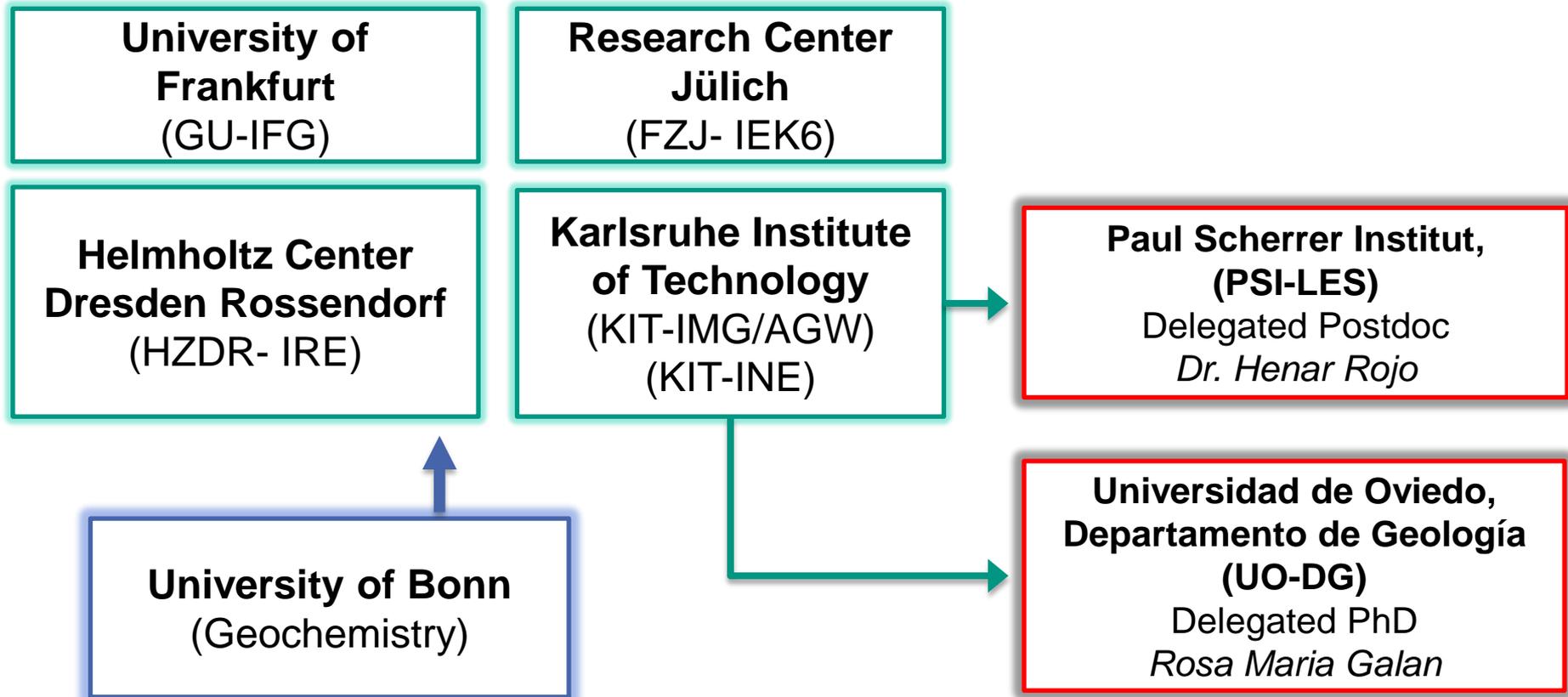
## Results

- **Structural incorporation of Zr(IV)** in MgAl-LDH was confirmed up to molar fraction of  $(\text{Zr}/(\text{Zr}+\text{Al}))=0.5$
- Zr(IV) is in octahedral position in brucite-layer and partly is in interlayer as  $\text{Zr}(\text{OH})_5^-$
- LDH stability decreased with Zr(IV) amount (increased the solubility)

## Standard Gibbs free energies:

- $G_f^\circ \sim -3619\text{ kJ/mol}$  ( $x=0$ )
- $G_f^\circ \sim -3500\text{ kJ/mol}$  ( $x=0.1$ )
- $G_f^\circ \sim -3075\text{ kJ/mol}$  ( $x=0.4$ )

# ImmoRad structure: Fe phase „consortium“



# Se retention

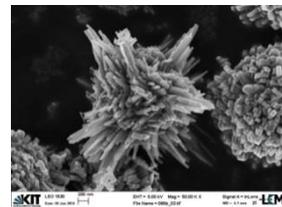
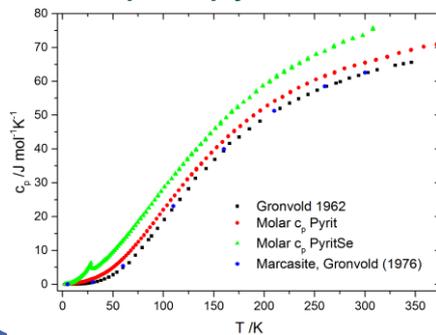
## Se(-II) retention on pyrite

### Aim

- Quantification of the Se retention during spontaneous pyrite precipitation (Structural, morphological and stability information of Se-doted pyrites)

### Results:

- Pure Se-doted pyrite phases detected by XRD and Raman
- Se-II uptake up to 99.9 % from solution
- Se incorporation in pyrite up to 2.4 wt.%
- Surface species: Se-II (under reducing conditions)
- Se-doped pyrite has higher heat capacity



Grain size: 1 - 2  $\mu\text{m}$ ;  
 $A_{\text{BET}}$ : 7,1  $\pm$  0,3  $\text{m}^2/\text{g}$

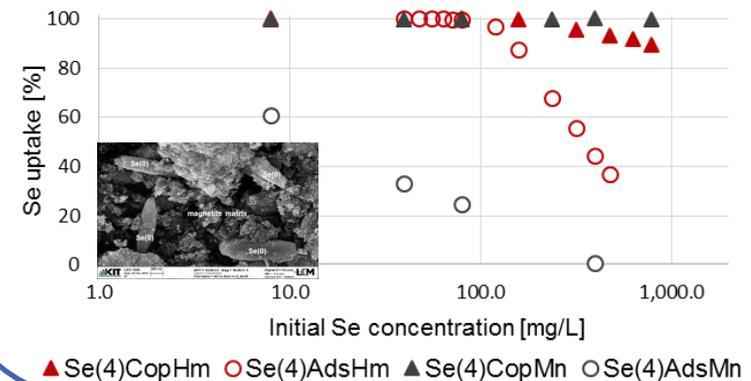
## Se(IV) retention on hematite & magnetite

### Aim

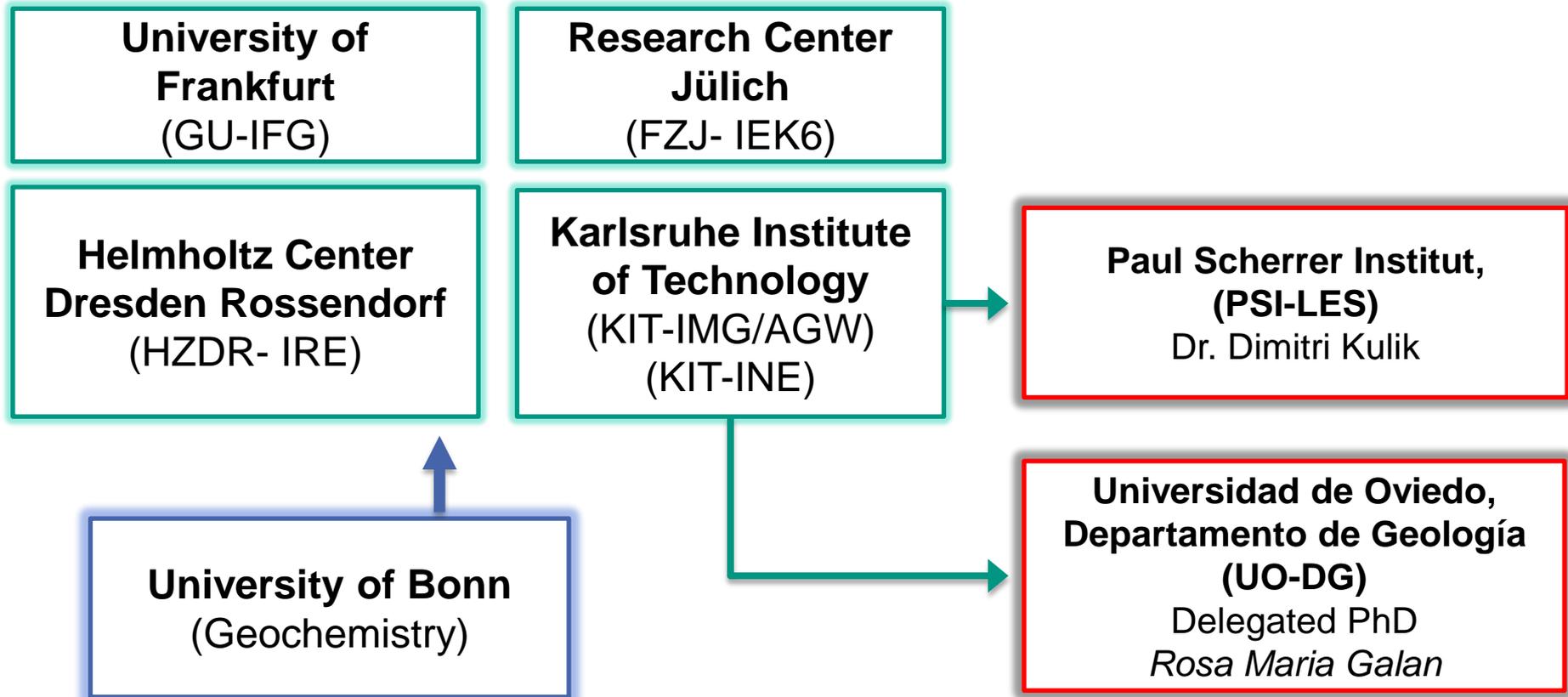
- Comparison of the Se(IV) retention processes: co-precipitation (Cop) vs. adsorption (Ads); Identification of the mechanisms

### Results:

- Co-precipitation (Cop) dominates the Se retention
- Hematite: Occlusion of adsorbed Se(IV)
- Magnetite: Reduction of Se(IV) and precipitation of Se(0)



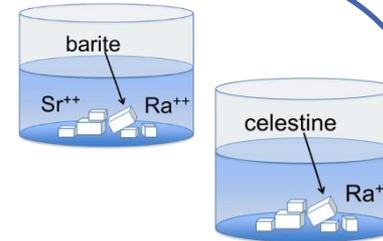
# ImmoRad structure: Sulfate phase „consortium“



## Ra/Pb retention on barite, celestite

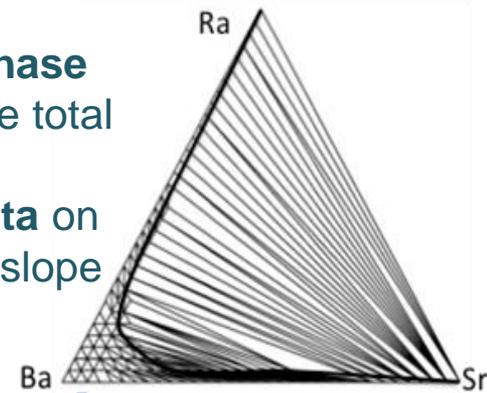
### Aim

- Determination of the effect of Sr on the effectiveness of Ra retention in the system  $(\text{Ba,Sr,Ra})\text{SO}_4$



### Results (FZJ, Univ. Frankfurt, PSI-LES):

- In re-crystallization experiments **pure barite in the presence of a trace amount of Ra and of higher Sr concentration** in the aqueous solution
- **Pure celestine in the presence of a trace amount of Ra**
- Atomistic simulations of the mixing properties in the ternary solid solution; Calculated interaction parameters increase in the row:  $W_{\text{BaRa}} = 2.4$ ,  $W_{\text{BaSr}} = 8.4$  and  $W_{\text{SrRa}} = 20.0$  kJ/mol.
- The **thermodynamic calculations with the GEM-Selector code** showed that the **mole fraction of  $\text{RaSO}_4$  in the  $(\text{Ba,Sr,Ra})\text{SO}_4$  phase could increase dramatically at high Sr/Ba ratios**, even when the total amount of Ra in the system is small.
- This **prediction is entirely consistent with the experimental data** on re-crystallization of celestine and with the predicted change in the slope of the tie lines within the ternary gap.



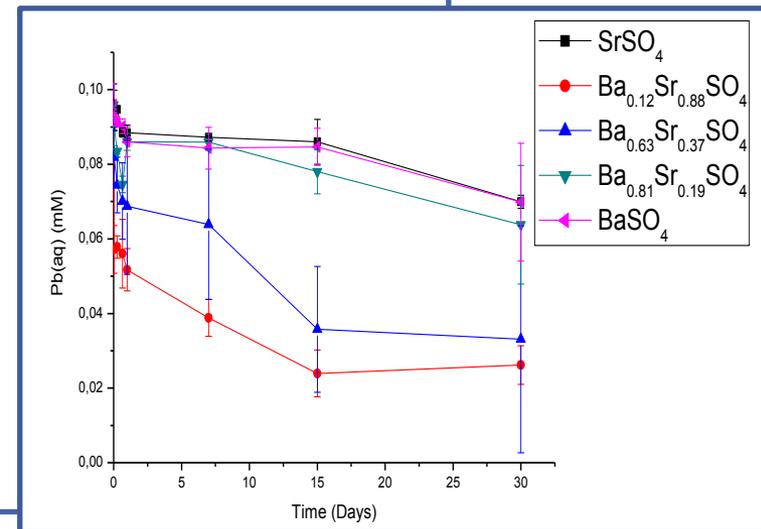
## Ra/Pb retention on barite, celestite

### Aim

- Determination of the effect uptake of  $\text{Pb}^{2+}(\text{aq})$  by barite- celestite solid-solution crystals:

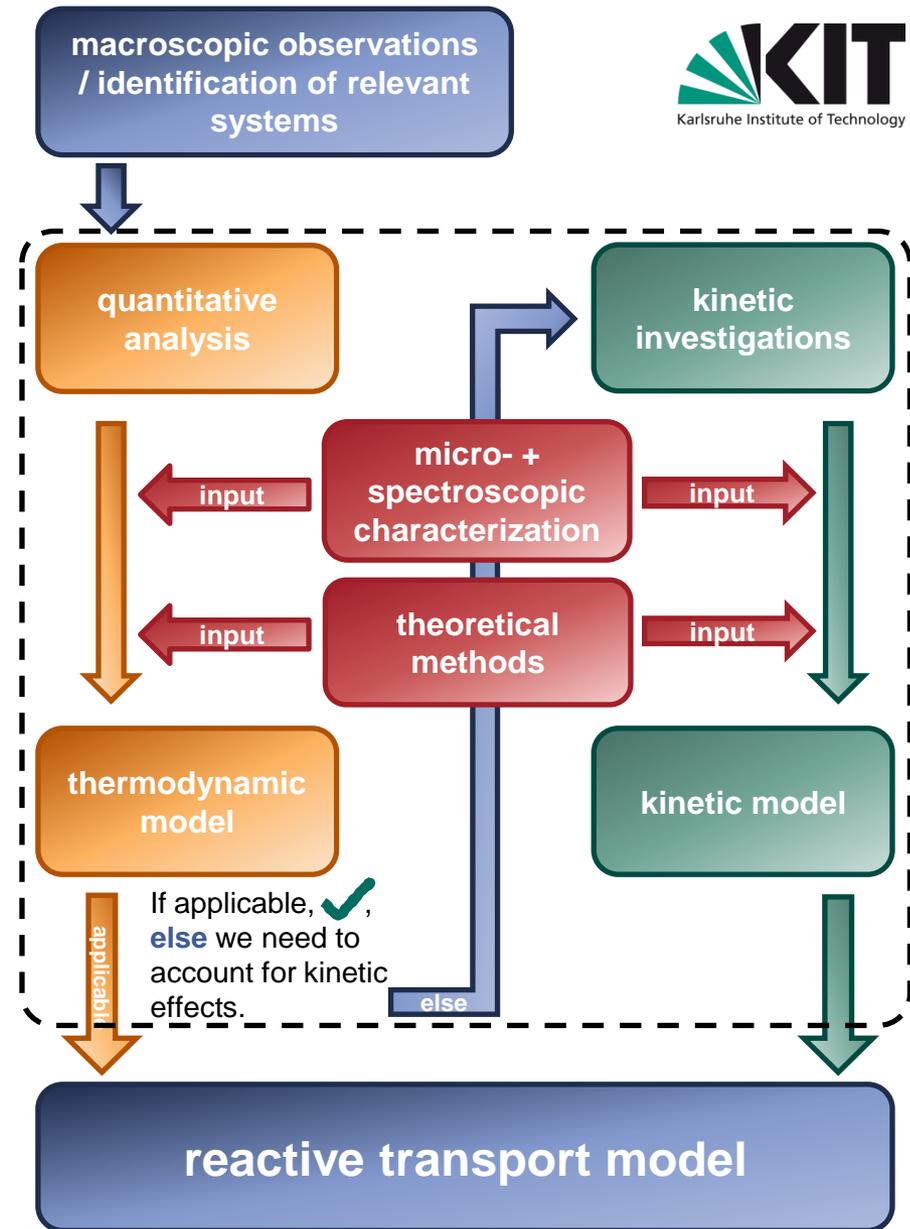
### Results (Univ. Oviedo):

- $\text{BaSO}_4$ ,  $\text{SrSO}_4$  and intermediate members of the  $\text{Ba,Sr}(\text{SO}_4)$  were synthesized and made to react with lead-rich solutions.
- Binary solid solutions are more efficient than host phases removing lead from the aqueous medium, especially for those with a larger portion of strontium
- The results remark the non-ideal character of the  $(\text{Ba,Pb})\text{SO}_4$  solid solutions and the tendency to develop an asymmetric miscibility gap
- It follows that the **decrease in the concentration of dissolved  $\text{Ra}^{2+}$  could be considerably higher using Pb-bearing barite solids instead of pure barite.**



# What have we learned from Immorad so far?

- A lot of work was performed focusing on **spectroscopic and structural studies**. To answer specific questions the **use of state of the art methods** is still **essential**.
- During recent years **substantial progress** was made in the field of **thermodynamic model development** especially thanks to the application of advanced theoretical methods. **However, for most systems the knowledge is still insufficient.**
- For some systems (e.g. calcite, barite, celestine/ strontianite) **relevant kinetic effects were identified** that **impede straight forward application of thermodynamic models**. **Correspondingly, kinetic investigations become essential.**



Profile

People

Publications

Partner Institutes

Meetings/ Conferences

## Welcome to ImmoRad!

In April 2012 a new research project was started to perform "Basic investigations on the immobilisation of long-lived radionuclides by interaction with secondary mineral phases". The joint project involves partners in Germany, Switzerland and Spain and is sponsored by the German Federal Ministry of Education and Research.

## Final Meeting and GEMS Workshop in 04/2015



Dr. Frank Heberling

+49 721 608-24782

[frank.heberling@kit.edu](mailto:frank.heberling@kit.edu)

### Contact

Sascha Hofmann

Institute for Nuclear Waste

Disposal (KIT-INE)

[E-Mail](#)

For more information, visit: [www.immorad.eu](http://www.immorad.eu)  
**Final workshop @ PSI-LES: currently 25 participants**  
**23.-24.04.2015**  
**20.-22.03.2015 GEMS-course by Dimitri Kulik**



# Young researchers involved in ImmoRad

## ■ Diploma students: 1

- Lars Dohmen, (Rainer Ehrhardt) (Uni Bonn)

## ■ Bachelor students/ Master students: 2/2

- Alba Lozano (KIT-INE), Eugenia Gref (Uni Bonn)
- Alexander Zickgraf (KIT-IMG), Eric W. Fischer (KIT-IMG)

## ■ PhD students: 7

- Siriwan Dulnee (only temporarily) HZDR
- Sascha Hofmann (KIT-INE/HZDR)
- Rosa María Rodríguez-Galan, Louis Temgoua (KIT-INE)
- Nicolas Börsig (KIT-IMG)
- Sebastian Potsch (KIT-IMG)
- Christoph Lenting (Uni Bonn)

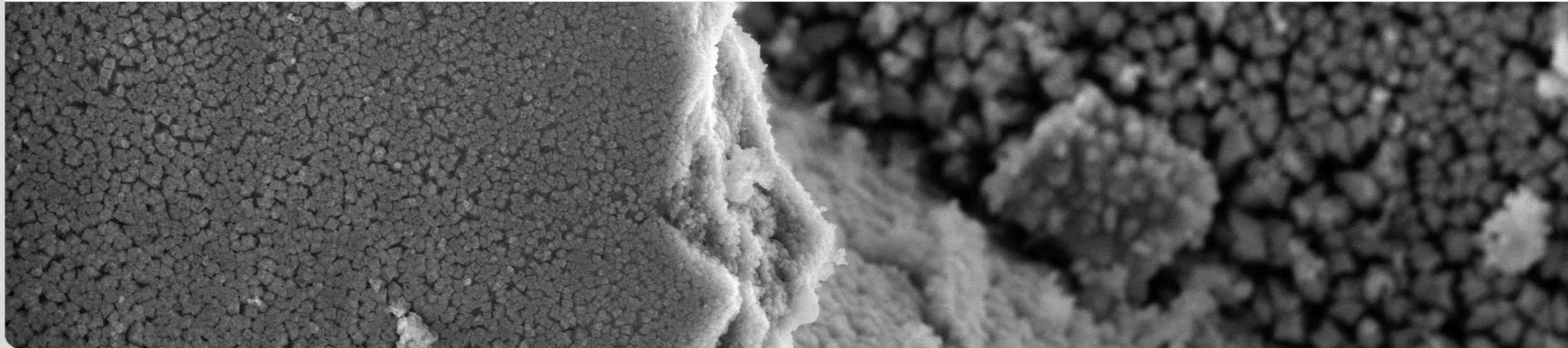
## ■ PostDocs: 4

- Thomas Dumas (until 12/2012) HZDR
- Robin Steudtner (since 1/2013) HZDR
- Henar Rojo (KIT-INE)
- Johannes Bauer (Univ. Frankfurt)

# Der Einfluss endlagerrelevanter Elektrolyte auf die Wechselwirkungen dreiwertiger Lanthanide und Actinide mit Calcit

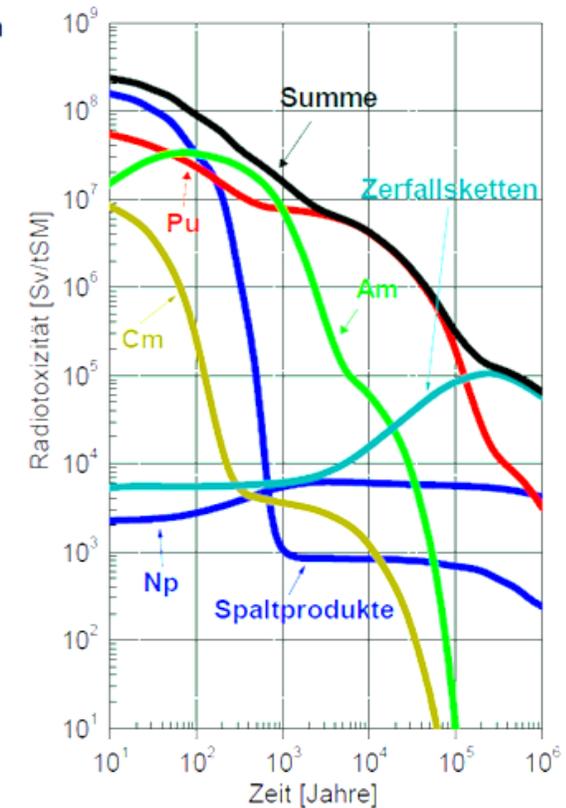
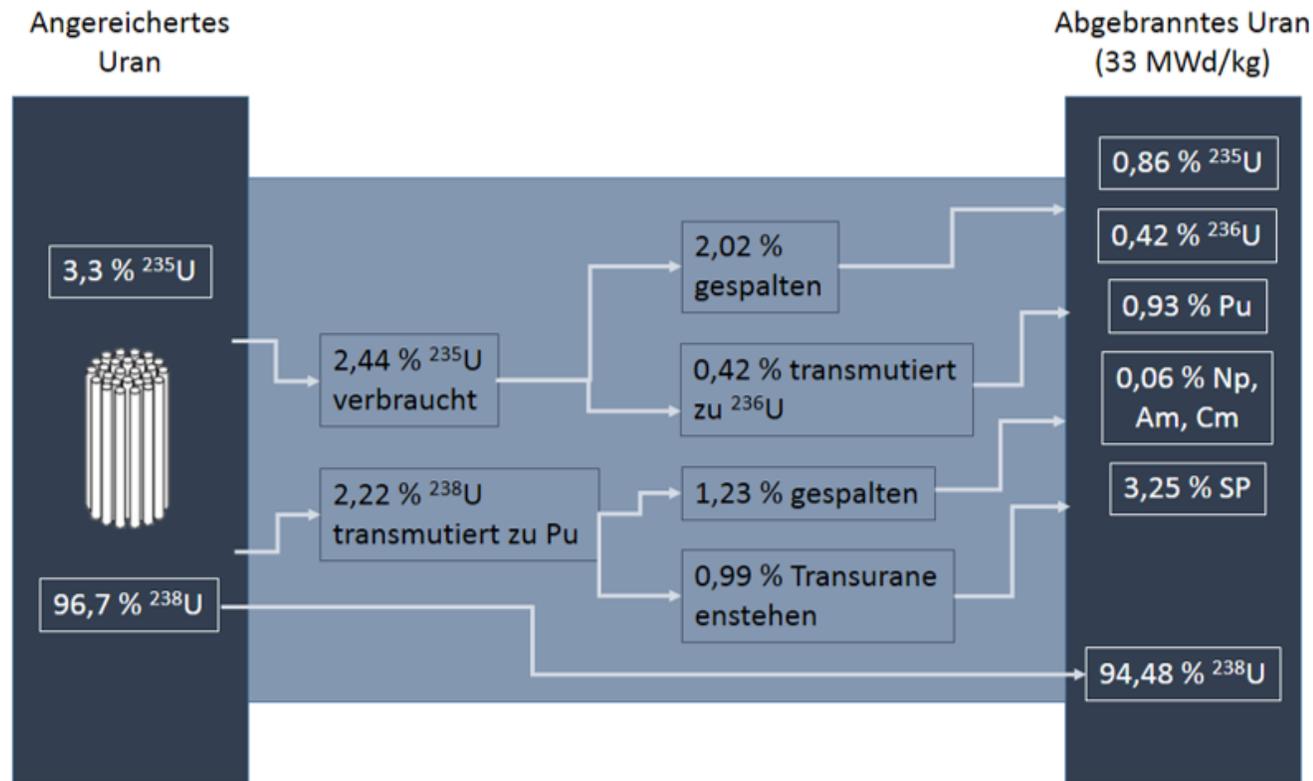
Doktorarbeit – Sascha Hofmann

Institut für Nukleare Entsorgung (INE)

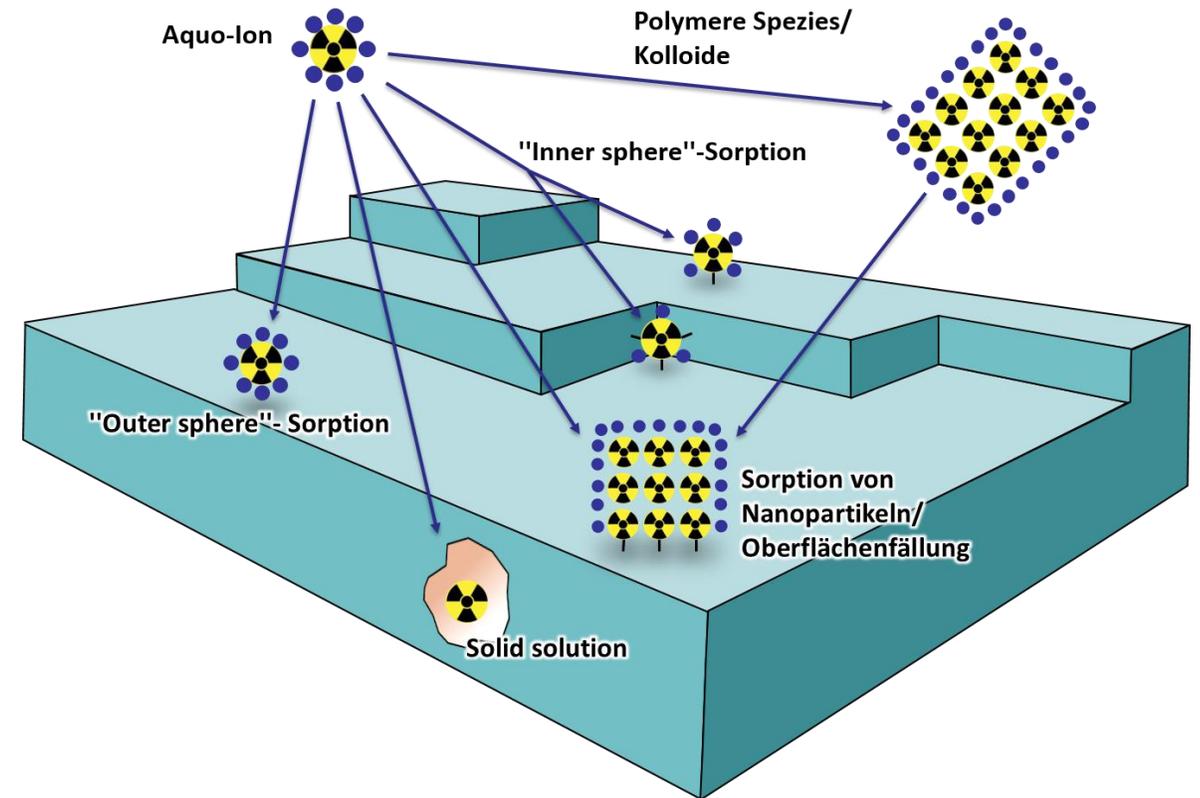
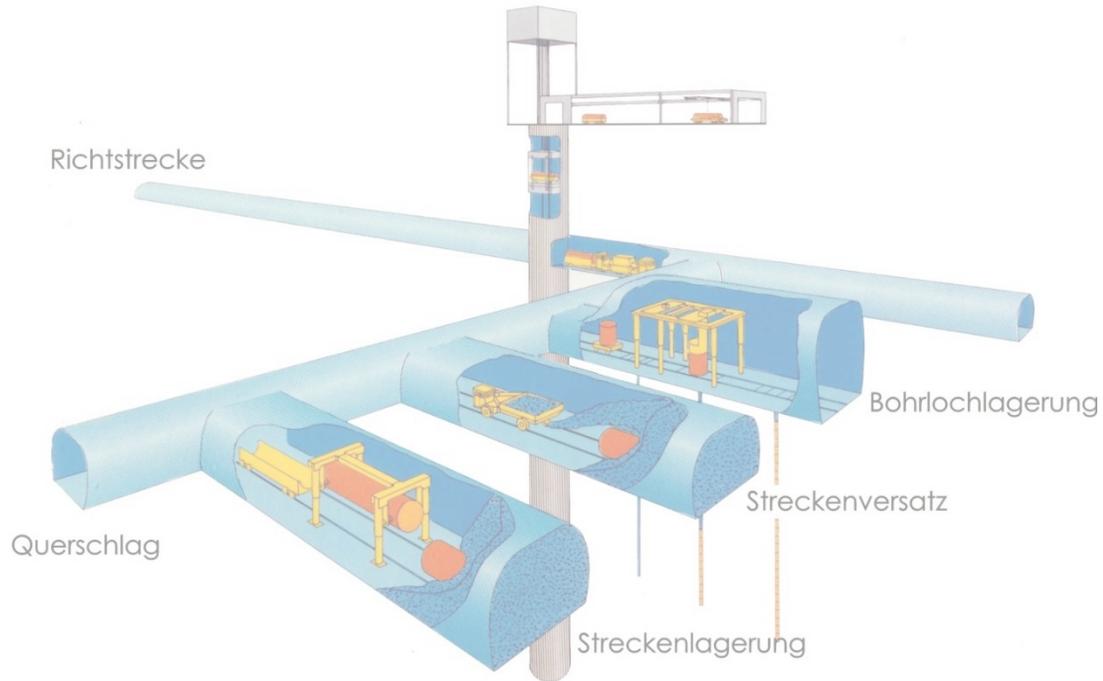


- Motivation und Einführung
- Die Sekundärphase Calcit
- Untersuchungen von Einbaureaktionen mit Hilfe der Fluoreszenzspektroskopie
- Oberflächenreaktionen und -modifikationen
- Die elektronische Struktur der Calcitoberfläche in Lösung
- Zusammenfassung

# Motivation und Einführung



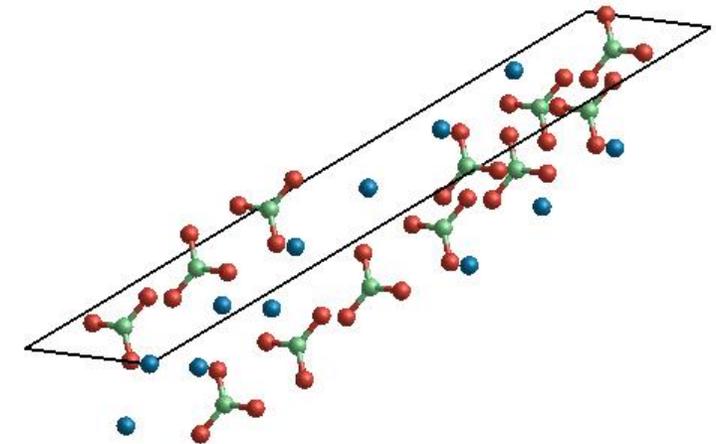
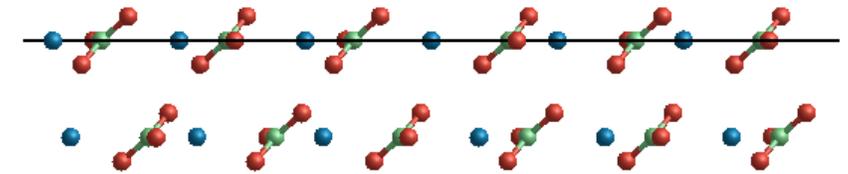
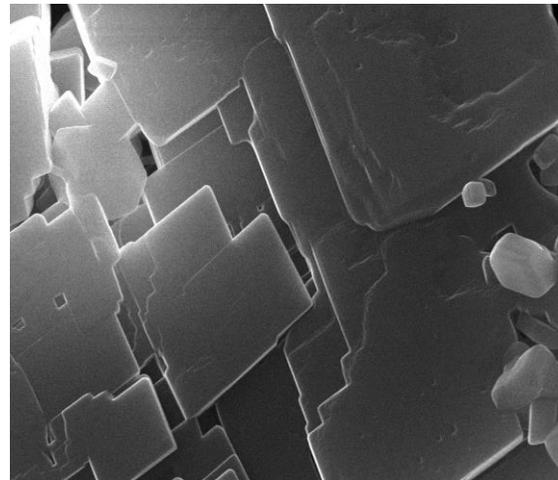
# Motivation und Einführung



# Die Sekundärphase Calcit

Calcit stellt die thermodynamisch stabilste  $\text{CaCO}_3$ -Modifikation dar.

- Koordinationszahl: 6
- Kristallsystem: Trigonal

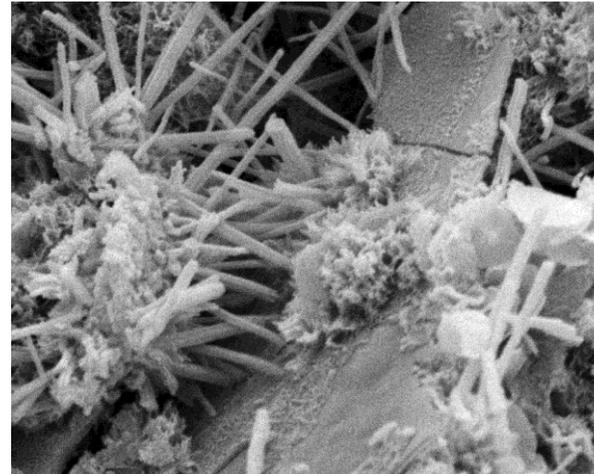


<https://www.mineralienatlas.de/lexikon/index.php/MineralData?mineral=Calcit>

# Die Sekundärphase Calcit

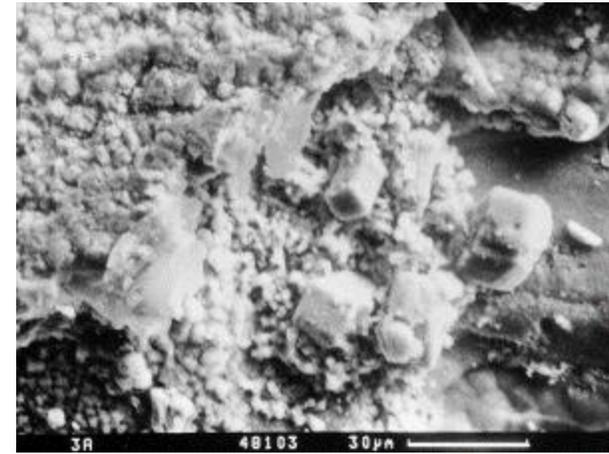
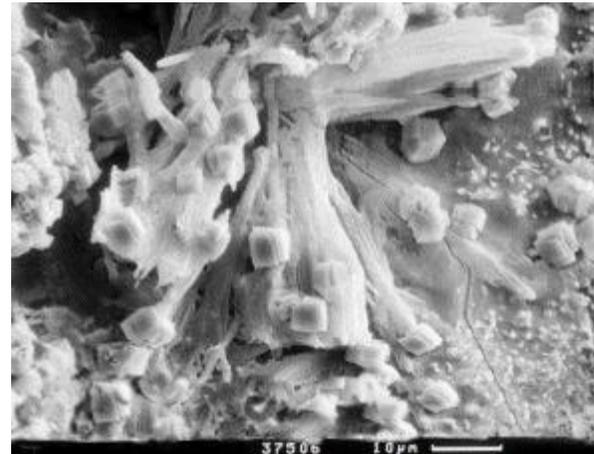
## Calcitbildung aus Zementmaterialien

Foto: Jim Margeson, NRC-IRC  
<http://www.cementlab.com/cement-art.htm>



## Calcitbildung aus Betonmaterialien

Foto: V. Vávra, P. Sulovský  
<http://petrol.sci.muni.cz/eng/technolology/thaumasite/intro.htm>

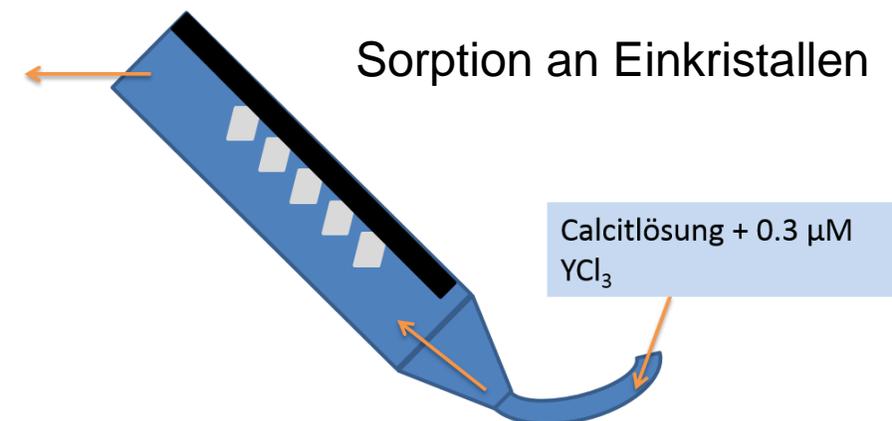


# Die Sekundärphase Calcit – Experimentelle Ansätze

## Gleichgewichtsexperimente (Batch)

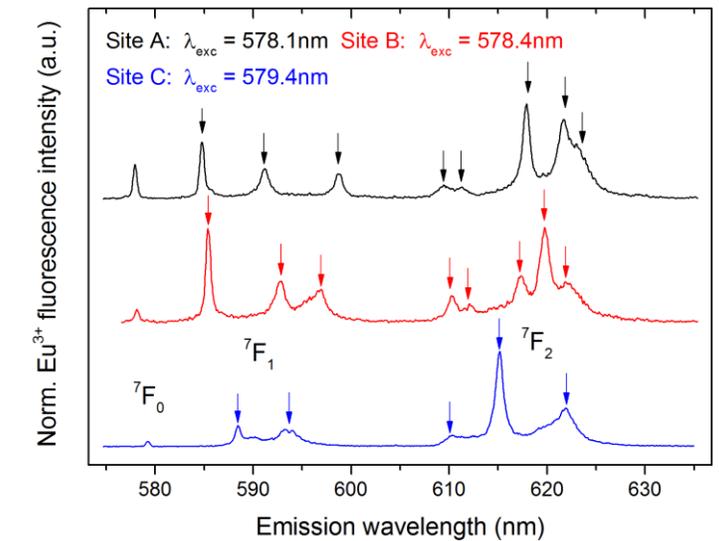
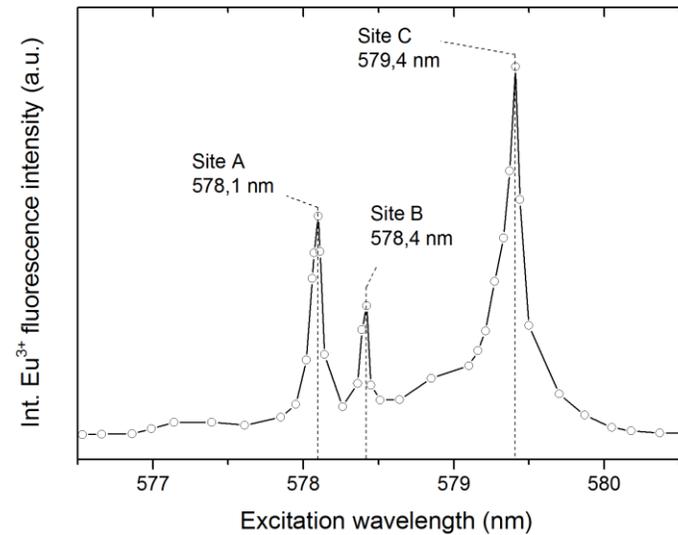
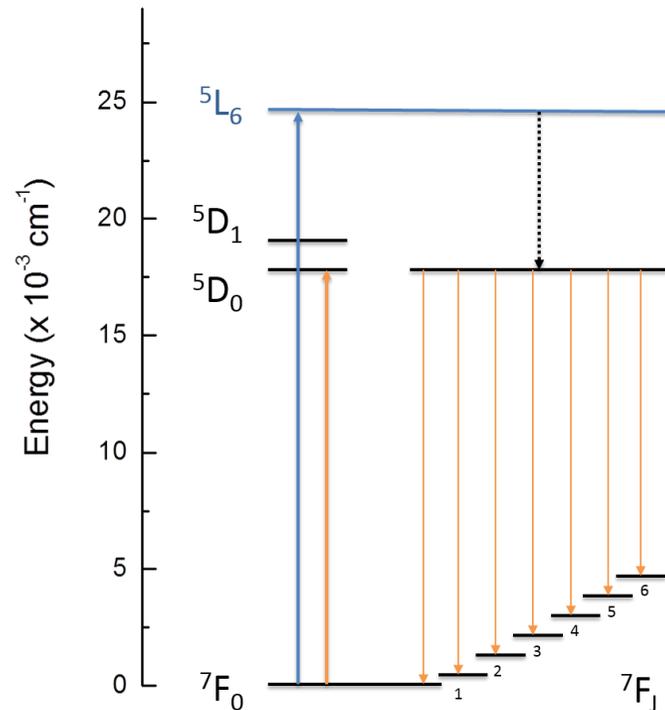
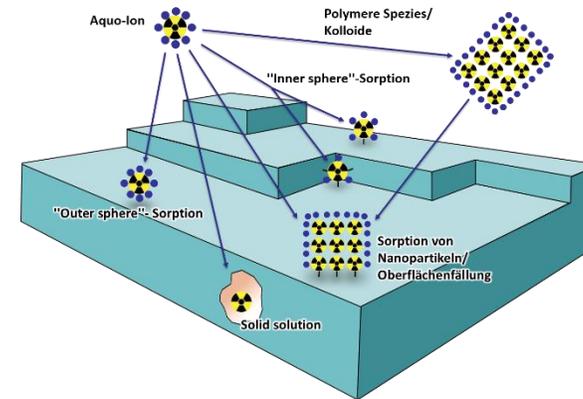


## Wachstumsexperimente im Durchflussreaktor

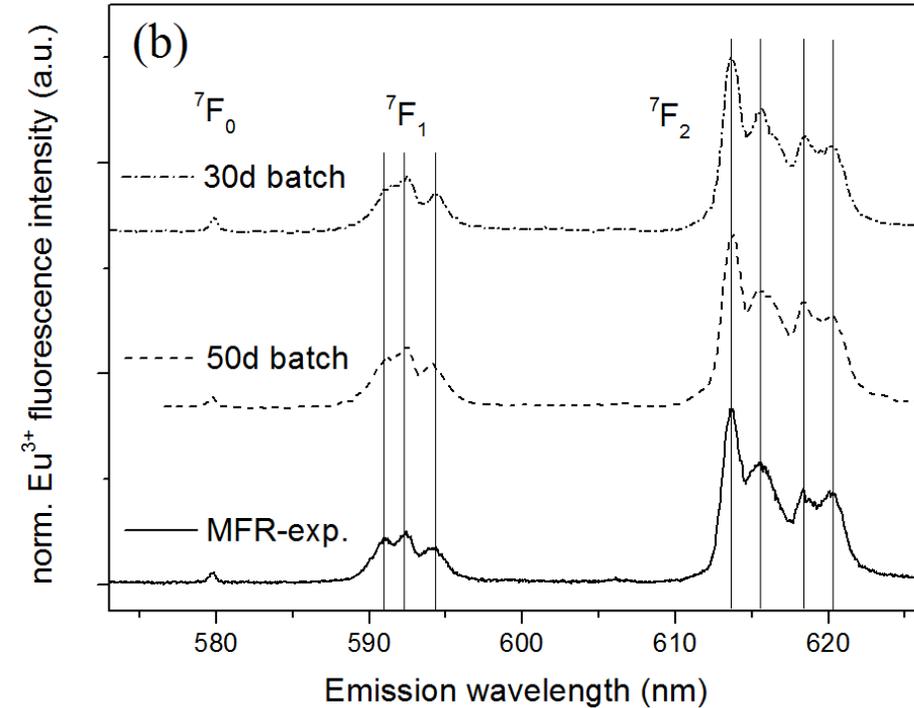
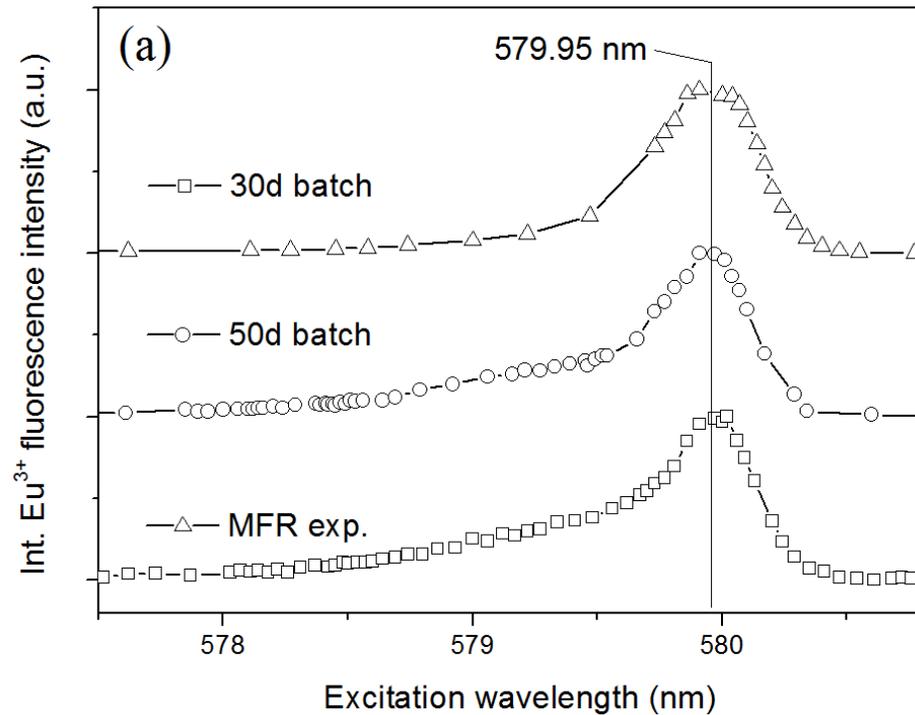


# Untersuchungen von Einbaureaktionen mit Hilfe der Fluoreszenzspektroskopie (Eu<sup>3+</sup>)

Indirekte Anregung bei 394 nm  
 Direkte Anregung bei 575-583 nm

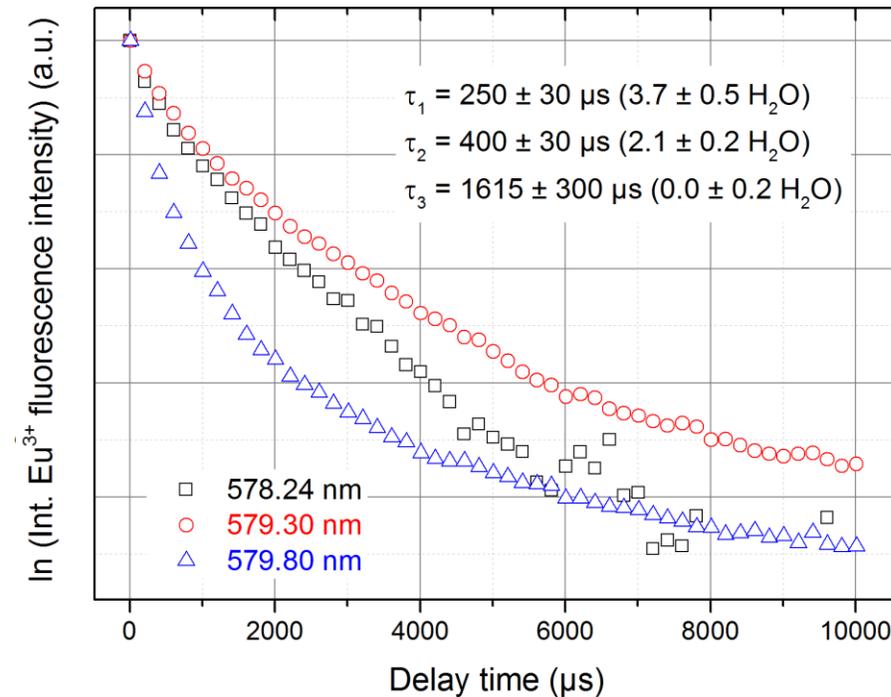
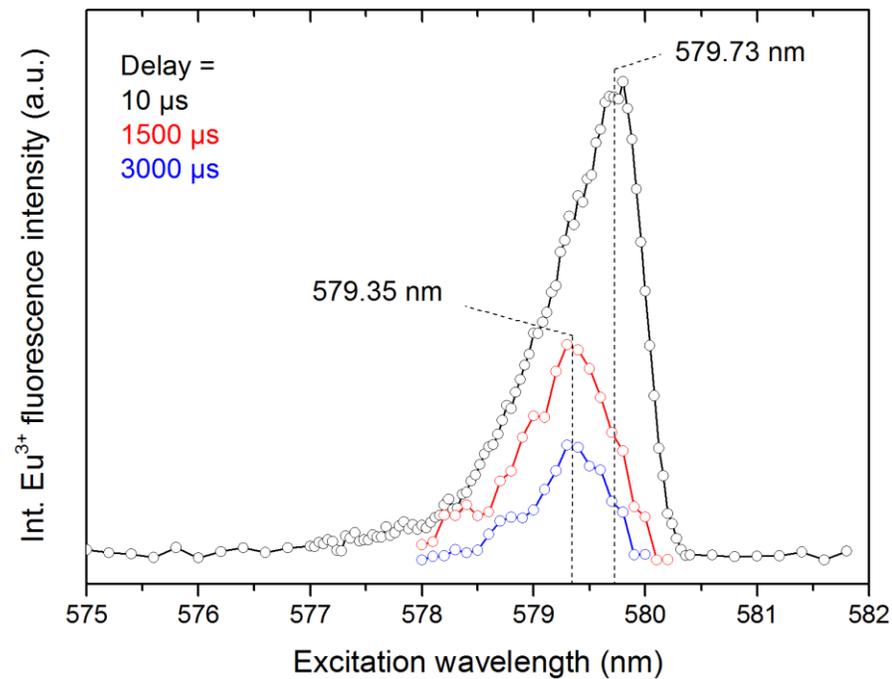


# Untersuchungen von Einbaureaktionen mit Hilfe der Fluoreszenzspektroskopie ( $\text{NaNO}_3$ )



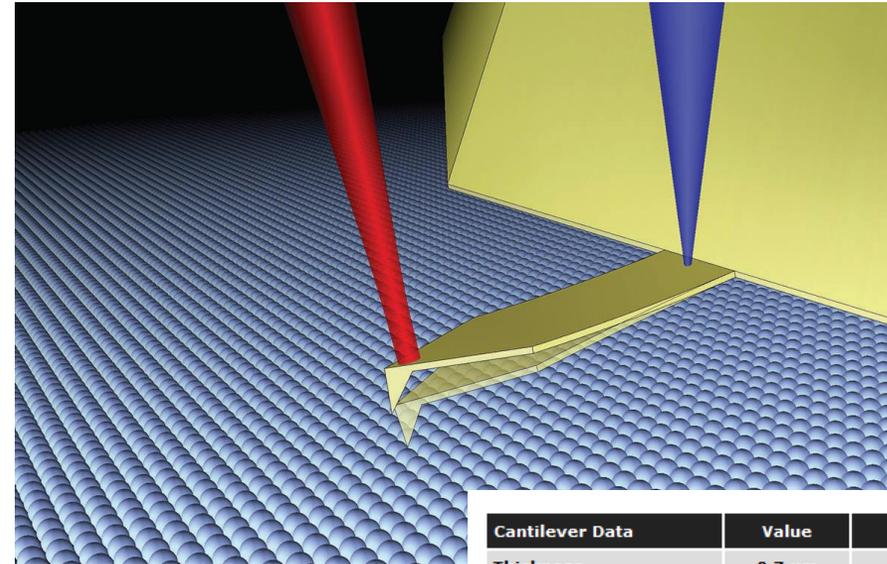
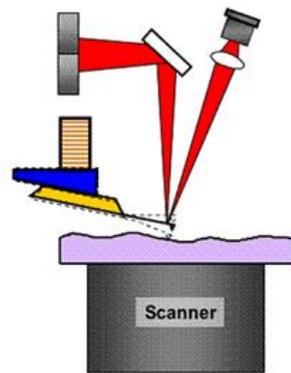
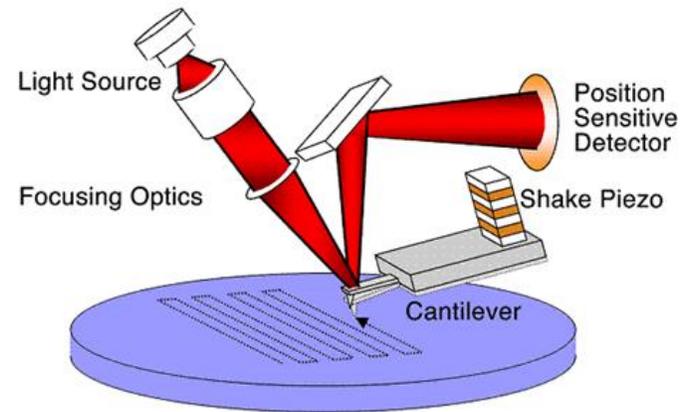
# Untersuchungen von Einbaureaktionen mit Hilfe der Fluoreszenzspektroskopie

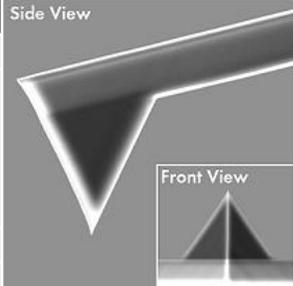
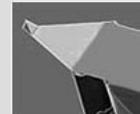
Wachstumsexperiment in simuliertem Grundwasser



# Oberflächenreaktionen und –modifikationen

## Atomic Force Microscopy (AFM)



Cantilever Data	Value	Range*	Side View
Thickness	0.7 $\mu\text{m}$	0.5 - 0.9	
Cantilever Geometry			
			
Force Constant	-	-	Front View
Resonance Frequency	2000 kHz	700 - 2000	

# Oberflächenreaktionen und –modifikationen

AFM-Messungen in Kooperation mit K. Voitchovsky



ÉCOLE POLYTECHNIQUE  
FÉDÉRALE DE LAUSANNE

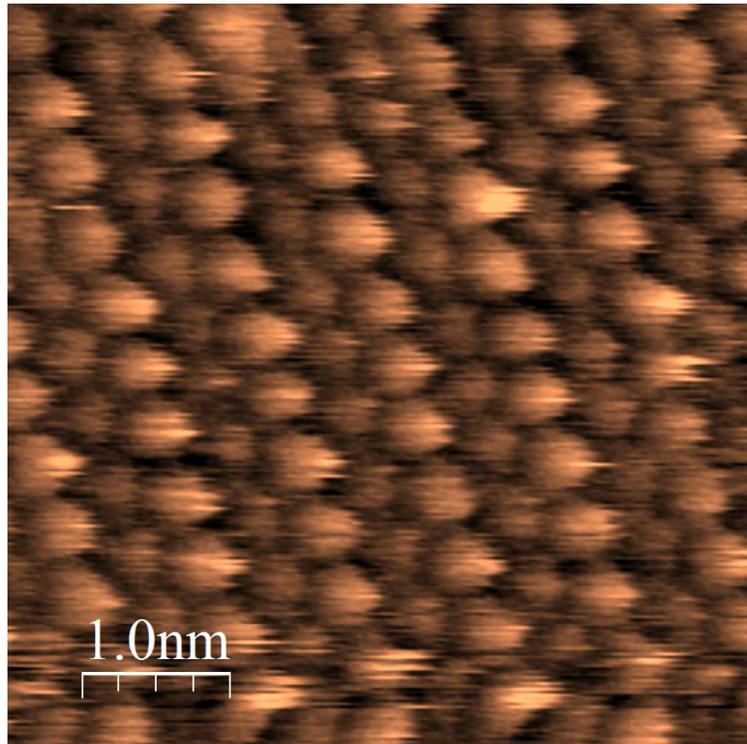


Durham  
University

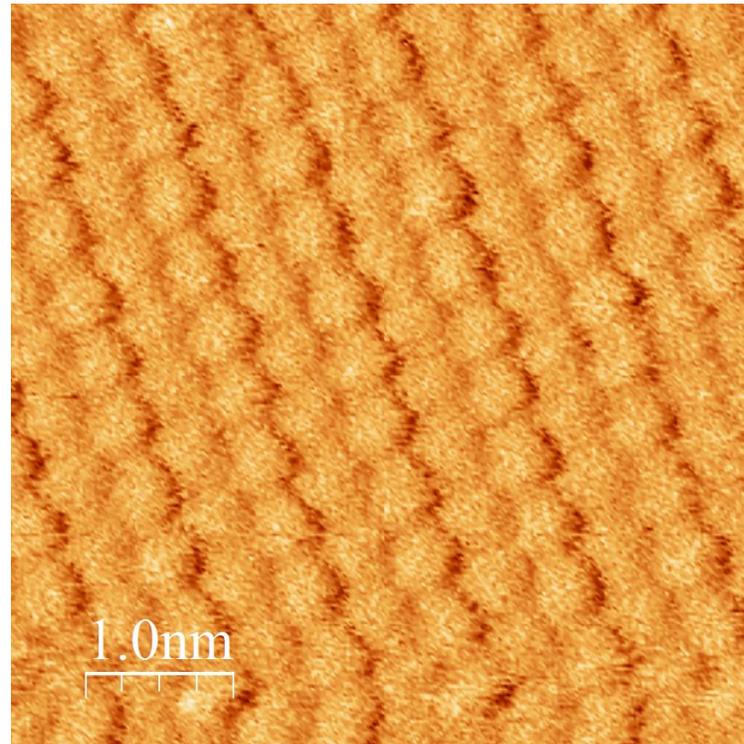


# Oberflächenreaktionen und -modifikationen

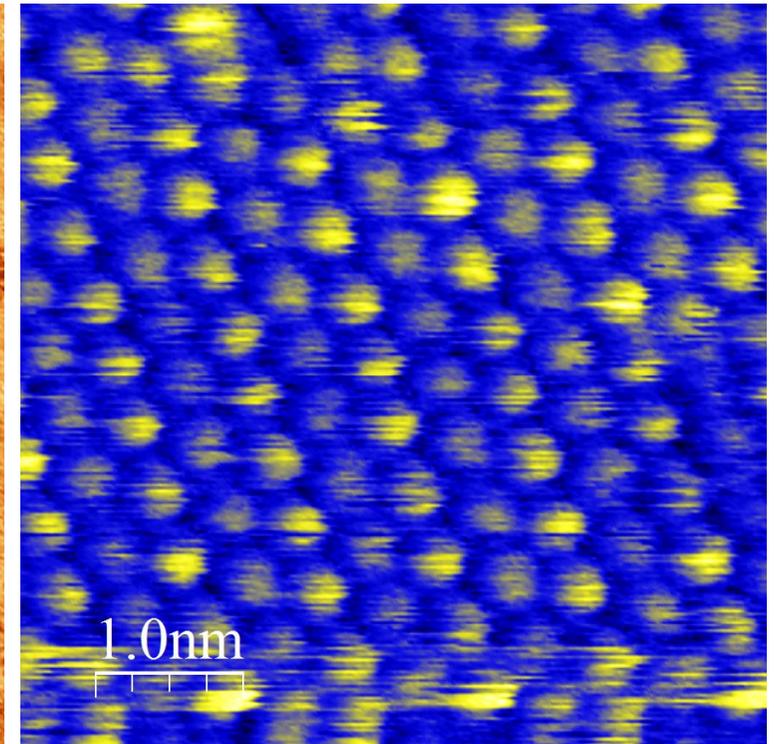
Topografie



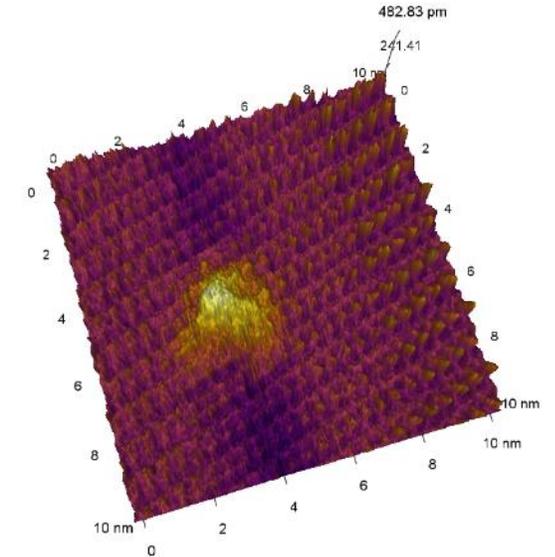
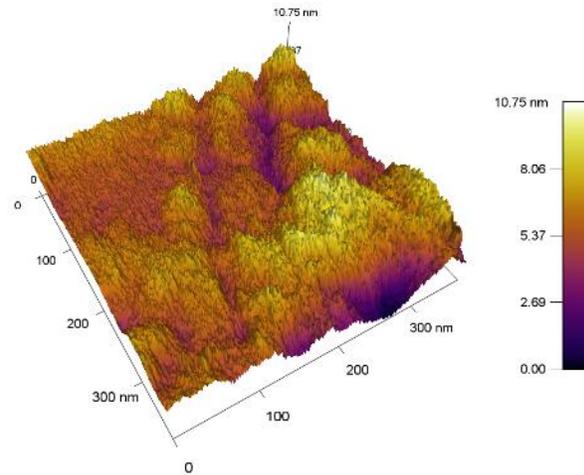
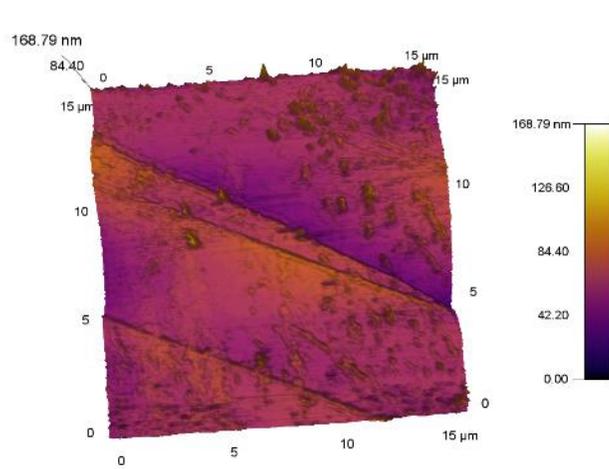
Amplitude



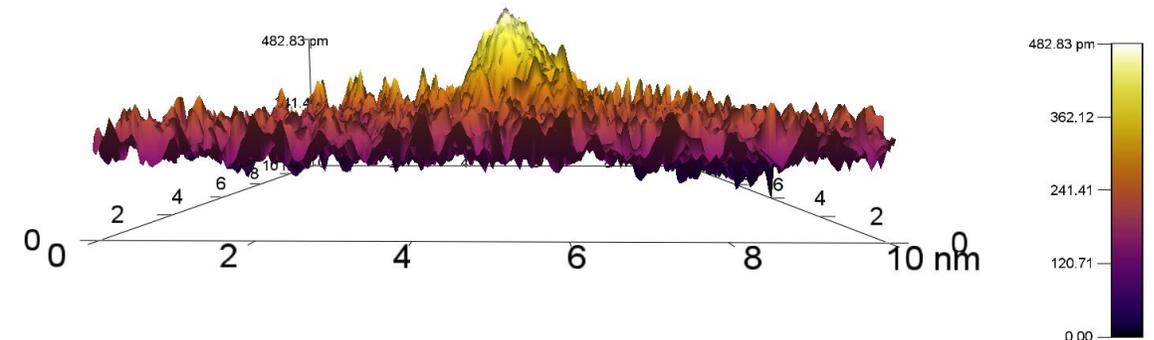
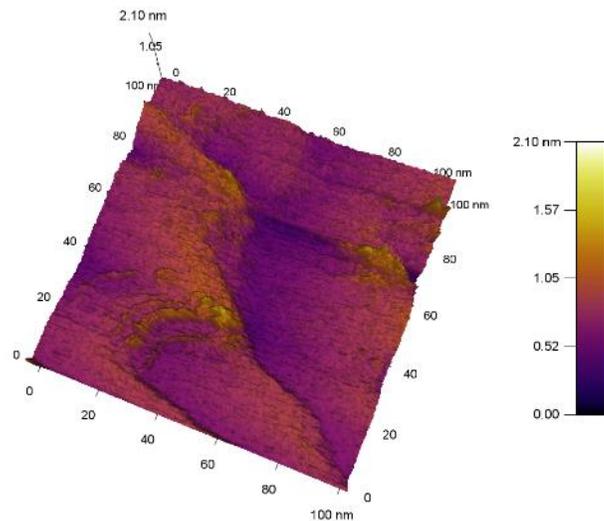
Phase



# Oberflächenreaktionen und -modifikationen ( $\text{NaNO}_3$ )



- Partielle Auflösung der Oberfläche (v.a. Kanten)
- Amorpher Oberflächenfilm
- Destabilisierung der Oberfläche

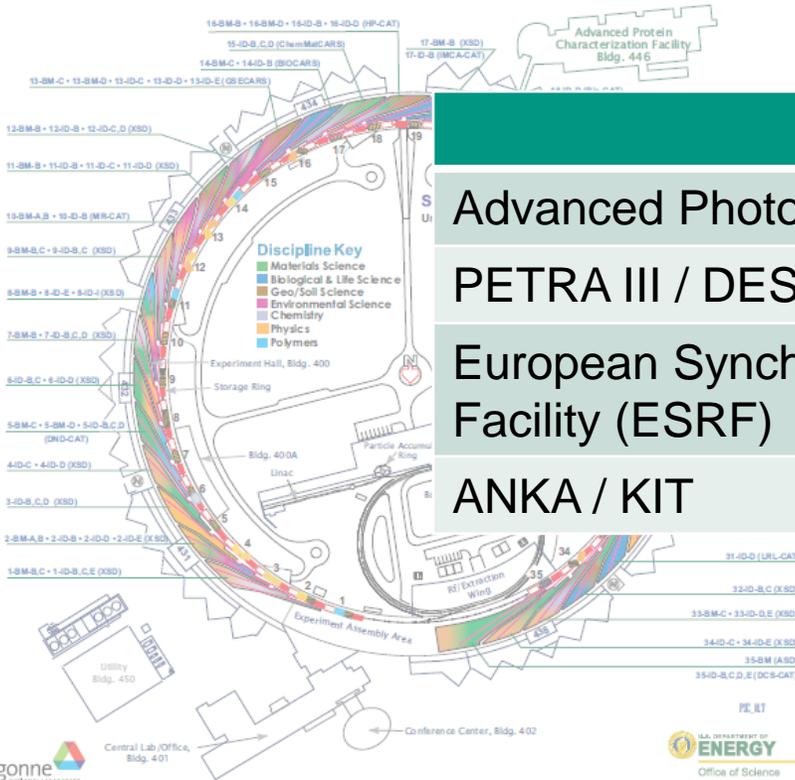
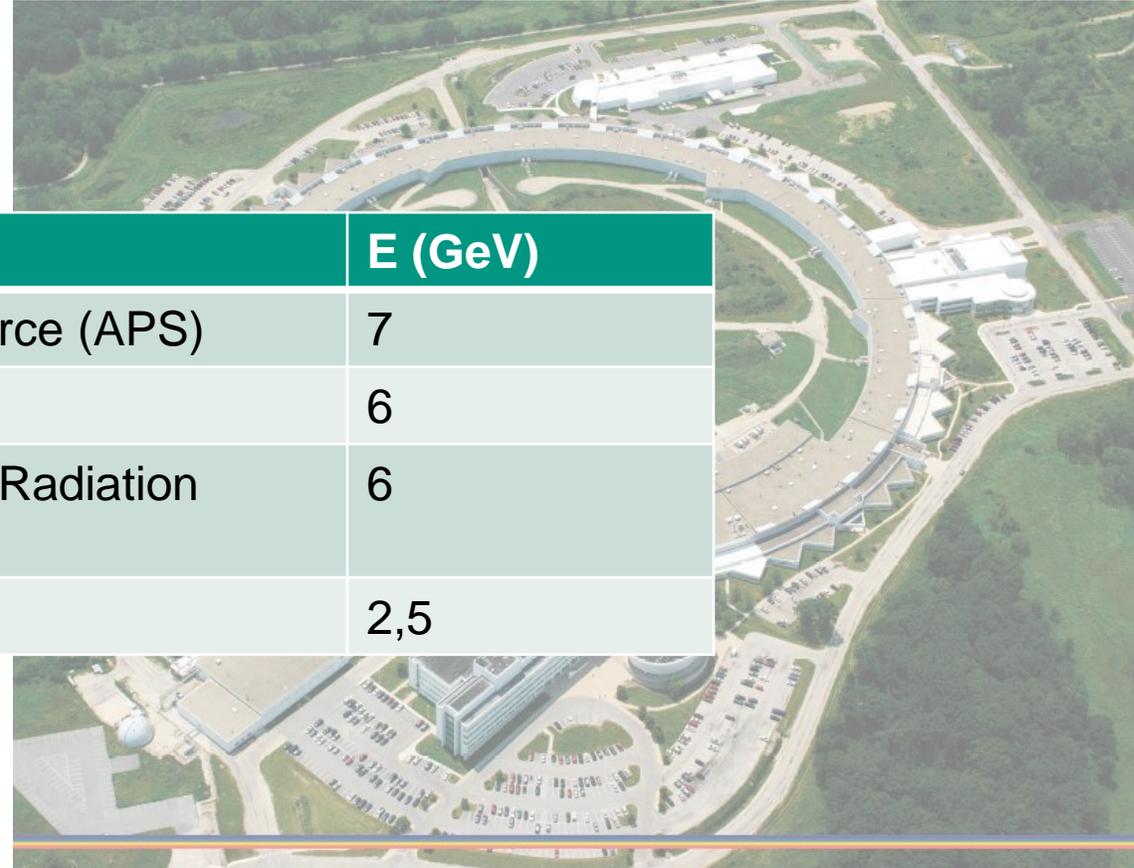


# Die elektronische Struktur der Calcitoberfläche in Lösung

## ARGONNE NATIONAL LABORATORY 400-AREA FACILITIES

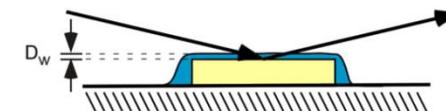
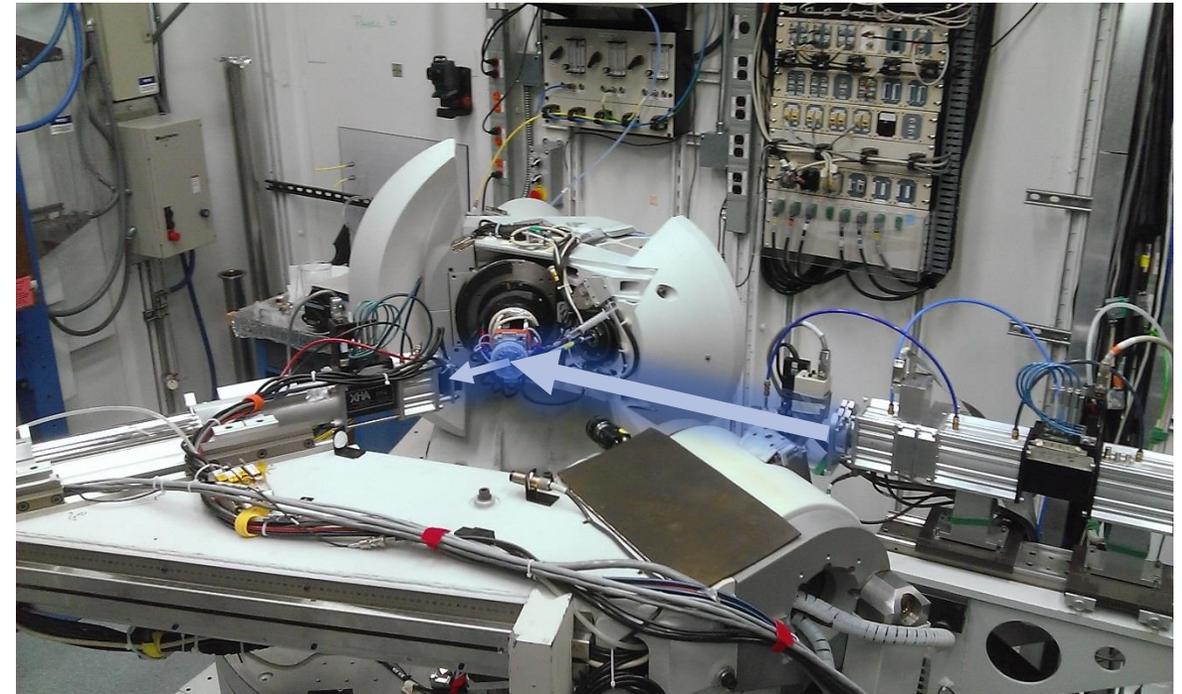
ADVANCED PHOTON SOURCE  
(Beamlines, Disciplines, and Source Configuration)

ADVANCED PROTEIN CHARACTERIZATION FACILITY  
CENTER FOR NANOSCALE MATERIALS

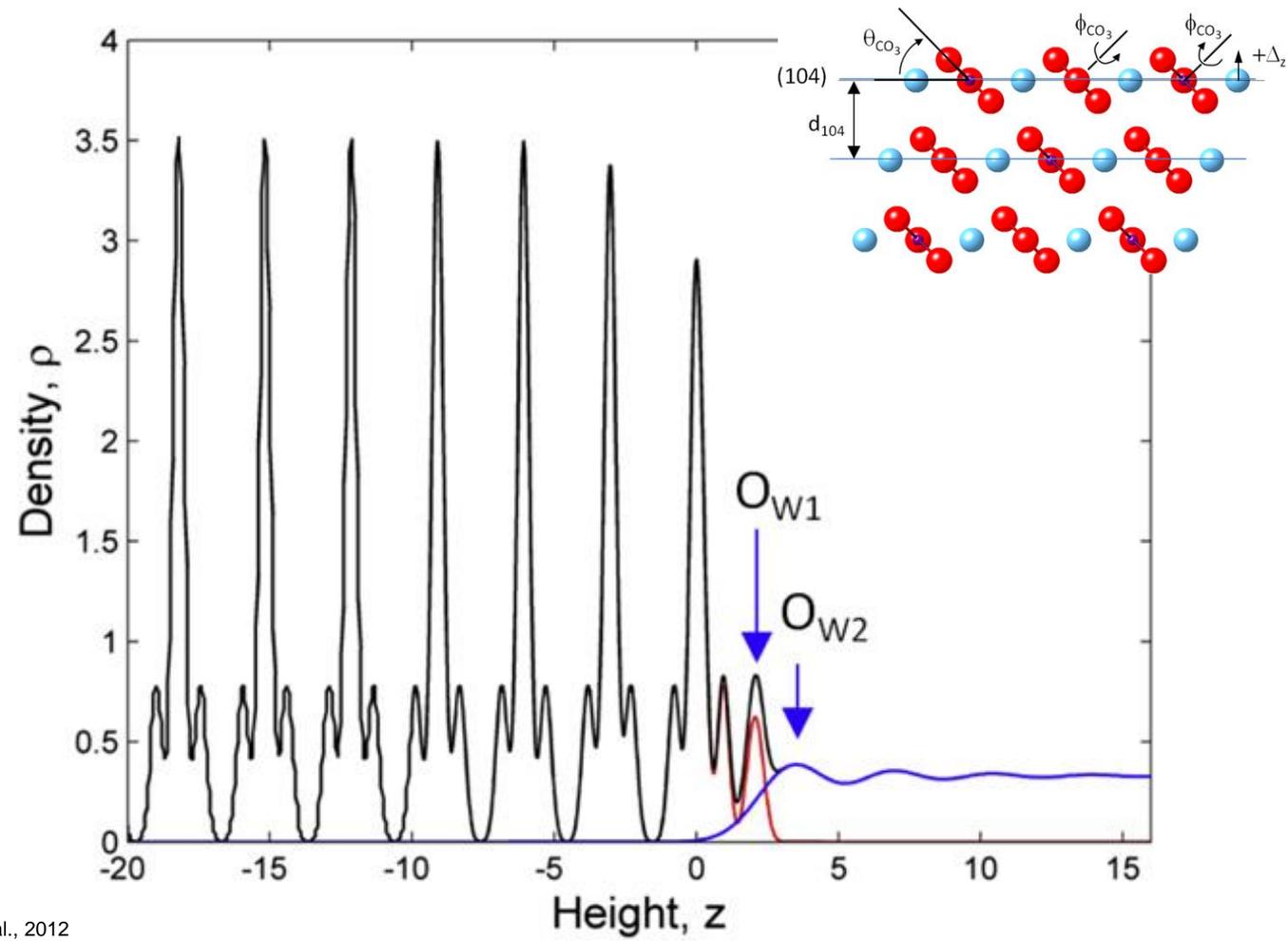


	E (GeV)
Advanced Photon Source (APS)	7
PETRA III / DESY	6
European Synchrotron Radiation Facility (ESRF)	6
ANKA / KIT	2,5

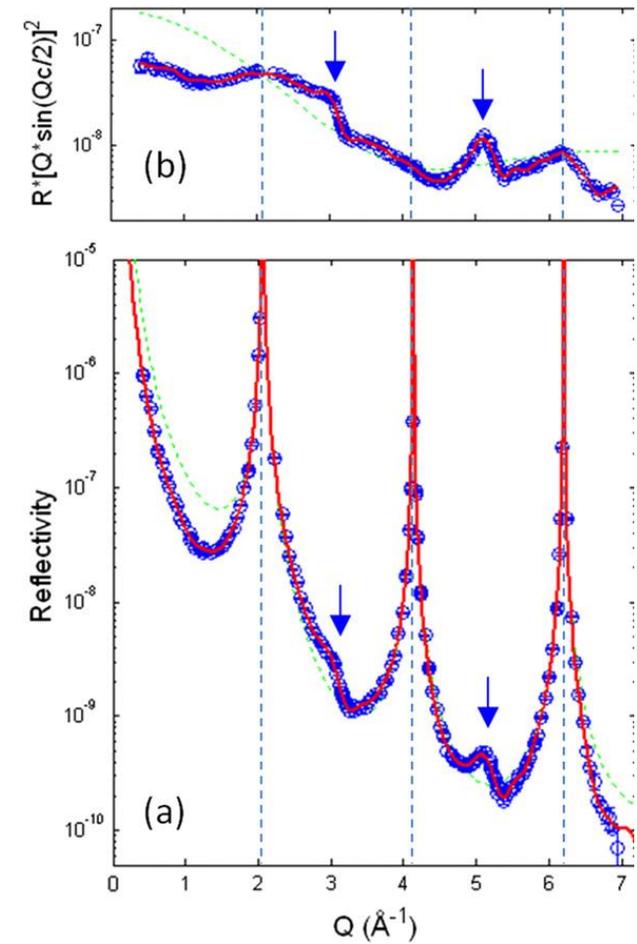
# Die elektronische Struktur der Calcitoberfläche in Lösung



# Die elektronische Struktur der Calcitoberfläche in Lösung

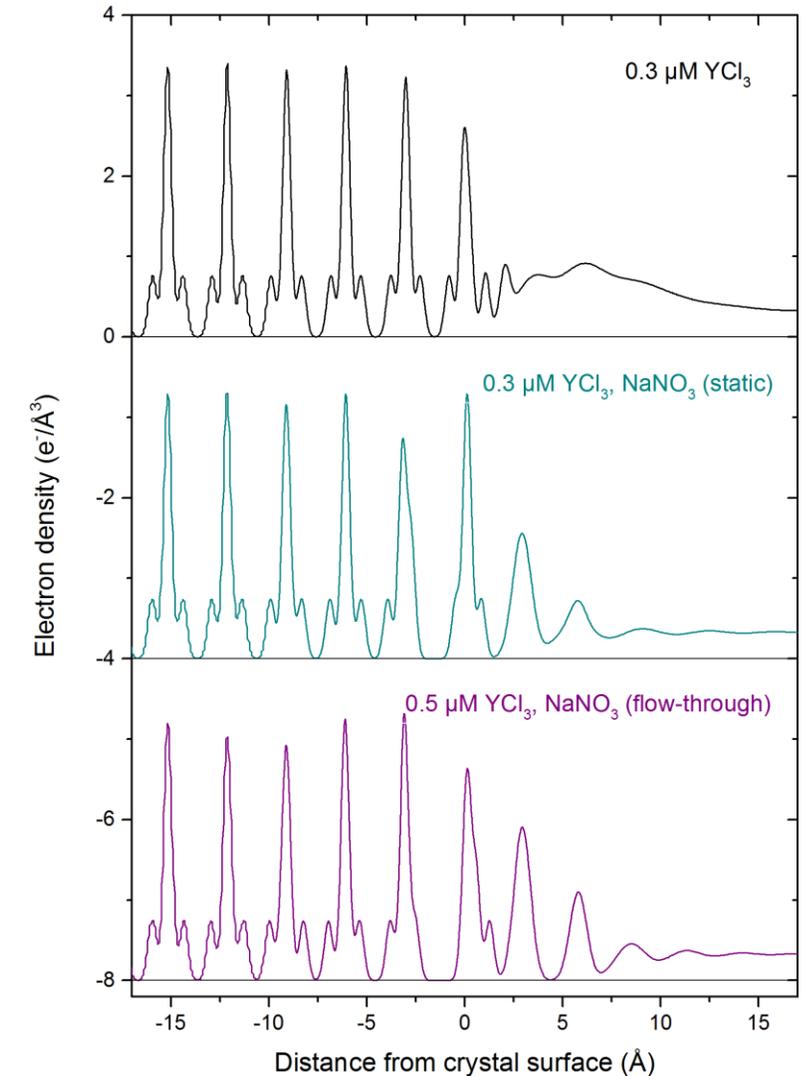
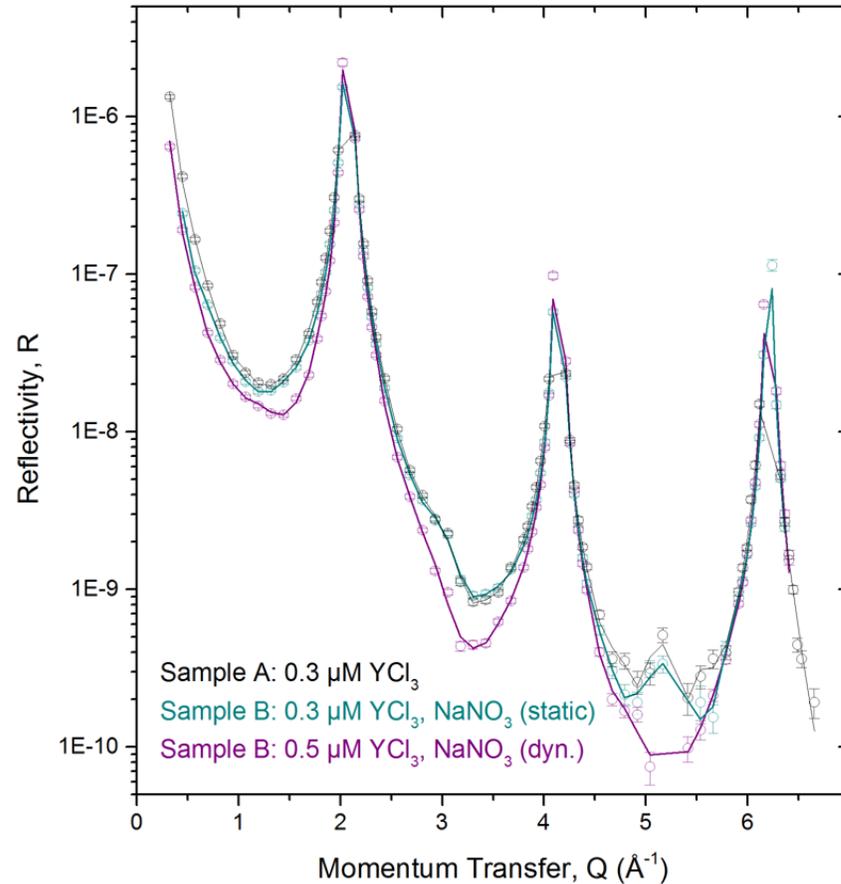


Fenter et al., 2012



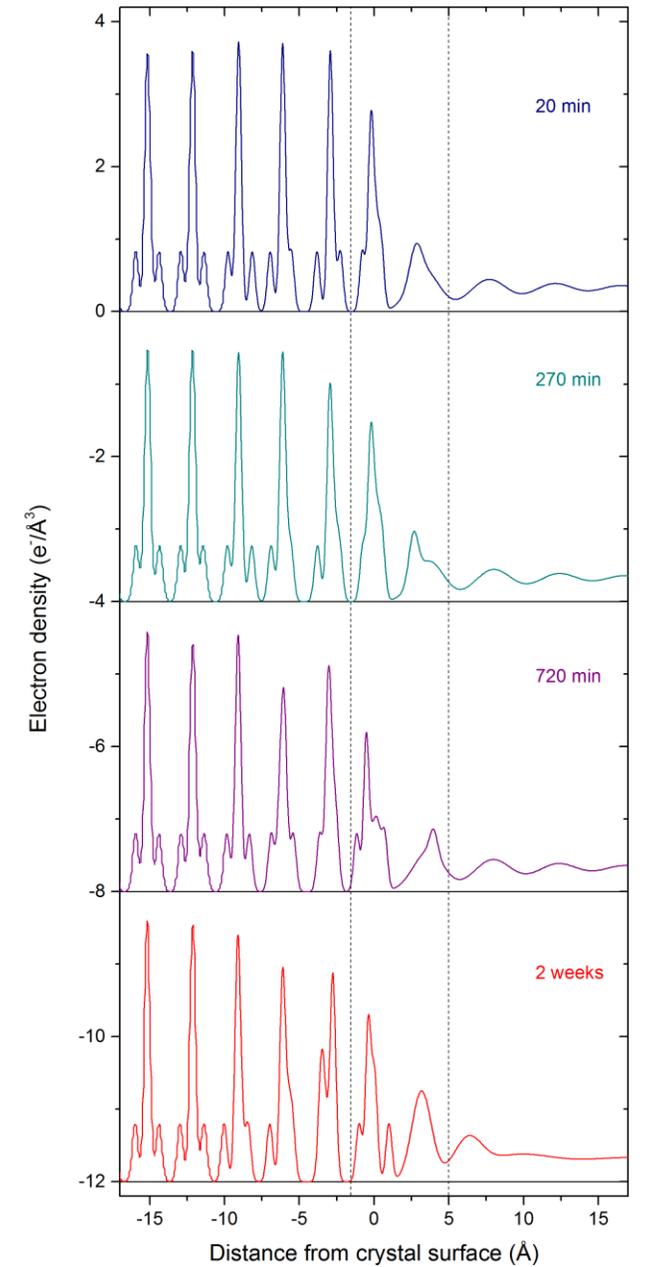
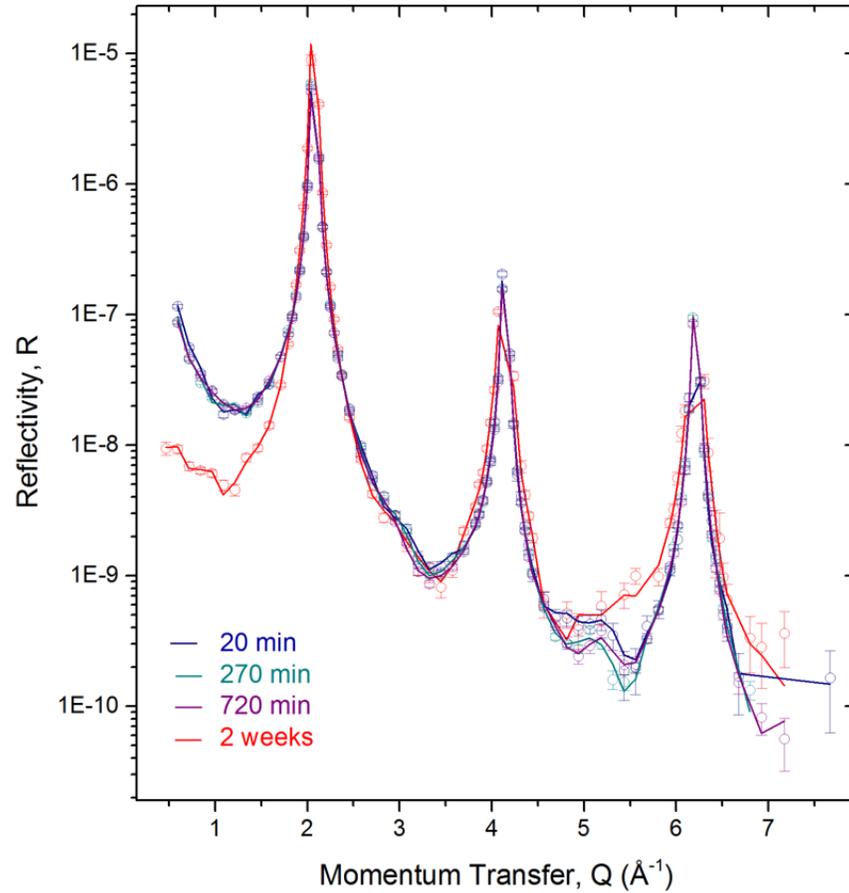
# Die elektronische Struktur der Calcitoberfläche in Lösung

Sorption von  $Y^{3+}$  an der Calcit(104)-Oberfläche (mit und ohne  $NaNO_3$ )



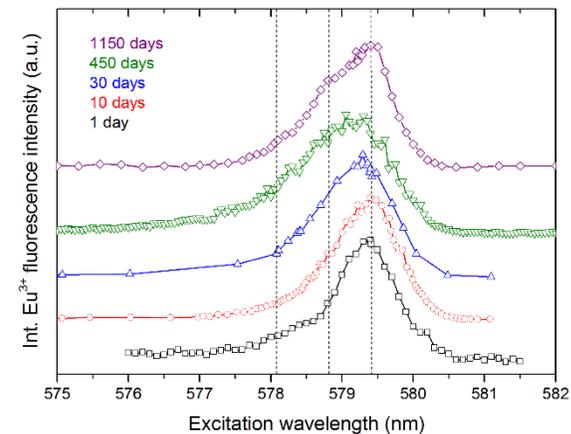
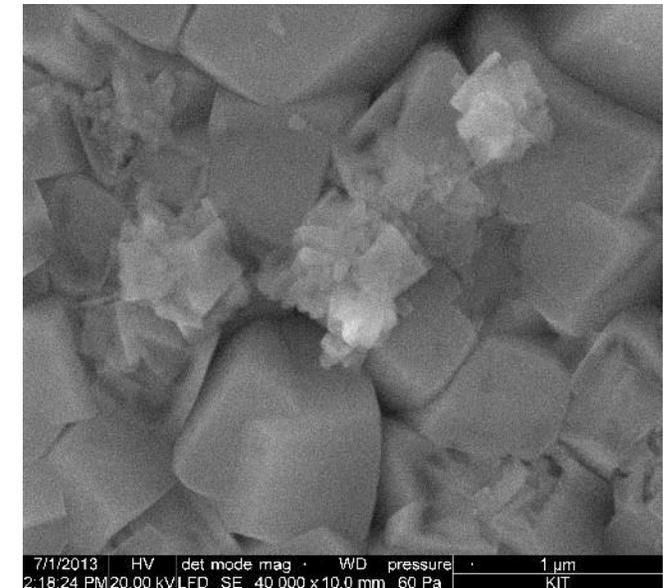
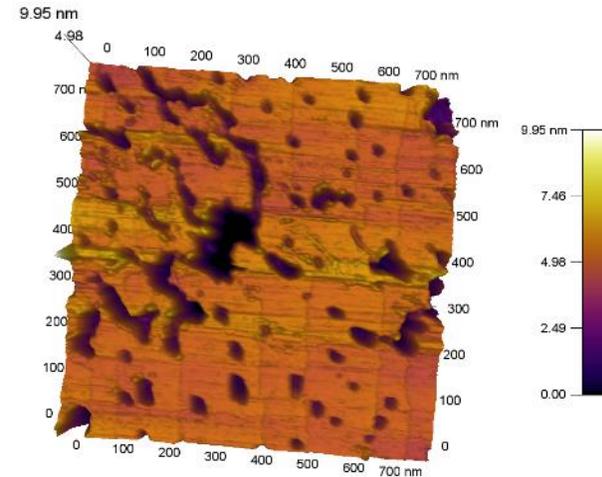
# Die elektronische Struktur der Calcitoberfläche

Kontakt mit  $\text{NaNO}_3$  über insgesamt 2 Wochen



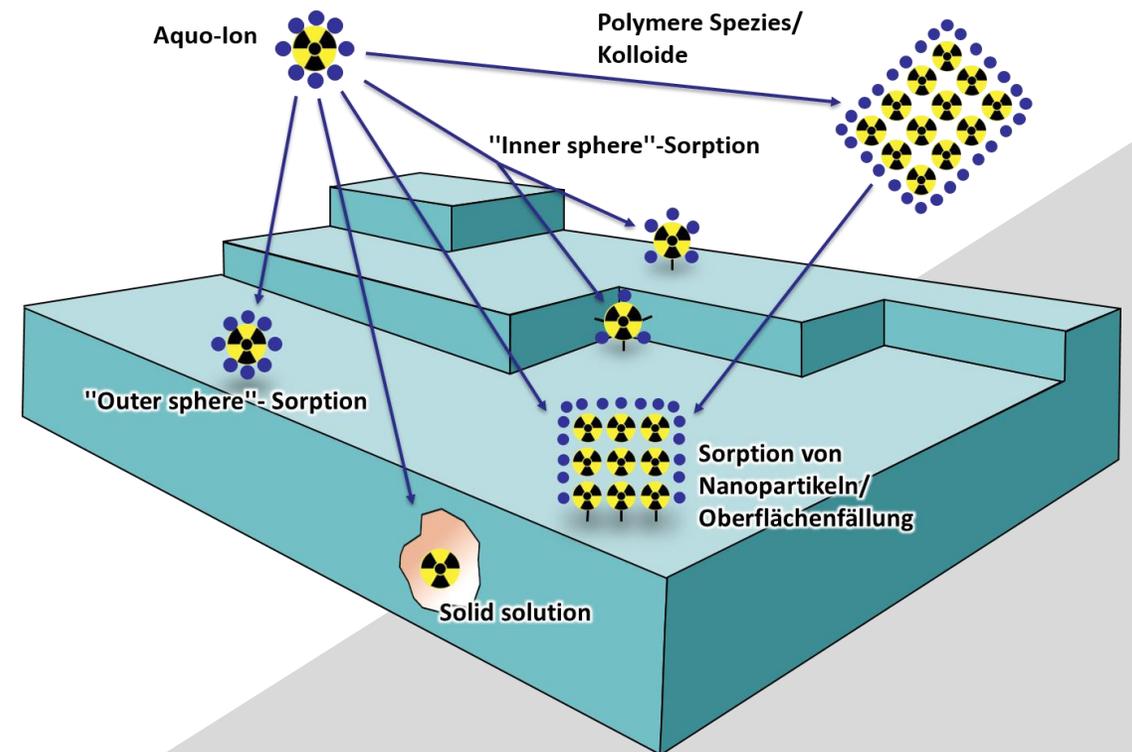
# Weitere untersuchte Systeme

- $\text{Na}_2\text{SO}_4$
- Simuliertes Grundwasser
- $\text{NaCl}$
- $\text{NaClO}_4$  unter Gleichgewichtsbedingungen
- $\text{NaF}$

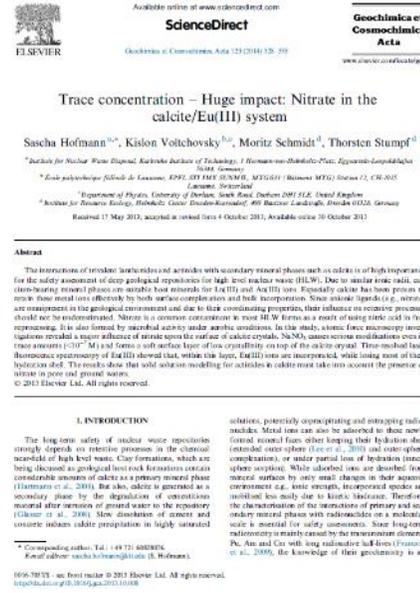


# Zusammenfassung

- Kombination aus spektroskopischen und mikroskopischen Methoden
- TRLFS, CTR/RAXR, AFM
- Prozessverständnis auf molekularer Ebene
- Realistischeres Verständnis von Einbau- und Sorptionsprozessen
- Grundlegende Untersuchungen zur Reaktivität von Mineraloberflächen



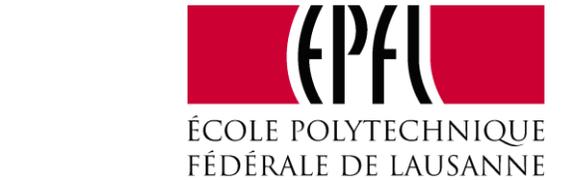
# Danksagung



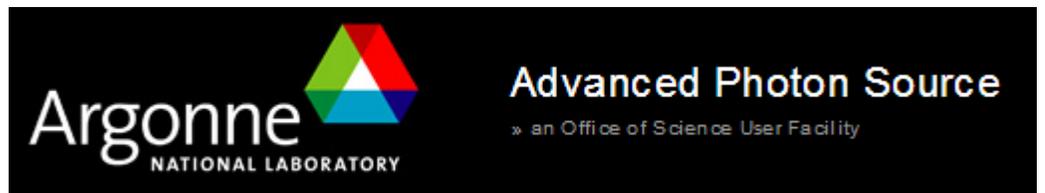
ImmoRad, 02 NUK 019A



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung



GeoSoilEnviroCARS



02NUK020

# Untersuchungen zum grundlegenden Verständnis der selektiven Komplexierung von f-Elementen (f-Kom)

Andreas GEIST

INSTITUTE FOR NUCLEAR WASTE DISPOSAL (INE)



Cf Bk U Th Pu  
Am Np Cm

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

# Hintergrund

Untersuchungen zum grundlegenden Verständnis der selektiven Komplexbildung von f-Elementen (f-Kom)

## Chemische Ähnlichkeit von dreiwertigen Actinid- (5f) und Lanthanid-(4f)-Ionen

### Lanthanidionen (inaktiv) als Analoga für Actinidionen (radioaktiv)

*Periodensystem der Elemente*

1																	18		
1	H Wasserstoff 1.01																	He Helium 4.00	
2	3	4											5	6	7	8	9	10	
	Li Lithium 6.94	Be Beryllium 9.01											B Bor 10.81	C Kohlenstoff 12.01	N Stickstoff 14.01	O Sauerstoff 15.999	F Fluor 18.998	Ne Neon 20.18	
3	11	12	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	
	Na Natrium 22.99	Mg Magnesium 24.31											Al Aluminium 26.98	Si Silicium 28.09	P Phosphor 30.97	S Schwefel 32.07	Cl Chlor 35.45	Ar Argon 39.95	
4	19	20	21	22	23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36	
	K Kalium 39.10	Ca Calcium 40.08	Sc Scandium 44.96	Ti Titan 47.88	V Vanadium 50.94	Cr Chrom 52.00	Mn Mangan 54.94	Fe Eisen 55.85	Co Cobalt 58.93	Ni Nickel 58.70	Cu Kupfer 63.55	Zn Zink 65.41	Ga Gallium 69.72	Ge Germanium 72.64	As Arsen 74.92	Se Selen 78.96	Br Brom 79.90	Kr Krypton 83.80	
5	37	38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50	51	52	53	54	
	Rb Rubidium 85.47	Sr Strontium 87.62	Y Yttrium 88.91	Zr Zirkonium 91.22	Nb Niobium 92.91	Mo Molybdän 95.94	Tc Technetium (98)	Ru Ruthenium 101.07	Rh Rhodium 102.91	Pd Palladium 106.42	Ag Silber 107.87	Cd Cadmium 112.41	In Indium 114.82	Sn Zinn 118.71	Sb Antimon 121.76	Te Tellur 127.60	I Iod 126.90	Xe Xenon 131.29	
6	55	56	La-Lu		72	73	74	75	76	77	78	79	80	81	82	83	84	85	86
	Cs Cäsium 132.91	Ba Barium 137.33			Hf Hafnium 178.49	Ta Tantal 180.95	W Wolfram 183.84	Re Rhenium 186.21	Os Osmium 190.23	Ir Iridium 192.22	Pt Platin 195.08	Au Gold 196.97	Hg Quecksilber 200.59	Tl Thallium 204.38	Pb Blei 207.2	Bi Bismut 208.98	Po Polonium (209)	At Astat (210)	Rn Radon (222)
7	87	88	Ac-Lr		104	105	106	107	108	109	110	111							
	Fr Francium (223)	Ra Radium (226)			Rf Rutherfordium (261)	Db Dubnium (262)	Sg Seaborgium (263)	Bh Bohrium (264)	Hs Hassium (265)	Mt Meitnerium (266)	Ds Darmstadtium (271)	Rg Röntgenium (272)							

© Peter Wich - Experimentalchemie.de - Chemie erleben!

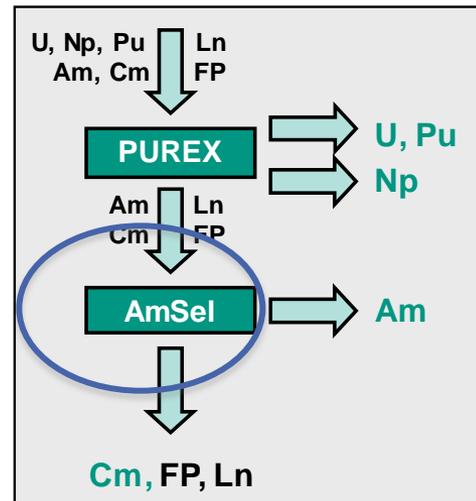
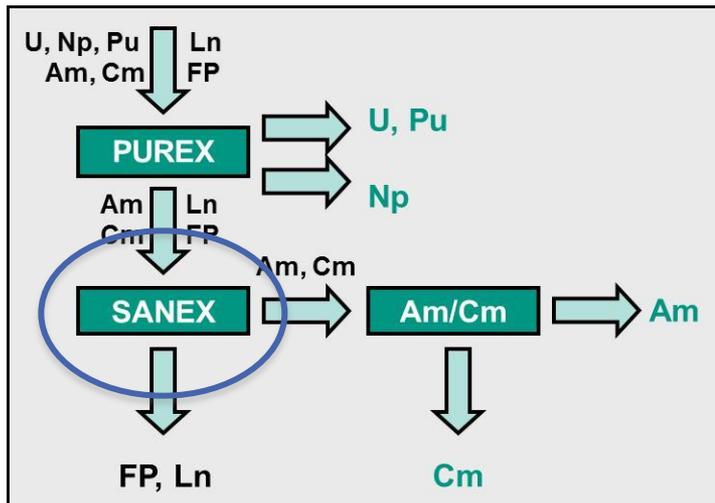
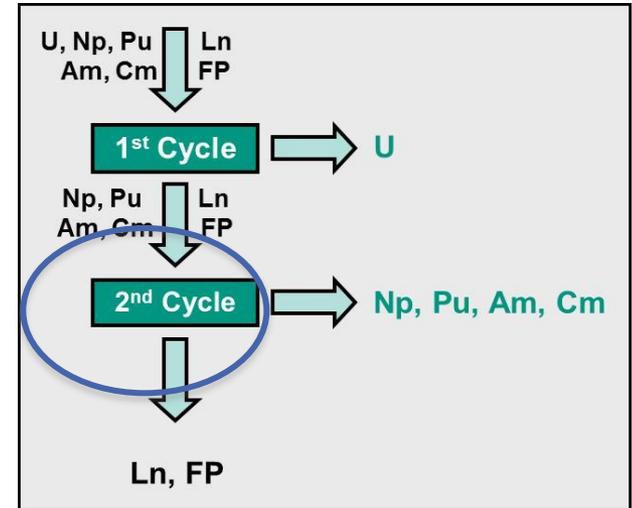
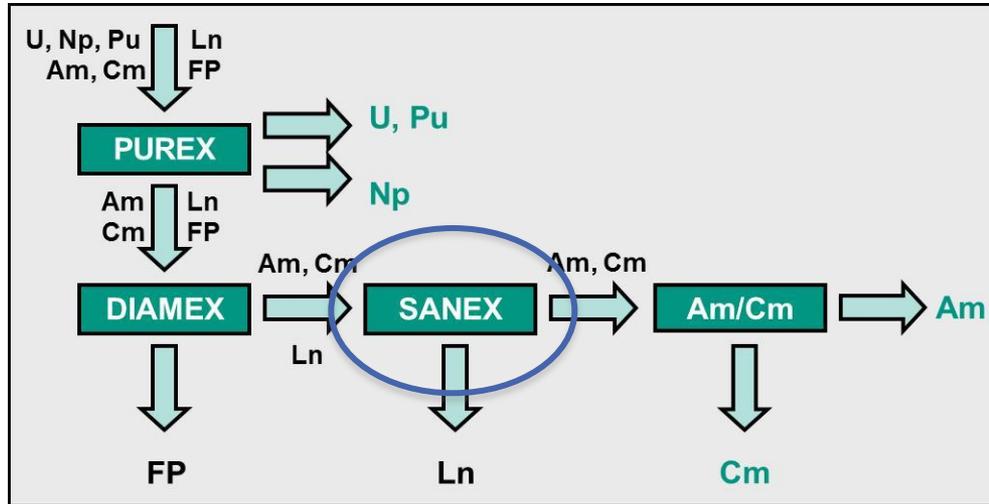
57	58	59	60	61	62	63	64	65	66	67	68	69	70	71
La Lanthan 138.91	Ce Cer 140.12	Pr Praseodym 140.91	Nd Neodym 144.24	Pm Promethium (147)	Sm Samarium 150.36	Eu Europium 151.97	Gd Gadolinium 157.25	Tb Terbium 158.93	Dy Dysprosium 162.50	Ho Holmium 164.93	Er Erbium 167.26	Tm Thulium 168.93	Yb Ytterbium 173.04	Lu Lutetium 174.97
89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	100	101	102	103
Ac Actinium 227.03	Th Thorium 232.04	Pa Protactinium 231.04	U Uran 238.03	Np Neptunium (237)	Pu Plutonium (244)	Am Americium (243)	Cm Curium (247)	Bk Berkelium (247)	Cf Californium (251)	Es Einsteinium (252)	Fm Fermium (257)	Md Mendelevium (258)	No Nobelium (259)	Lr Lawrencium (262)

GEFÖRDERT VOM

# Hintergrund

- Chemische Ähnlichkeit von dreiwertigen Actinid- (5f) und Lanthanid-(4f)-Ionen
  - Lanthanidionen (inaktiv) als Analoga für Actinidionen (radioaktiv)
- Wie kann man diese voneinander trennen?
  - Gegenstand internationaler Forschung seit  $\approx$  20 Jahren
  - EU-Projekte seit FP3
- ...und warum?
  - Fortgeschrittene Kernbrennstoffkreisläufe
  - Actiniden als Kernbrennstoff recyceln
  - Erfordert Trennung der Actiniden von den (Spalt)lanthaniden

# Hintergrund



GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium für Bildung und Forschung

## Projektpartner

- Karlsruher Institut für Technologie,  
Institut für Nukleare Entsorgung (INE)
- Karlsruher Institut für Technologie,  
Institut für Anorganische Chemie
- Universität Erlangen,  
LS für Anorganische und Allgemeine Chemie
- Universität Heidelberg,  
Physikalisch-Chemisches Institut
- Forschungszentrum Jülich,  
Institut für Energie- und Klimaforschung (IEK-6)



GEFÖRDERT VOM

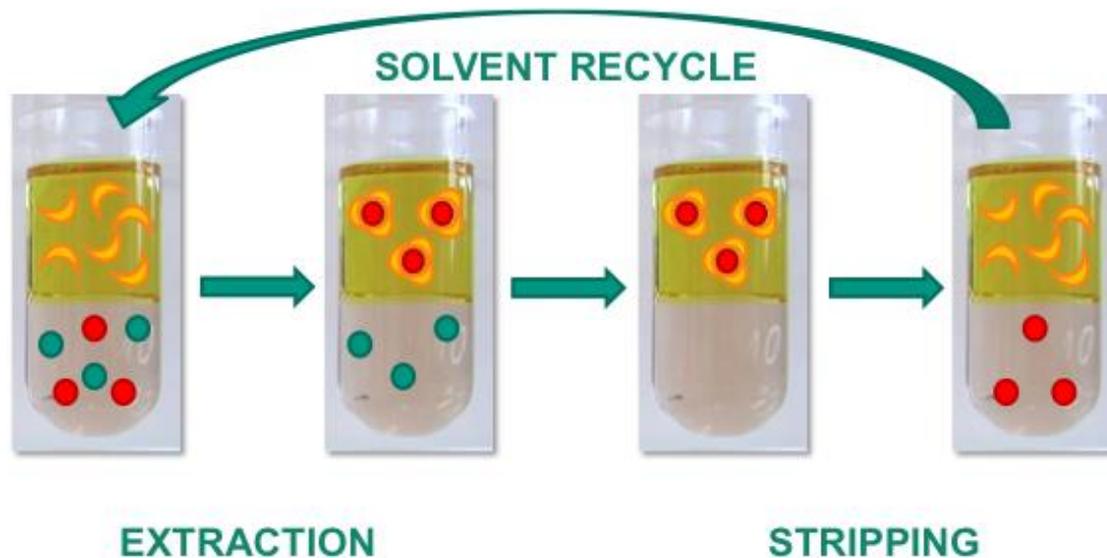


# Projektdaten

- Laufzeit: 1. Juli 2012 – 30. Juni 2015
- Budget: 2,8 M€
  - 1,6 M€ Personal
  - 440 K€ Investitionen
- Nachfolgeprojekt von 02NUK012
  - „Grundlegende Untersuchungen zur Entwicklung und Optimierung von Prozessen zur Abtrennung langlebiger Radionuklide“
  - Identes Konsortium
  - → eingespieltes Team

# Vorhabensziel

- Erlangung eines fundamentalen Verständnisses hinsichtlich der Abtrennung von langlebigen Radionukliden aus nuklearem Abfall
  - Verständnis der auf **Flüssig-Flüssig-Extraktion** basierten Abtrennprozesse für Actiniden auf molekularer Größenskala

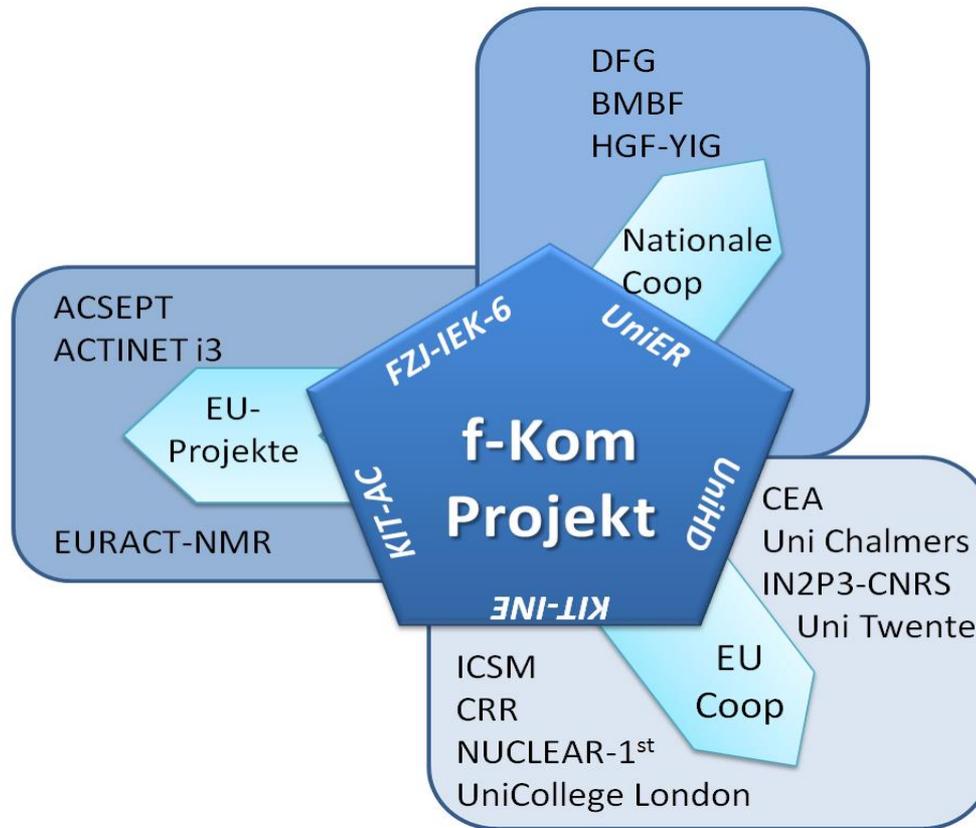


## Vorhabensziel

- Erlangung eines fundamentalen Verständnisses hinsichtlich der Abtrennung von langlebigen Radionukliden aus nuklearem Abfall
  - Verständnis der auf **Flüssig-Flüssig-Extraktion** basierten Abtrennprozesse für Actiniden auf molekularer Größenskala
- Aus- und Weiterbildung junger Wissenschaftler in Forschungsthemen zur nuklearen Entsorgung
- Vernetzung in der europäischen Forschungslandschaft

# Vernetzung

Untersuchungen zum grundlegenden  
Verständnis der selektiven Komplexierung  
von f-Elementen (f-Kom)



GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

# Bezug zum Förderprogramm

*Untersuchungen zum grundlegenden Verständnis der selektiven Komplexierung von f-Elementen (f-Kom)*



- Entsorgung nuklearer Abfälle: Wissenschaftliche und gesellschaftliche Herausforderung **weltweit**
- Innovative Strategien:
  - Verringerung der endzulagernden langlebigen hochradioaktiven Abfälle
  - Endlagerechte Fixierung langlebiger Abfälle
- Beiträge zum Kompetenzerhalt im Bereich der Actinidenchemie
- Verbesserung der Wettbewerbsfähigkeit auf dem Gebiet der Nuklearen Sicherheits- und Entsorgungsforschung in Deutschland



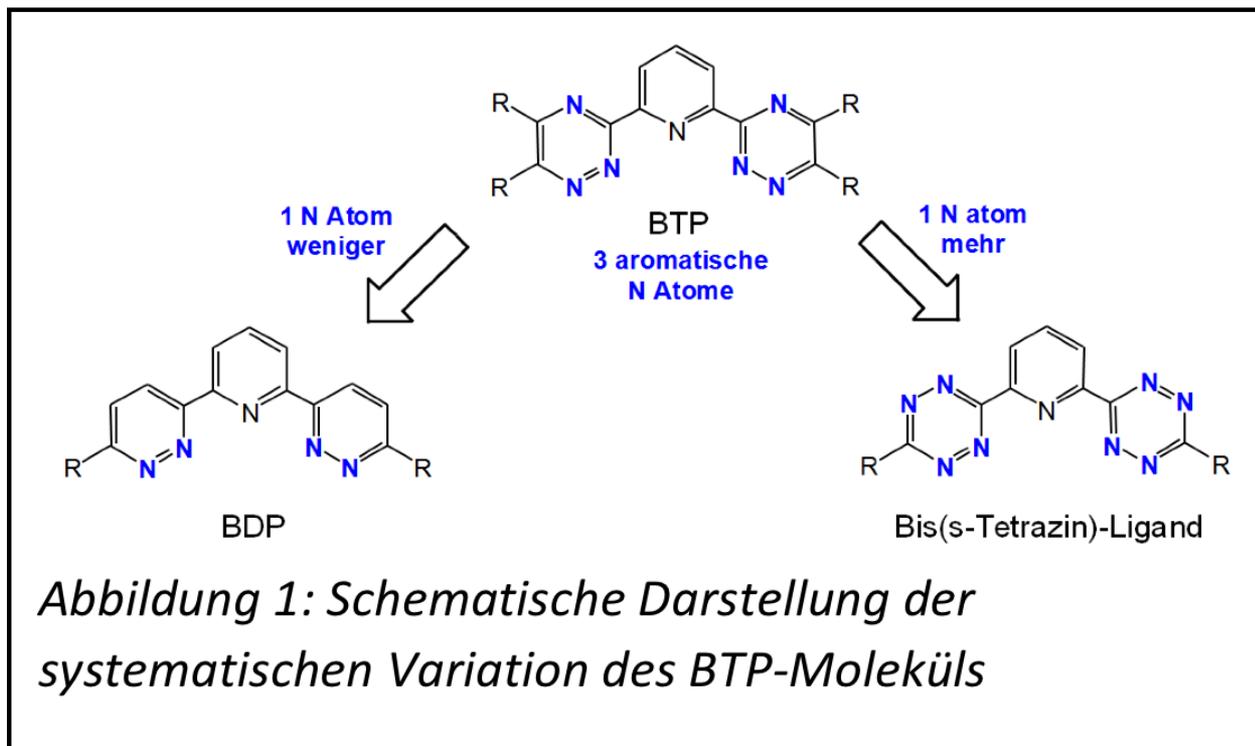
GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

# Konzept

- Synthese und Test neuer Liganden
- Struktur-Wirkungs-Beziehung



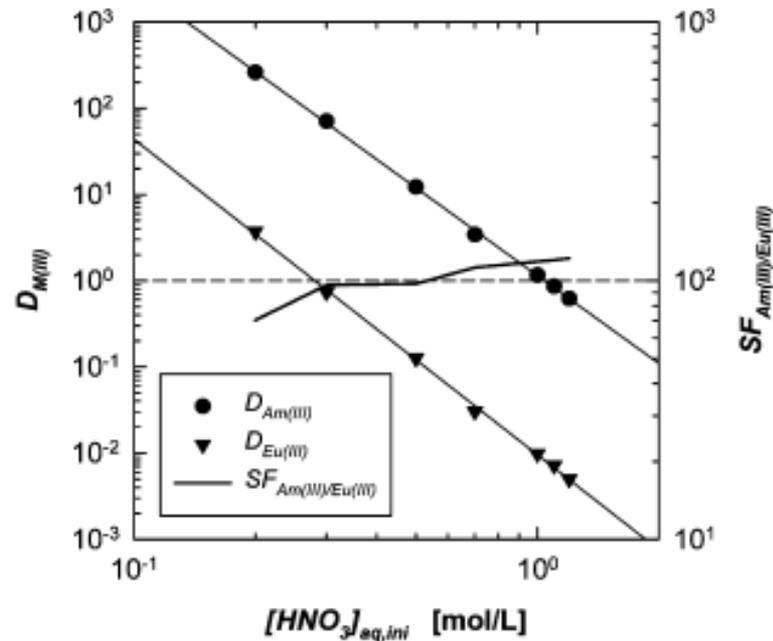
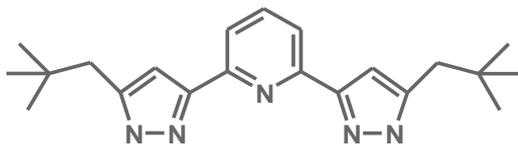
# Arbeitspakete

- Arbeitspaket A
    - Synthese und Screening-Tests
  - Arbeitspaket B
    - Synthese und spektroskopische Untersuchungen
  - Arbeitspaket C
    - Prozessstudien
  - Arbeitspaket D
    - Nachwuchsförderung
- 
- Vergleichende Untersuchungen an Actinid- und Lanthanidkomplexen



## Synthese und Screening-Tests

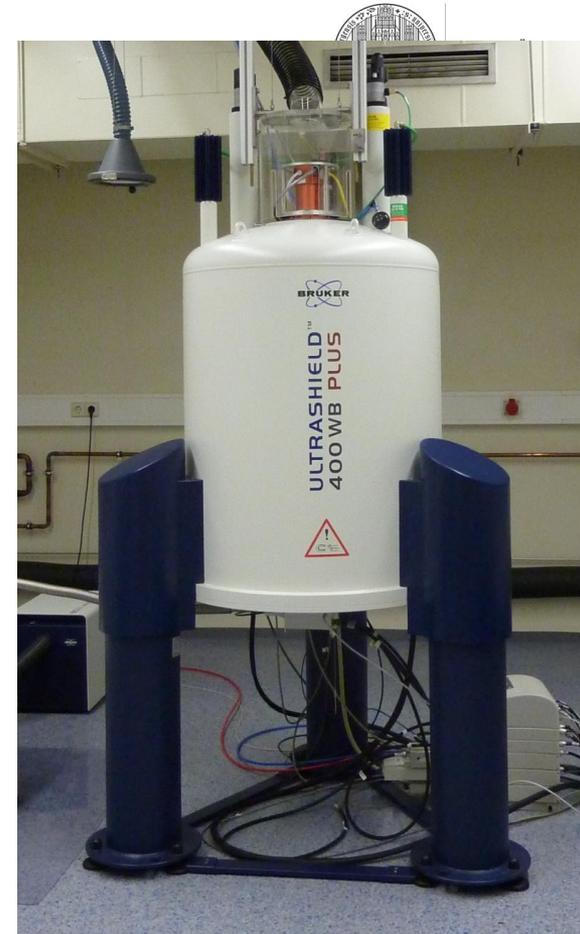
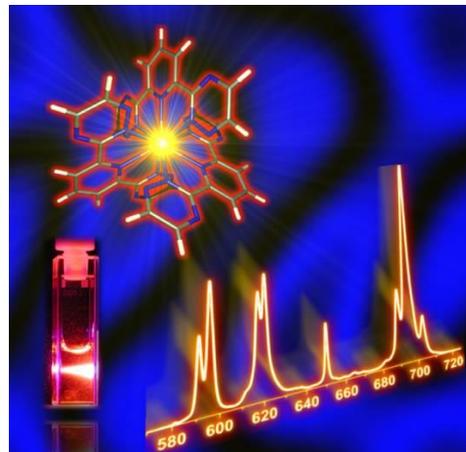
- Synthese neuer bzw. Modifikation bekannter Liganden
- Test ihrer Eigenschaften als selektive Extraktionsmittel für Actinidionen



**Figure 1.** Extraction of Am(III) and Eu(III): dependence of Am(III) and Eu(III) distribution ratios and separation factor on initial nitric acid concentration. Aqueous phase:  $^{241}\text{Am(III)} + ^{152}\text{Eu(III)}$  in  $\text{HNO}_3$ .  $T = 293 \text{ K}$ .

# Arbeitspaket B

- Synthese und spektroskopische Untersuchungen
  - Synthese von Actinid- und Lanthanidkomplexen
  - Charakterisierung
- Methoden
  - Einkristalldiffraktometrie
  - Röntgenabsorptionsspektroskopie (EXAFS)
  - Laserfluoreszenzspektroskopie (TRLFS)
  - Kernresonanzspektroskopie NMR

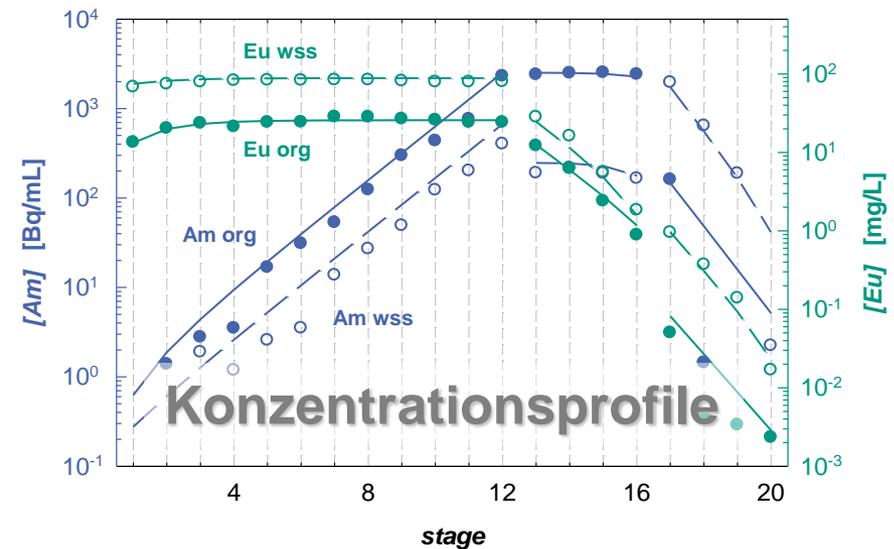
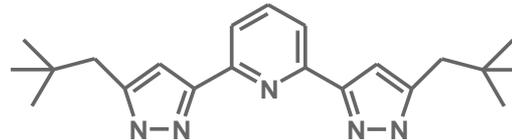


# Arbeitspaket C

Untersuchungen zum grundlegenden Verständnis der selektiven Komplexierung von f-Elementen (f-Kom)

## ■ Prozessstudien

- Test geeigneter Extraktionsmittel unter „prozessrelevanten“ Bedingungen
- Auslegung und Durchführung eines Trennprozesses im Labormaßstab

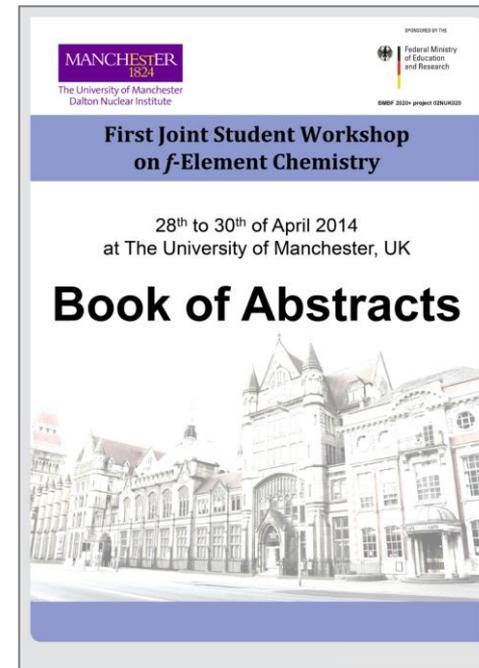


# Arbeitspaket D

Untersuchungen zum grundlegenden  
Verständnis der selektiven Komplexierung  
von  $f$ -Elementen ( $f$ -Kom)

## ■ Nachwuchsförderung

- 1<sup>st</sup> Joint Student Workshop on  $f$  Element Chemistry  
Manchester, 28.–30. April 2014
- Beteiligung an ThUL (theoretical user lab) Schools
- 2<sup>nd</sup> Joint Student Workshop on  $f$  Element Chemistry  
Karlsruhe, 09.–10. Juni 2015



GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

# Output

- Wissenschaftliche Ergebnisse
  - Siehe Vortrag Peter Kaden
- Knapp 40 Veröffentlichungen in Journals
- Teilnahme an rund 30 internationalen Konferenzen



GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

# Nachwuchsförderung

*Untersuchungen zum grundlegenden  
Verständnis der selektiven Komplexierung  
von f-Elementen (f-Kom)*



## ■ Personalfinanzierung über drei Jahre

- 3 Post Docs
- 10 Doktorand(inn)en
- Diplom- bzw. Masterarbeiten
- diverse Praktika



## ■ Ziele

- Kompetenzerwerb und -erhalt im Bereich der Actinidenchemie
  - Umgang mit offener Radioaktivität und mit Actiniden
- Erhalt der Wettbewerbsfähigkeit auf dem Gebiet der Nuklearen Sicherheits- und Entsorgungsforschung

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

# Fortsetzung folgt?

Untersuchungen zum grundlegenden  
Verständnis der selektiven Komplexierung  
von f-Elementen (f-Kom)



**> Partitionierung und  
Transmutation nuklearer Abfälle**

Chancen und Risiken in  
Forschung und Anwendung

acatech (Hrsg.)

**acatech POSITION**  
Februar 2014

**> Partitionierung und  
Transmutation**

Forschung - Entwicklung -  
Gesellschaftliche Implikationen

Ortwin Renn (Hrsg.)

**acatech STUDIE**  
Dezember 2013



GEFÖRDERT VOM

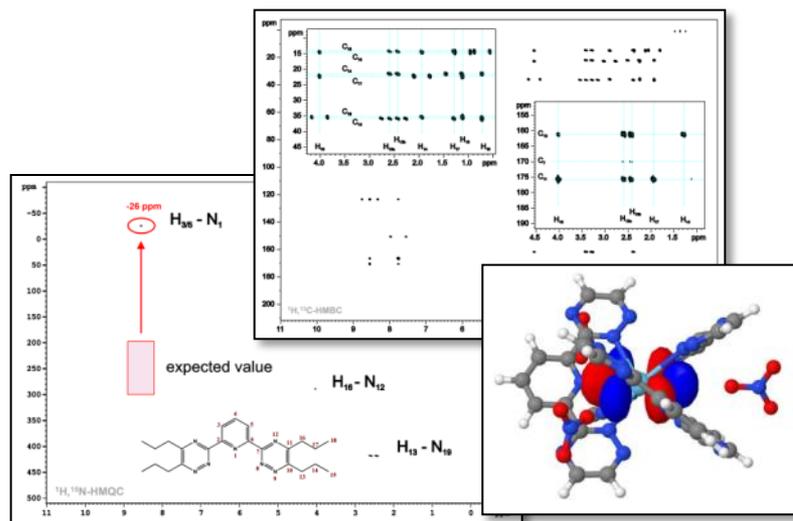


Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

# 02NUK020 - Selektive Komplexierung von *f*-Elementen

P. Kaden

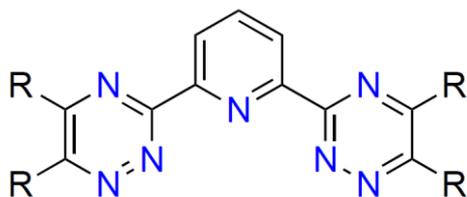
Institute for Nuclear Waste Disposal (INE)



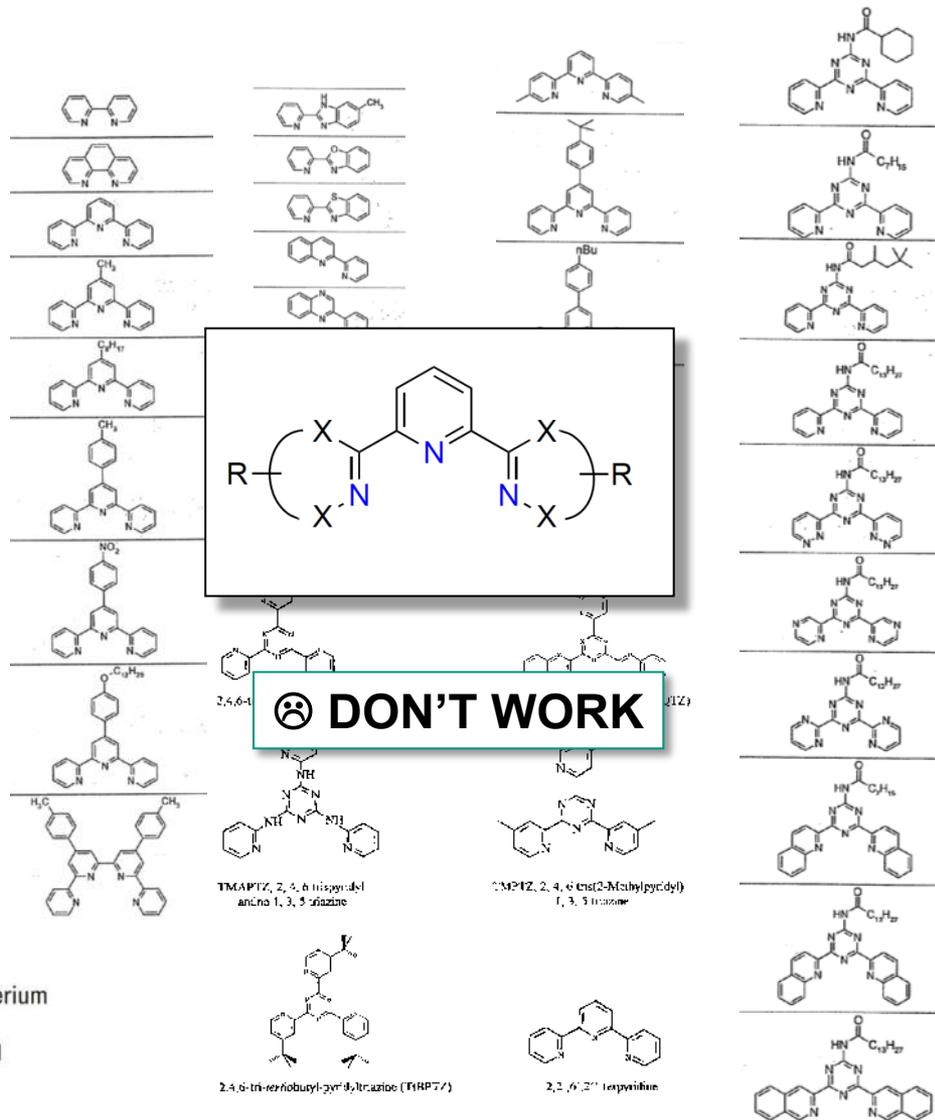
## Selectivity in separation chemistry

- Trivalent cations of lanthanide and (early) actinide series with high similarity in
  - chemical properties
  - ionic radii
  - coordination numbers
- General preference for hard ligands (Pearson's HSAB theory)
- Softer ligands prefer coordination to An(III) over Ln(III)
  - greater availability of  $5f$  orbitals in actinides
  - leading to greater share of covalent bonding in actinide complexes
  - CHNO principle leads to  $N$ -donor ligands

# Separation chemistry

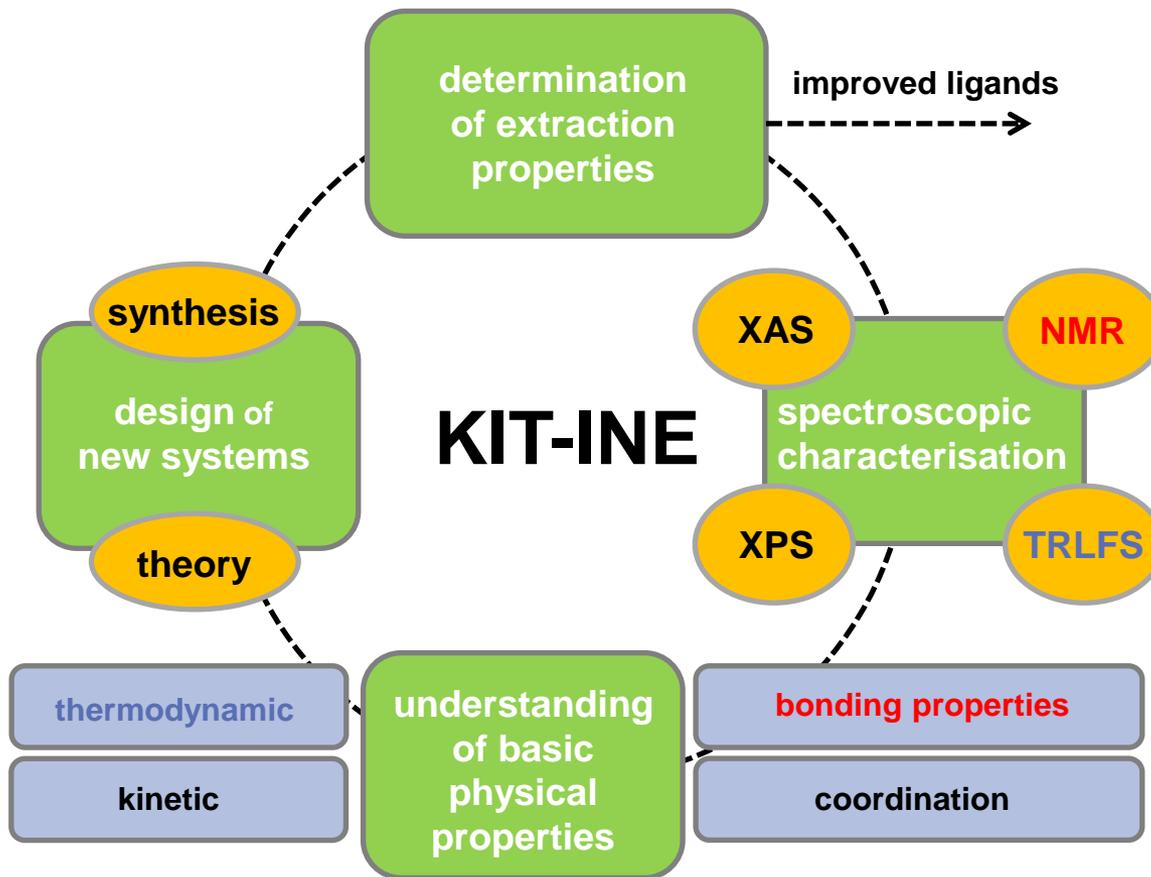


☺ WORK



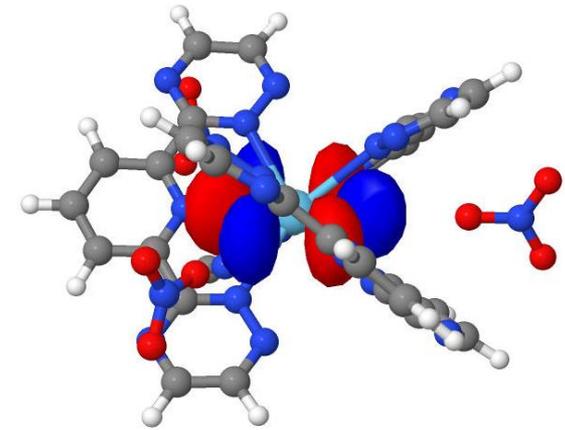
# f-Kom approach

- ... aims to design optimized extraction systems



## Comparing study

- ✓ of isostructural actinide and lanthanide complexes
- ✓ to deduce specific differences
- ✓ to correlate differences to extraction properties



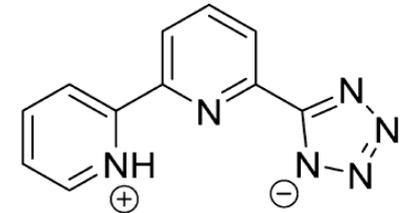
Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung



# Outline

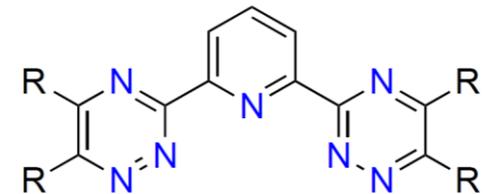
## ■ New structural motive – HN<sub>4</sub>bipy

Kratsch, Beele, Koke, Denecke, Geist, Panak, Roesky, *Inorganic Chemistry*, 2014, **53**, 8949-8958.



## ■ Fine-tuning of electronic distribution – variation of the basicity of the nitrogen atoms in lateral rings of BTP

Beele, Rüdiger, Schwörer, Müllich, Geist, Panak, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 12139-12147.

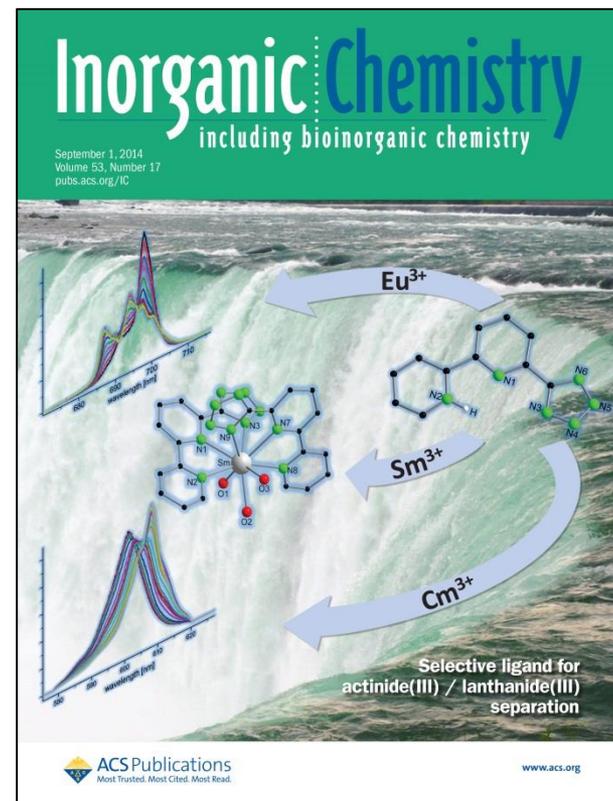
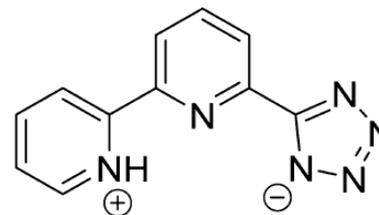


## ■ Insight in the bonding situation – first results on Am complexes of BTP

Adam, Kaden, Beele, Müllich, Trumm, Geist, Panak, Denecke, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 14068-14074.

# HN<sub>4</sub>bipy – A new structural motive

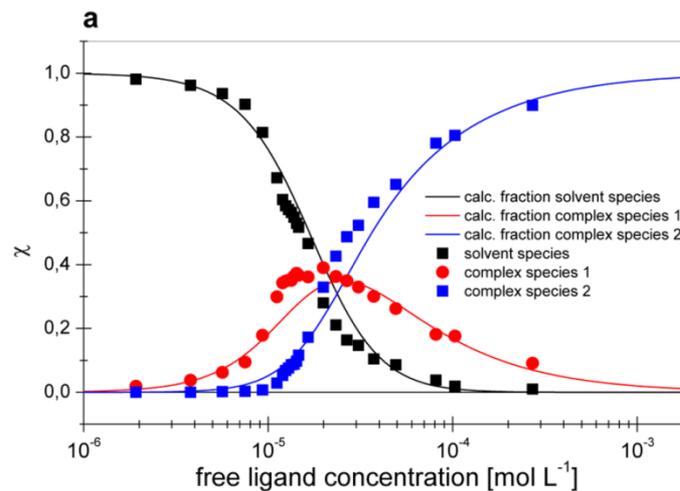
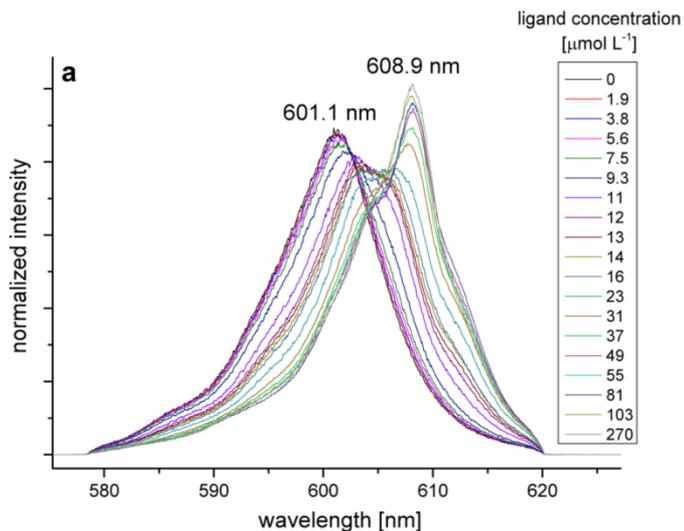
- Study of complexation behavior
- Identification of Ln(III)/An(III) complex species by
  - NMR
  - MS
  - X-ray crystallography
  - X-ray absorption near edge structure (XANES)
  - Time resolved laser fluorescence (TRLFS)
- Determination of stability constants by TRLFS
- Calculation of a theoretical separation factor
- Extraction studies



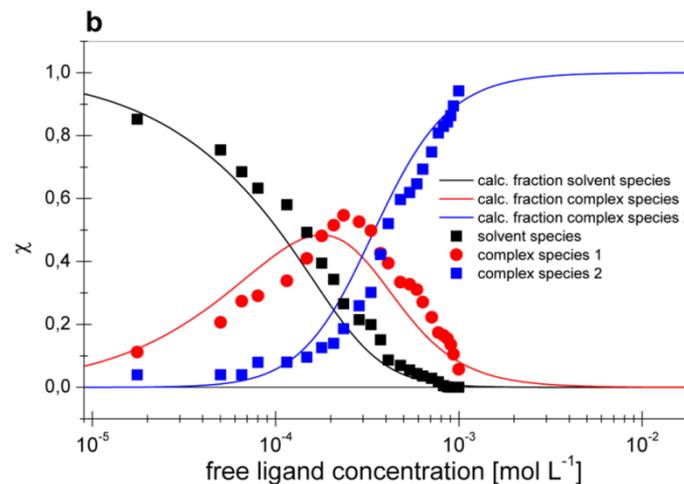
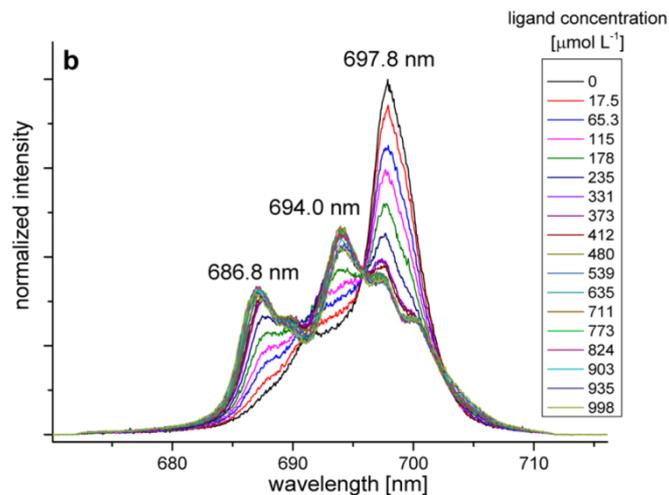
Kratsch, Beele, Koke, Denecke, Geist, Panak, Roesky, *Inorganic Chemistry*, 2014, **53**, 8949-8958.

# HN<sub>4</sub>bipy – TRLFS studies and stability constants

Cm(III)



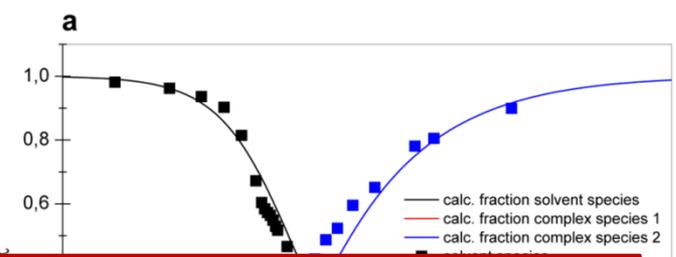
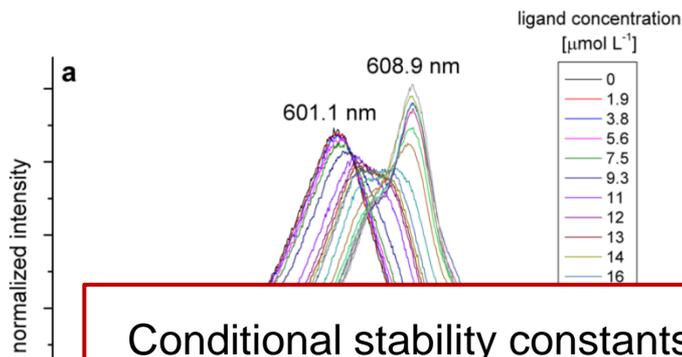
Eu(III)



Kratsch, Beele, Koke, Denecke, Geist, Panak, Roesky, *Inorganic Chemistry*, 2014, **53**, 8949-8958.

# HN<sub>4</sub>bipy – TRLFS studies and stability constants

Cm(III)

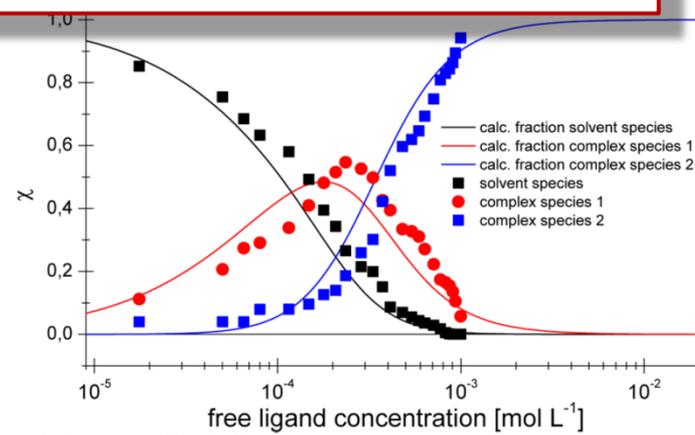
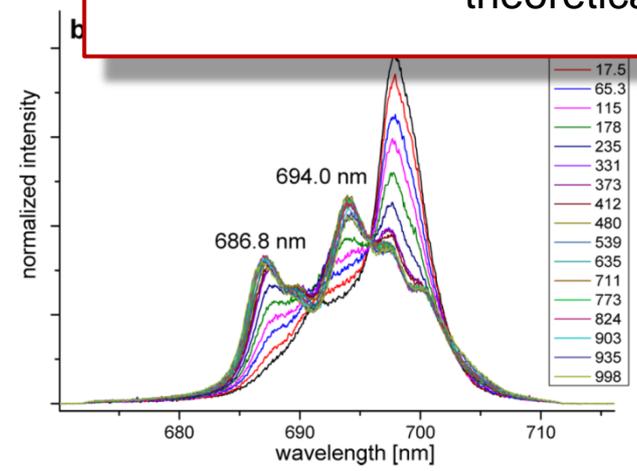


Conditional stability constants for the formation of  $[M(N_4bipy)_n]^{3-n}$

Cm(III)	EtOH	$\log\beta'_3$	$13.8 \pm 0.3$
Eu(III)	EtOH	$\log\beta'_3$	$11.1 \pm 0.2$

theoretical SF<sub>Cm(III)/Eu(III)</sub>  $\approx 500$

Eu(III)



Kratsch, Beele, Koke, Denecke, Geist, Panak, Roesky, *Inorganic Chemistry*, 2014, **53**, 8949-8958.

# HN<sub>4</sub>bipy – TRLFS studies and stability constants

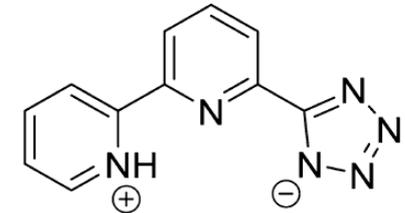
- HN<sub>4</sub>bipy complexes are very stable (aprox. order of reference molecules)
  - HN<sub>4</sub>bipy shows high selectivity of Cm over Eu
  - New ligand design (asymmetry, charge)
  - Extraction experiments hampered by low solubility of complexes in technical solvents (e.g. kerosene)
  - Design idea: decoration of pyridine ring with tert-butyl group to achieve higher solubility in non-protic solvents
- ➔ synthesis planned

Kratsch, Beele, Koke, Denecke, Geist, Panak, Roesky, *Inorganic Chemistry*, 2014, **53**, 8949-8958.

# Outline

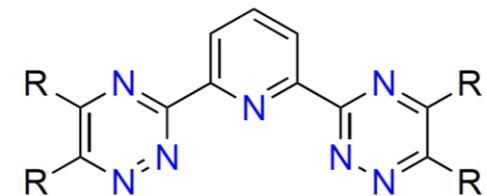
## ■ New structural motive – $\text{HN}_4\text{bipy}$

Kratsch, Beele, Koke, Denecke, Geist, Panak, Roesky, *Inorganic Chemistry*, 2014, **53**, 8949-8958.



## ■ Fine-tuning of electronic distribution – variation of the basicity of the nitrogen atoms in lateral rings of BTP

Beele, Rüdiger, Schwörer, Müllich, Geist, Panak, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 12139-12147.

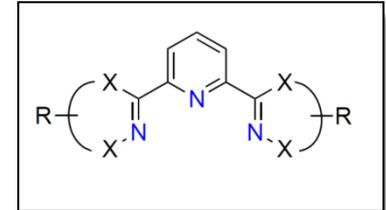
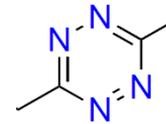
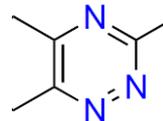
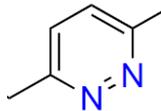


## ■ Insight in the bonding situation – first results on Am complexes of BTP

Adam, Kaden, Beele, Müllich, Trumm, Geist, Panak, Denecke, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 14068-14074.

# Fine-tuning – Variation of nitrogens' basicity

- Aromaticity of lateral heteroaromatic rings:



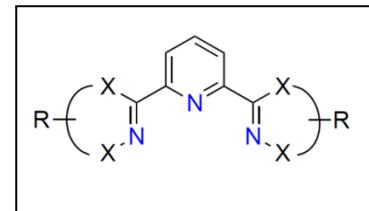
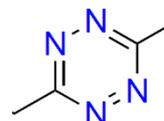
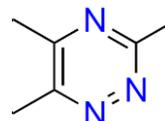
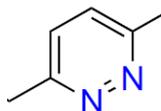
Energy of aromatisation [kJ mol<sup>-1</sup>]:

83.85	>	28.53	>	9.62
pyridazinyl		1,2,4-triazine		1,2,4,5-tetrazine

**➔** a significant change in basicity of aromatic nitrogen atoms is anticipated

# Fine-tuning – Variation of nitrogens' basicity

- Aromaticity of lateral heteroaromatic rings:



Energy of aromatisation [kJ mol<sup>-1</sup>]:

83.85  
pyridazinyl

>

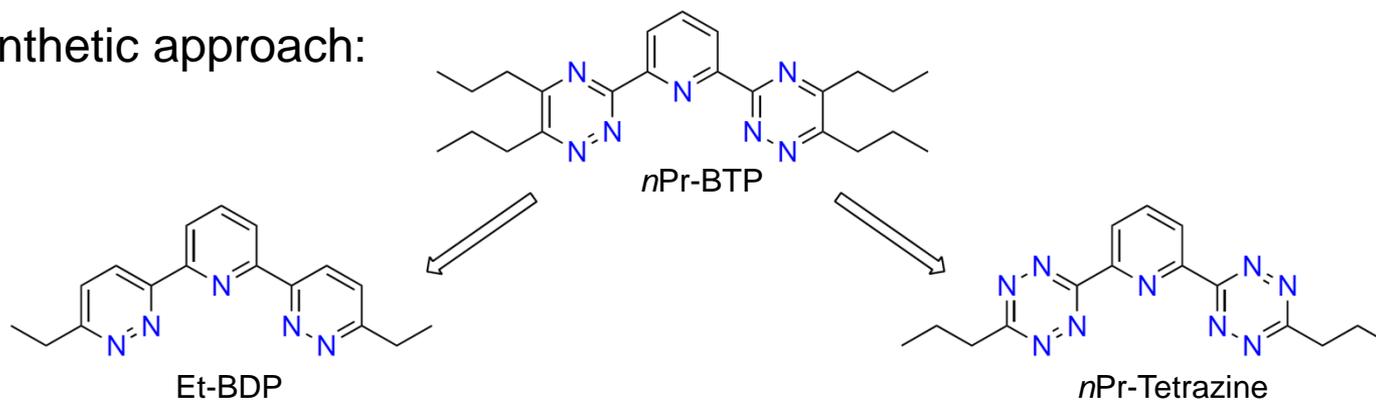
28.53  
1,2,4-triazine

>

9.62  
1,2,4,5-tetrazine

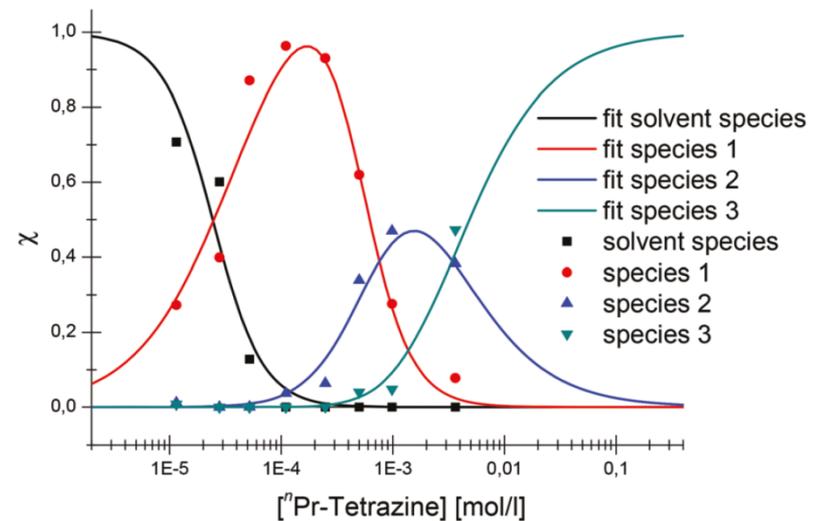
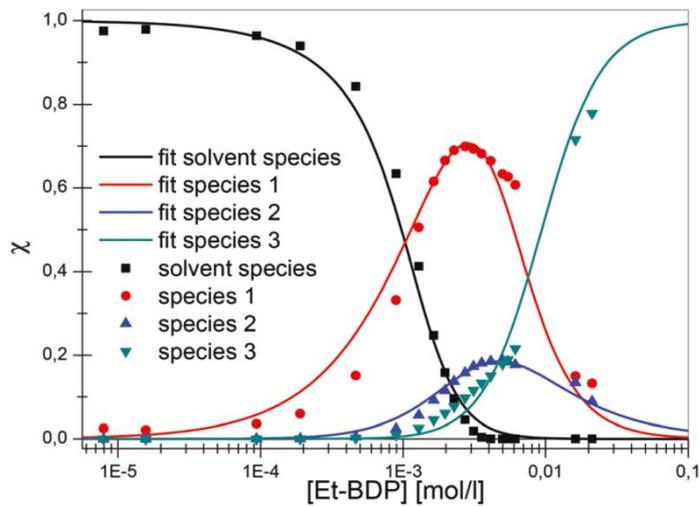
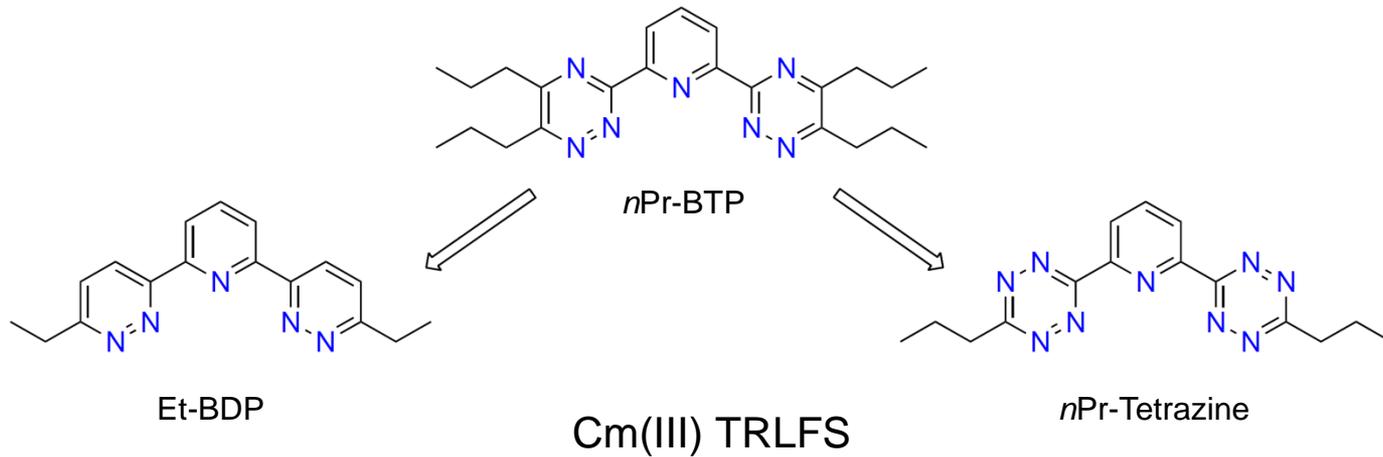
➔ a significant change in basicity of aromatic nitrogen atoms is anticipated

- Synthetic approach:



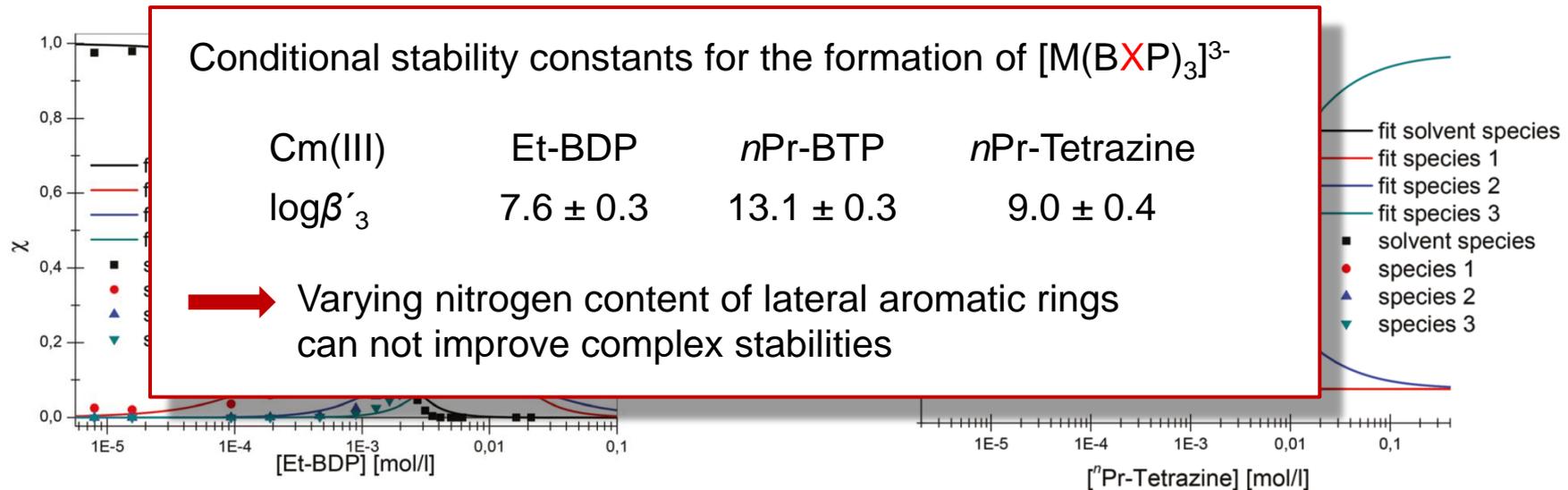
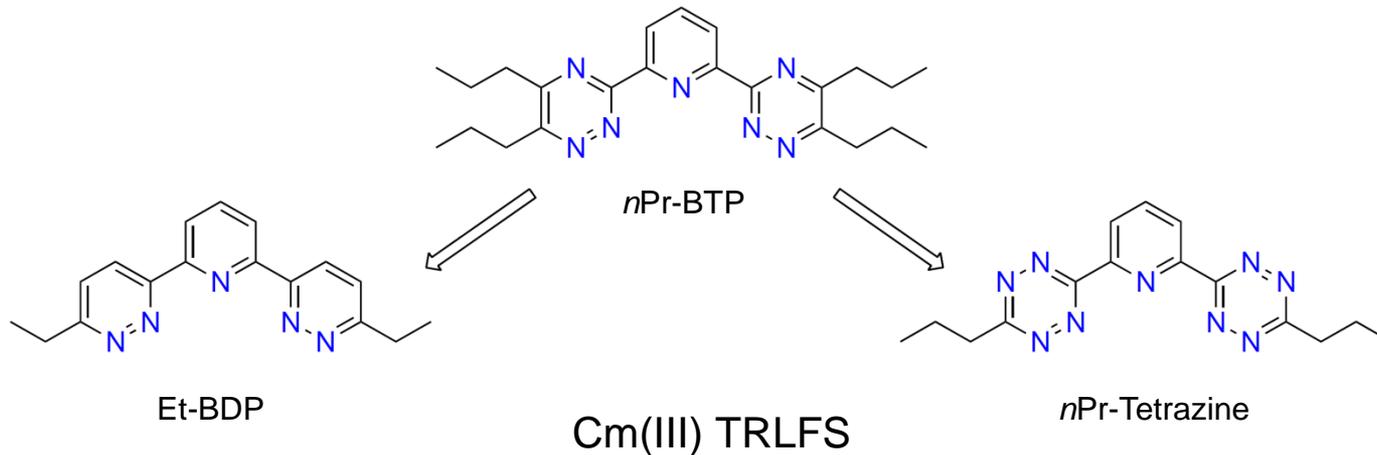
Beele, Rüdiger, Schwörer, Müllich, Geist, Panak, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 12139-12147.

# Fine-tuning – Variation of nitrogens' basicity



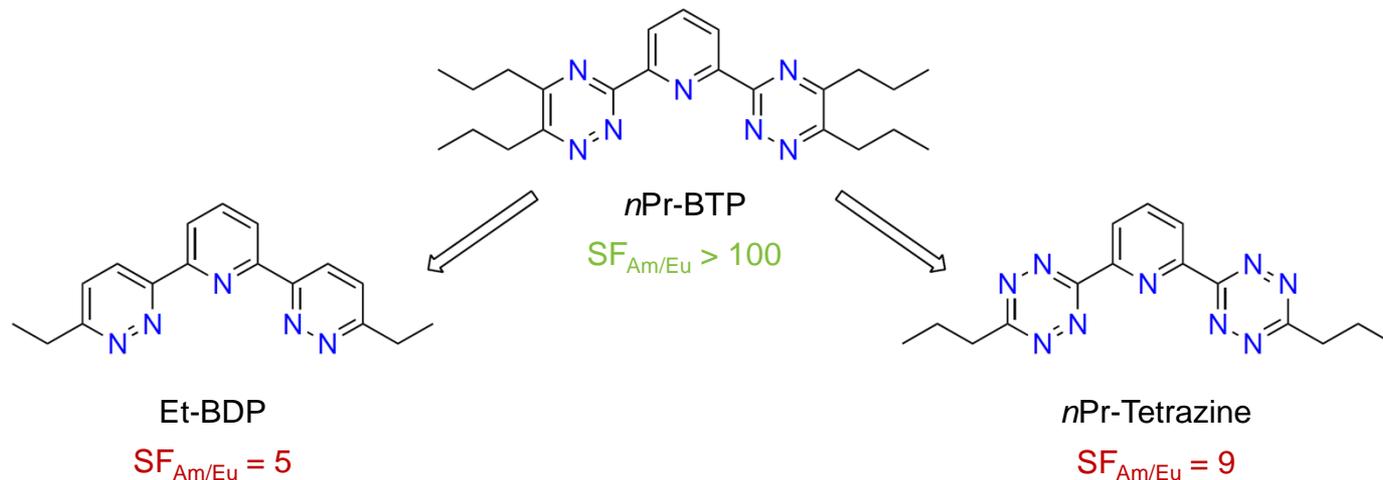
Beele, Rüdiger, Schwörer, Müllich, Geist, Panak, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 12139-12147.

# Fine-tuning – Variation of nitrogens' basicity



Beele, Rüdiger, Schwörer, Müllich, Geist, Panak, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 12139-12147.

# Fine-tuning – Variation of nitrogens' basicity



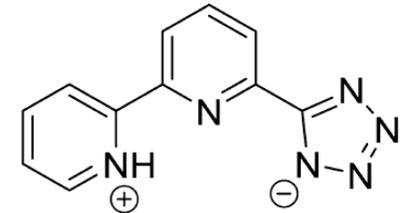
- $\log\beta'_3$  values show highest stability for the  $[\text{Cm}(\text{BTP})_3]^{3-}$
- Extraction experiments confirm that only BTP has significant selectivity
- Varying nitrogen content of lateral aromatic rings does not improve extraction performance of BXP type separation systems
- BTP is the ideal complexation environment

Beele, Rüdiger, Schwörer, Müllich, Geist, Panak, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 12139-12147.

# Outline

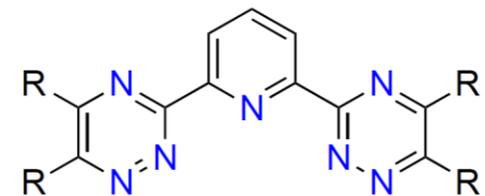
## ■ New structural motive – $\text{HN}_4\text{bipy}$

Kratsch, Beele, Koke, Denecke, Geist, Panak, Roesky, *Inorganic Chemistry*, 2014, **53**, 8949-8958.



## ■ Fine-tuning of electronic distribution – variation of the basicity of the nitrogen atoms in lateral rings of BTP

Beele, Rüdiger, Schwörer, Müllich, Geist, Panak, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 12139-12147.



## ■ Insight in the bonding situation – first results on Am complexes of BTP

Adam, Kaden, Beele, Müllich, Trumm, Geist, Panak, Denecke, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 14068-14074.

# BTP – Insight in bonding situation

- For a rational design of new extraction systems or the improvement of known systems, key parameters should be identified and monitored
- Covalence has long been suspected to play a major role as contributor to the selectivity of certain *N*-donor ligands
- NMR spectroscopy
  - measures electron distribution around nuclei
  - exceptionally high accuracy
  - can quantify changes
  - ideally suited for comparing studies in diamagnetic systems
- Paramagnetic NMR gives direct access to bonding properties by mathematical separation of contributors to the paramagnetic shift
- Comparing studies of diamagnetic and paramagnetic Ln(III) complexes to validate results and transfer methodology to actinide systems

# BTP – Insight in bonding situation

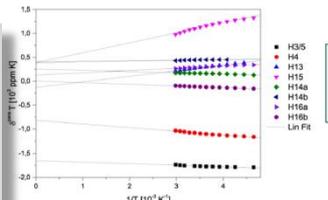
- Series of isostructural complexes necessary
- Comparison of different mathematical approaches
- Empirical parameters and correctness of mathematical assumptions are validated
- Uncertainties planned to be reduced by independent theoretical studies

### NMR Fundamentals

$$\delta_{para} = \Delta\delta_k = \overbrace{(S_z)_{Ln} \cdot F_k}^{\delta_{PCS}} + \frac{1}{2N_A} \left[ \left( \chi_{zz}^{Ln} - \frac{Tr\chi^{Ln}}{3} \right) \cdot \left( \frac{3 \cos^2 \theta_k - 1}{I_k^3} \right) + \left( \chi_{xx}^{Ln} - \chi_{yy}^{Ln} \right) \cdot \left( \frac{\sin^2 \theta_k \cos^2 2\phi_k}{I_k^3} \right) \right] \overbrace{\quad}^{\delta_{PCS}}$$

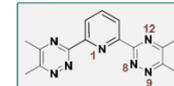
- Bleaney method**  
 $\Delta\delta_k = \frac{(S_z)_{Ln}}{(S_z)_{Ln}} F_k + \frac{D_{Ln}}{(S_z)_{Ln}} A_k^0 \cdot G_k$   
 rhombic anisotropic components cancel ( $C_2$ ), numerical factor tabulated, second-rank ligand-field parameter characterizes magnitude of metal-ligand interaction, geometrical functions constant
- Reilly method**  
 $\frac{\Delta\delta_k}{(S_z)_{Ln}} = F_k + \frac{D_{Ln}}{(S_z)_{Ln}} A_k^0 \cdot G_k$   
 plotting values divided by  $(S_z)_{Ln}$  vs.  $D_{Ln} / (S_z)_{Ln}$  gives straight line, intercept  $F_k$  and slope equals  $A_k^0 \cdot G_k$  model free approach
- Spiliadis and Pinkerton approach**  
 $\frac{\Delta\delta_k}{(S_z)_{Ln}} = (F_k - F_l \cdot R_{kl}) + \frac{\Delta\delta_l}{(S_z)_{Ln}} \cdot R_{kl}$   
 elimination of ligand field term  $A_k^0$  by simultaneous consideration of two resonating nuclei k and l,  $R_{kl}$  defines ratio of geometrical parameters ( $G_k/G_l$ )

### Bleaney



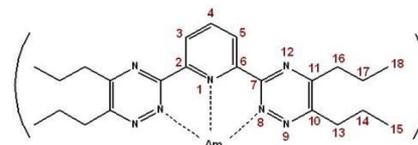
	$G_k^{(free)}$	$M_k^{(free)}$	R-Wert	FCS	PCS	$\delta^{(free)}(calc)$	$\delta^{(free)}(obs)$
H <sub>10a</sub>	-1.65	-0.0239	-0.941	-5.50	-0.253	-5.85	-5.87
H <sub>11</sub>	-0.817	-0.077	-0.985	-2.72	-0.854	-3.58	-3.60
H <sub>12</sub>	-0.131	0.117	0.996	-0.437	1.30	0.863	0.870
H <sub>13a</sub>	0.387	0.208	0.987	1.29	2.31	3.601	3.62
H <sub>13b</sub>	0.252	-0.0250	-0.977	0.840	-0.282	0.558	0.560
H <sub>14</sub>	0.385	0.0160	0.908	1.28	0.182	1.47	1.46
H <sub>15a</sub>	0.128	0.047	0.989	0.427	0.524	0.851	0.970
H <sub>15b</sub>	0.005	-0.035	-0.998	0.0170	-0.383	-0.367	-0.370

### <sup>15</sup>N Results

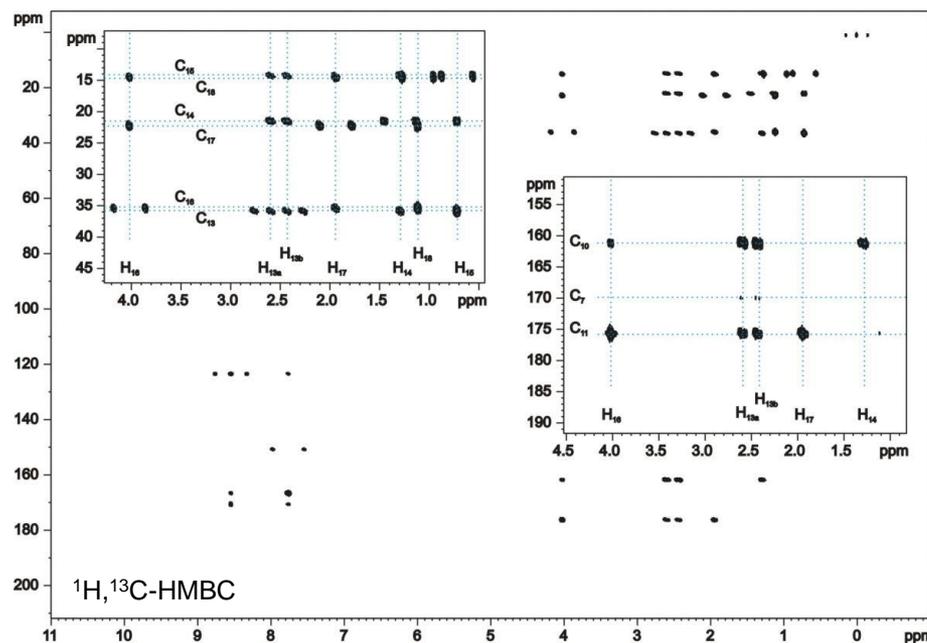
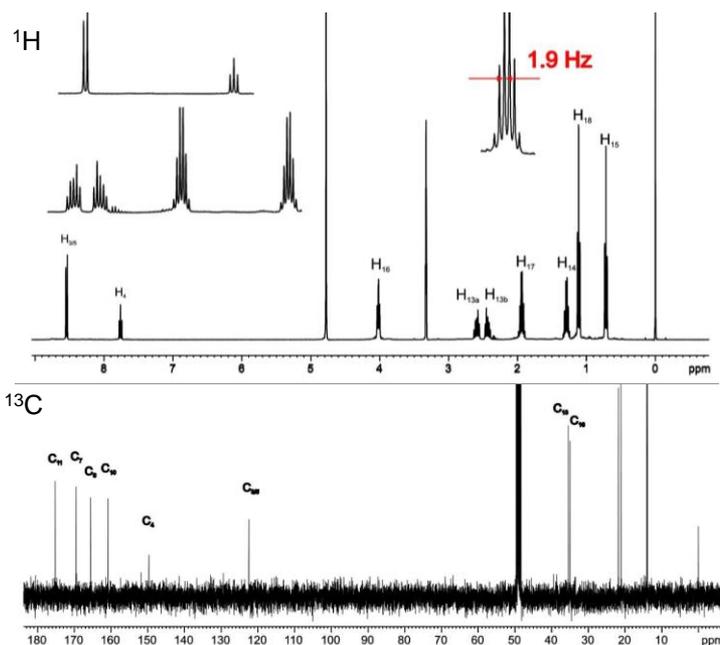


	N <sub>1</sub>	N <sub>8</sub>	N <sub>9</sub>	N <sub>12</sub>	N <sub>1</sub>	N <sub>8</sub>	N <sub>9</sub>	N <sub>12</sub>
	$\delta$ [ppm]	$\delta$ [ppm]	$\delta$ [ppm]	$\delta$ [ppm]	$\delta$ [ppm]	$\delta$ [ppm]	$\delta$ [ppm]	$\delta$ [ppm]
<b>free ligand</b>	303	353	403	288	303	347	394	289
<b>Lu</b>	270	312	390	292	269	309	386	293
<b>Sm</b>	227	263	387	293	226	261	383	293
<b>Eu</b>	-	-1389	353	283	-	-	354	284
<b><sup>243</sup>Am</b>	<b>-31</b>	<b>-16</b>	421	289	<b>-26</b>	<b>-18</b>	418	289

# BTP – Insight in bonding situation

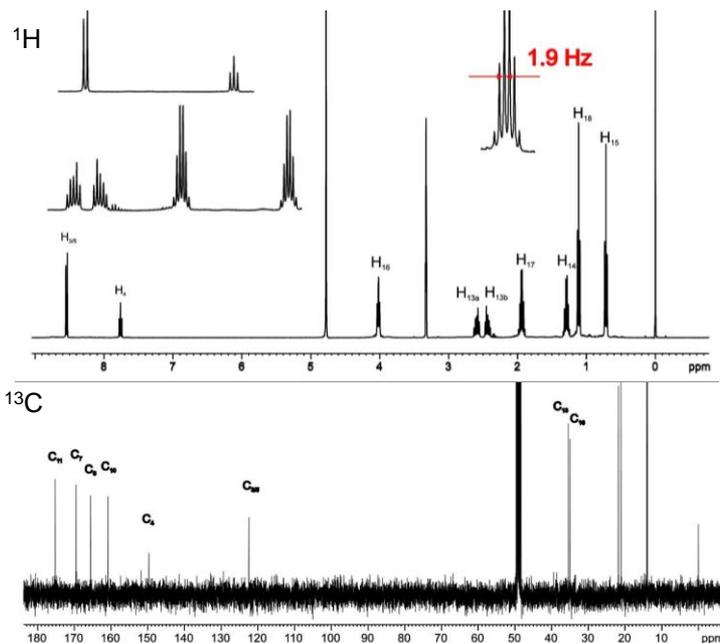


- First trivalent actinide complex measured with  $^{243}\text{Am(III)}$
- Spectra of  $[\text{Am}(n\text{Pr-BTP})_3(\text{NO}_3)_3]$  appear to be of diamagnetic origin
- 2D NMR correlations possible, identification of all  $^1\text{H}$  and  $^{13}\text{C}$  resonances
- $^{15}\text{N}$  resonances of coordinating nitrogens not accessible

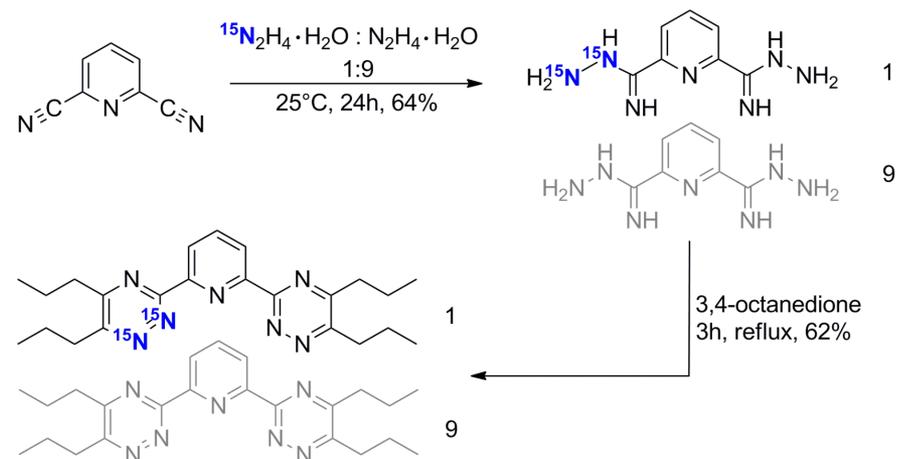


# BTP – Insight in bonding situation

- First trivalent actinide complex measured with  $^{243}\text{Am(III)}$
- Spectra of  $[\text{Am}(n\text{Pr-BTP})_3(\text{NO}_3)_3]$  appear to be of diamagnetic origin
- 2D NMR correlations possible, identification of all  $^1\text{H}$  and  $^{13}\text{C}$  resonances
- $^{15}\text{N}$  resonances of coordinating nitrogens not accessible

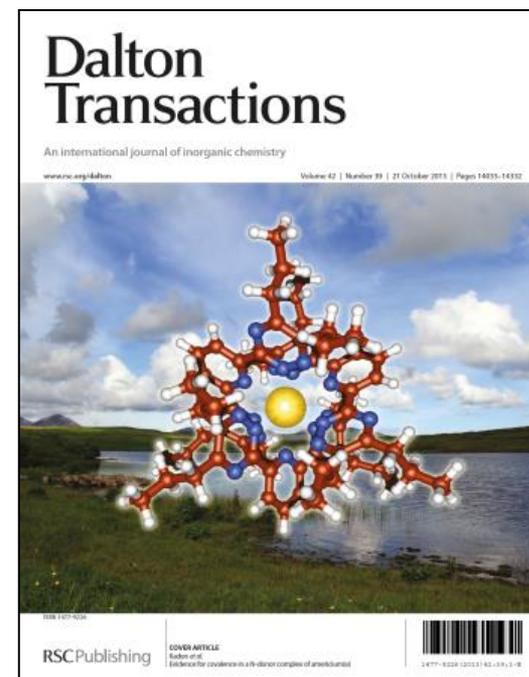
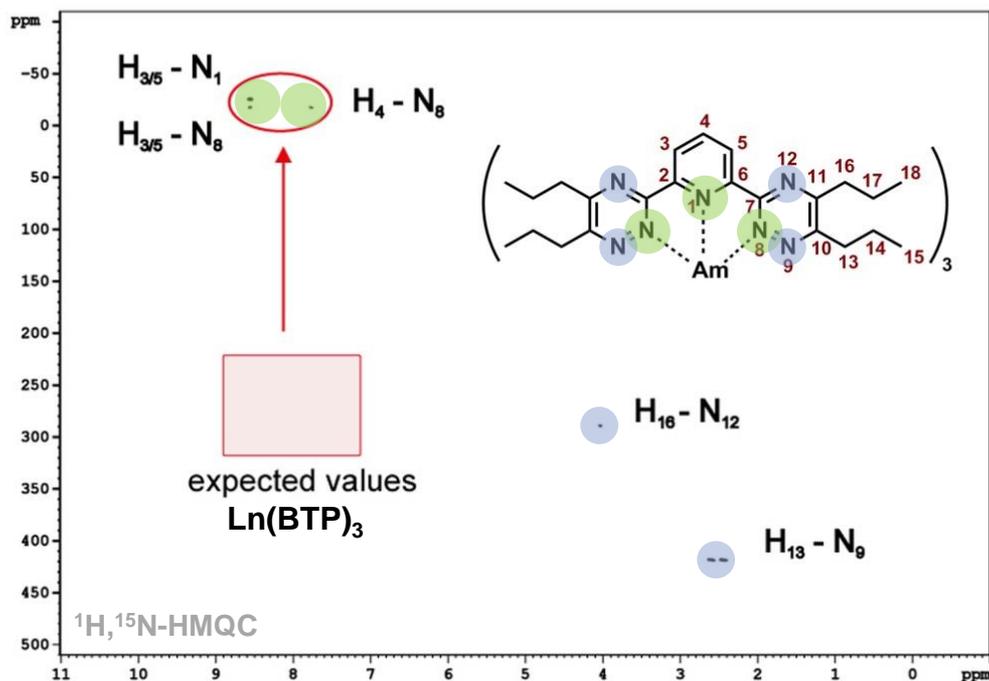


Synthesis of partially  $^{15}\text{N}$  labeled nPr-BTP:



# Separation chemistry – cause of selectivity

- Bonding mode differences in Am(III) / Ln(III) complexes



- ...first substantial support for the thesis that covalent interactions between ligand and metal ions are major contributors to the ligands' extraction selectivity towards trivalent actinide cations...

Adam, Kaden, Beele, Müllich, Trumm, Geist, Panak, Denecke, *Dalton Transactions*, 2013, **42**, 14068-14074.

# Acknowledgment

## Thanks

- ... to the researchers of the f-Kom consortium
- ... for financial support
- ... for your attention

SPONSORED BY THE



Federal Ministry  
of Education  
and Research

Facility of the EURATOM FP7 program

**EURACT**  **nmr**  
Trans-national Access to Unique European Actinide and Radiological NMR Facilities

**BMBF 2020+ project 02NUK020**

# Second Joint Student Workshop on *f*-Element Chemistry



# bwgvhotel.

AkademieHotel KARLSRUHE

09.-11. Juni 2015

Save the date!



  SPONSORED BY THE  
 Federal Ministry of Education and Research  
BMBF 2020+ project 02MUK020

## Second Joint Student Workshop on *f*-Element Chemistry

9<sup>th</sup> to 10<sup>th</sup> June 2015  
at AkademieHotel, Karlsruhe, Germany

The target audience are PhD students or post-docs working in *f*-element chemistry. The workshop is jointly organized by KIT-INE and The University of Manchester and sponsored by the German BMBF-funded project "f-Kom".

To apply please write an email to [fkom@ine.kit.edu](mailto:fkom@ine.kit.edu)  
CC Peter Kaden@kit.edu and Louise Natrajan@manchester.ac.uk

Please include a title and a short abstract for your presentation.

All participants are asked to present a poster. From all contributions 22 are selected to present their work in a short talk (15 min + 5 min of discussion). Please use the provided abstract template.

**Registration deadline 30.03.2015**  
**Registration is free!**



For more information please don't hesitate to contact the organizers.

Looking forward to meeting you in Karlsruhe!

[www.kit.edu](http://www.kit.edu)



GEFÖRDERT VOM

Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

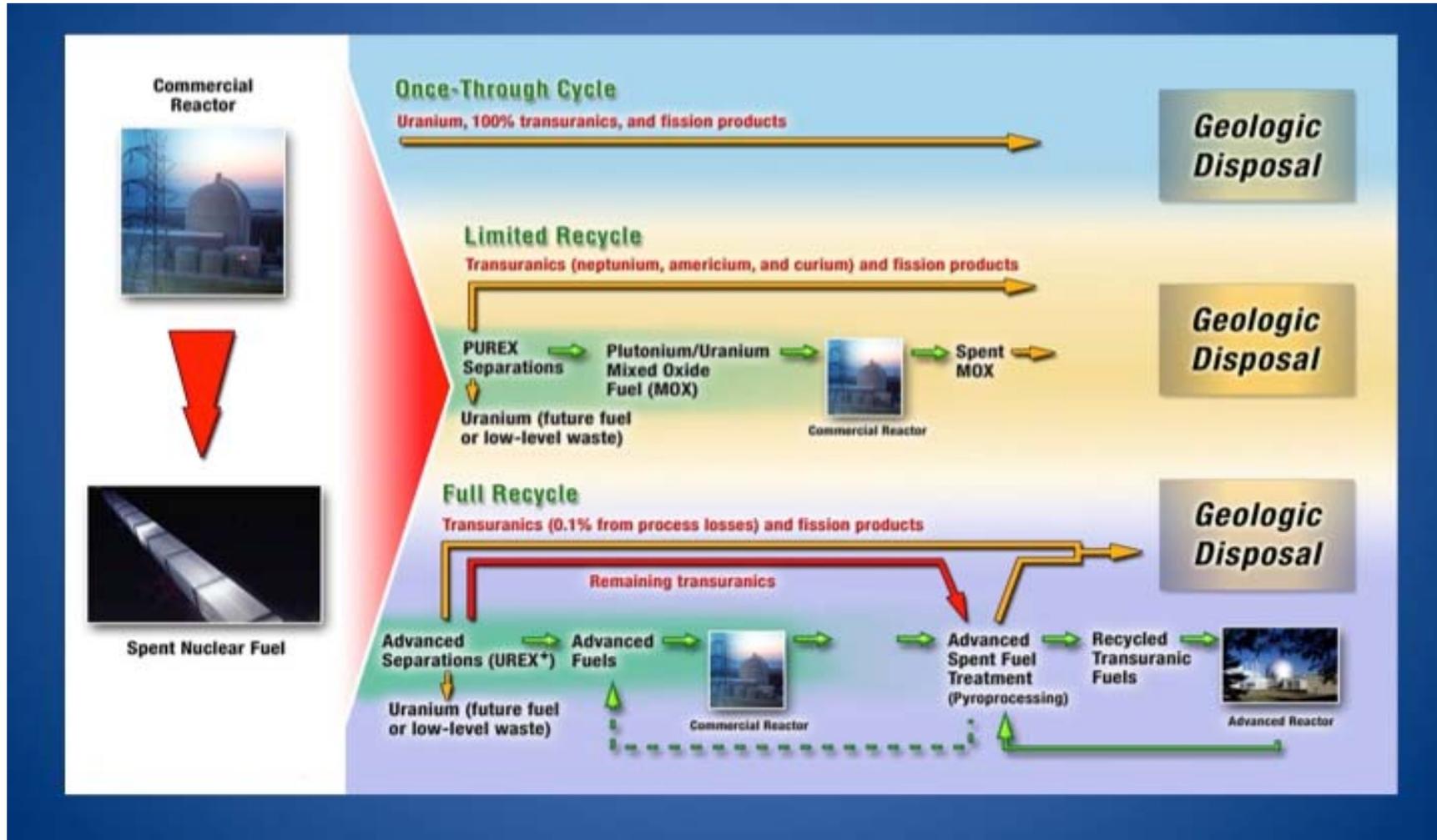
**02NUK021**



## Grundlegende Untersuchungen zur Immobilisierung langlebiger Radionuklide mittels Einbau in endlagerrelevante Keramiken (Conditioning)

**Dr. Stefan Neumeier**

# Advanced Nuclear Fuel Cycles



Courtesy: R. Ewing

# Potential waste forms

## Spent fuel

- $\text{UO}_2$  fuel



## Glasses

- Borosilicate glasses
  - Ln-, Pb-, Ca-borosilicate
- Alkali-Tin-Silicate glasses
- Phosphate glasses
  - Fe-, Al-phosphate



## Glass ceramics

## Ceramics

- polyphase
  - „Synroc“  
(zirconolite, perovskite, hollandite, etc)
- singlephase
  - Pyrochlore  $\text{A}_2\text{B}_2\text{O}_7$  (e.g.  $\text{Nd}_2\text{Zr}_2\text{O}_7$ )
  - Zirconolite  $\text{CaZrTi}_2\text{O}_7$
  - Monazite  $(\text{REE, Th})\text{PO}_4$



# Why ceramic materials?

## Natural analogues

often contain significant amounts of Th and U (up to 27%) without any significant indication of radiation damage. The age of these analogues has been determined with several billions of years

## Adaption to specific waste streams

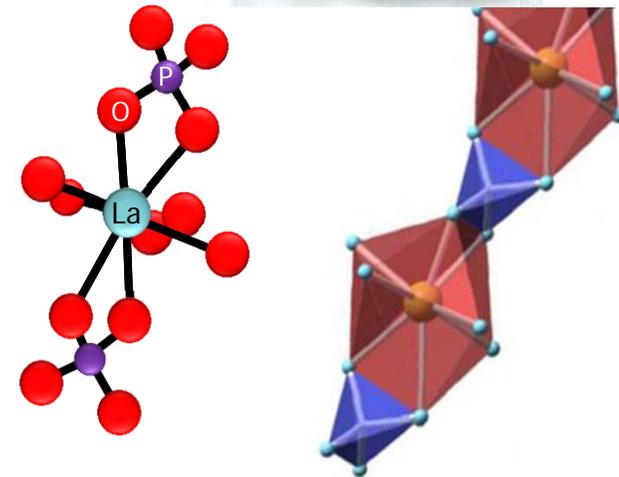
Ceramics can be tailor-made for specific waste streams, e.g. actinides

## Decrease of waste volume

High loading due to incorporation of Actinides on defined lattice sites

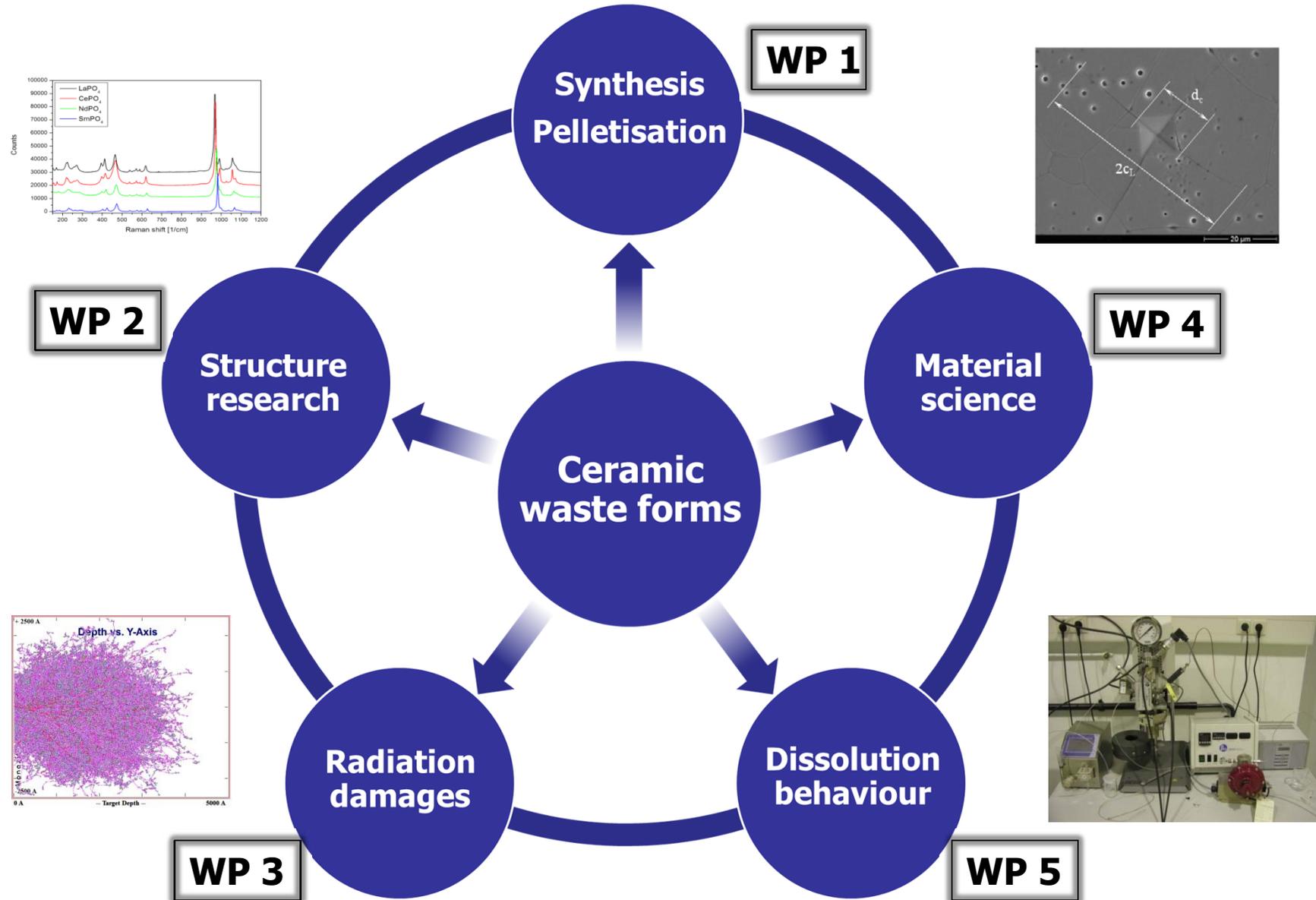
## Favourable chemical and physical properties

High chemical stability and high radiation tolerance



Clavier et al. 2011; Ni et al. 1995

# Methodology to study ceramic waste forms



# BMBF Project „Conditioning“

## Basic data

- 8 partners
- coordination by IEK-6
- Oct. 2012 – March 2016
- 2.1 Mio. Euro

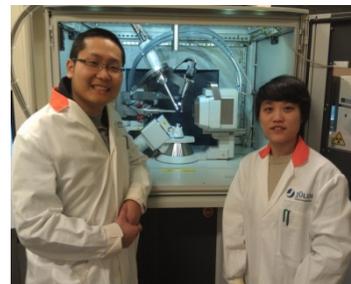
## Materials

- Apatite,
- LDH
- Pyrochlore (Oxides)
- Monazite (Phosphates)



## Investments

- Single Crystal Diffractometer
- Glovebox
- Summer School
- Young scientists



Yu et al.: *Inorg. Chem.* **53**(16), 8194-8196 (2014)  
Yu et al.: *Inorg. Chem.* **53**, 11231–11241 (2014)  
Yu et al.: *J. Solid State Chem.* **215**, 152–159 (2014)

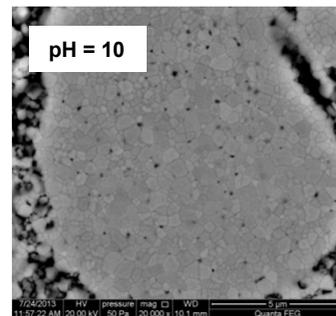
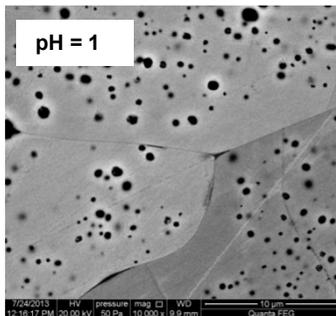
# Project partner



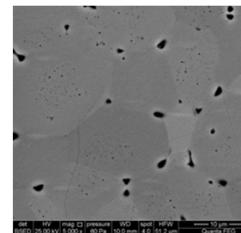
**Coordination: FZJ-IEK6; Dr. Stefan Neumeier**

# WP1: Synthesis & fabrication

- Development of synthesis routes suitable for safe handling of radioactive materials
  - Solid state reaction
  - Wet chemical routes (sol-gel, hydrothermal synthesis, co-precipitation)
- Investigation of influence of synthesis route on microstructure



- Optimisation of sintering conditions
  - Cold-pressing & sintering
  - Hot pressing → high density



# WP1: Synthesis of single crystals

## 1. Fluxmethode:

a) Synthesis of  $\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5}\text{PO}_4$  starting material:



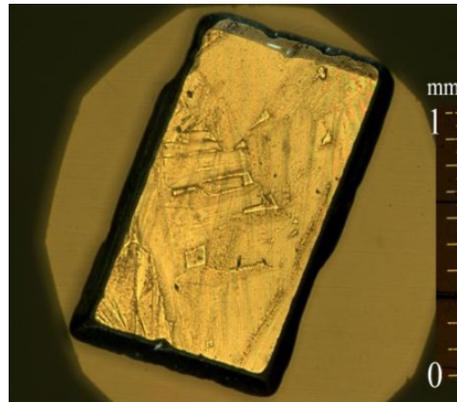
b) Flux-growth:

$\text{Ln}(\text{La}_{0.5}\text{Eu}_{0.5}\text{PO}_4) : n(\text{flux}) = 2:100$

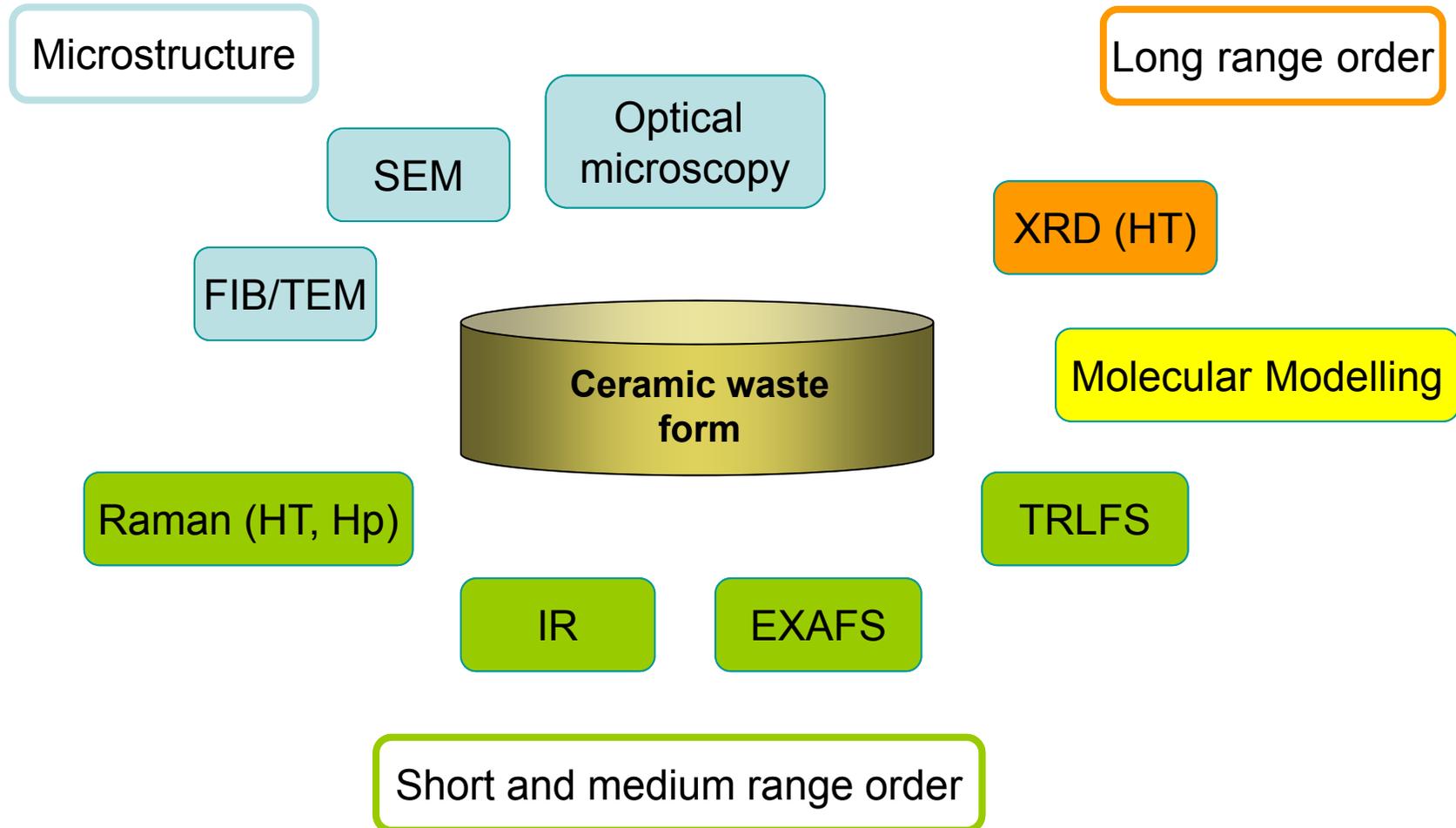
Flux:  $\text{Li}_2\text{MoO}_4$  ( $\text{MoO}_3$  und  $\text{Li}_2\text{CO}_3$ )

Parameters:

1250°C, 15h subsequent cooling 3°C /h or lower



## WP2: Characterisation



## WP2: Extended X-ray Absorption Spectroscopy (EXAFS)

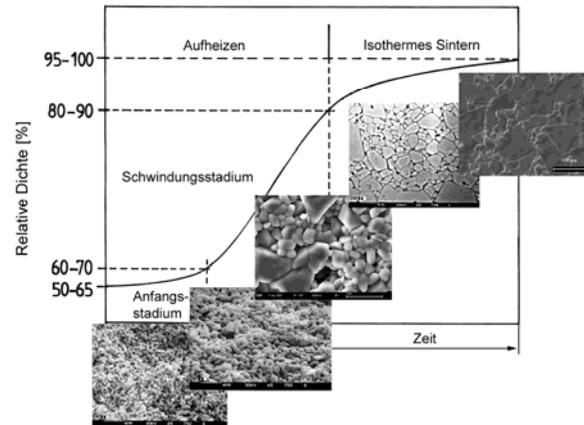


- **La<sub>(1-x)</sub>Eu<sub>x</sub>PO<sub>4</sub> system:**
  - La-O distances decreasing with increasing of % Eu content
  - La-Ln shorter distances decreasing linearly with increasing % Eu content
  - At longer La-Ln distances the behavior is not more linear

# WP4: Sintering

## 1. Evolution of microstructure

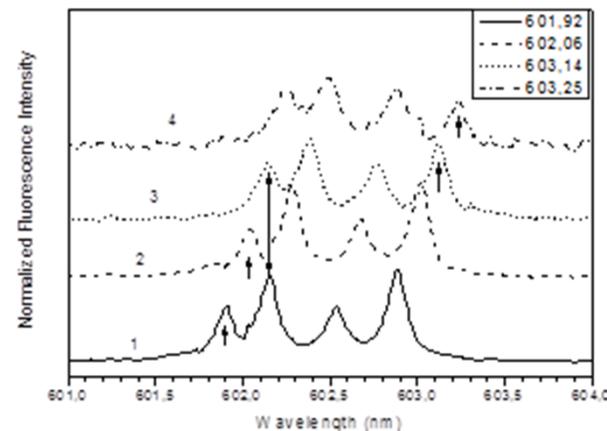
Anja Wätjen, Charlotte Schausten,  
Yulia Arinicheva, Prof. R. Telle



## 2. Solid solution formation

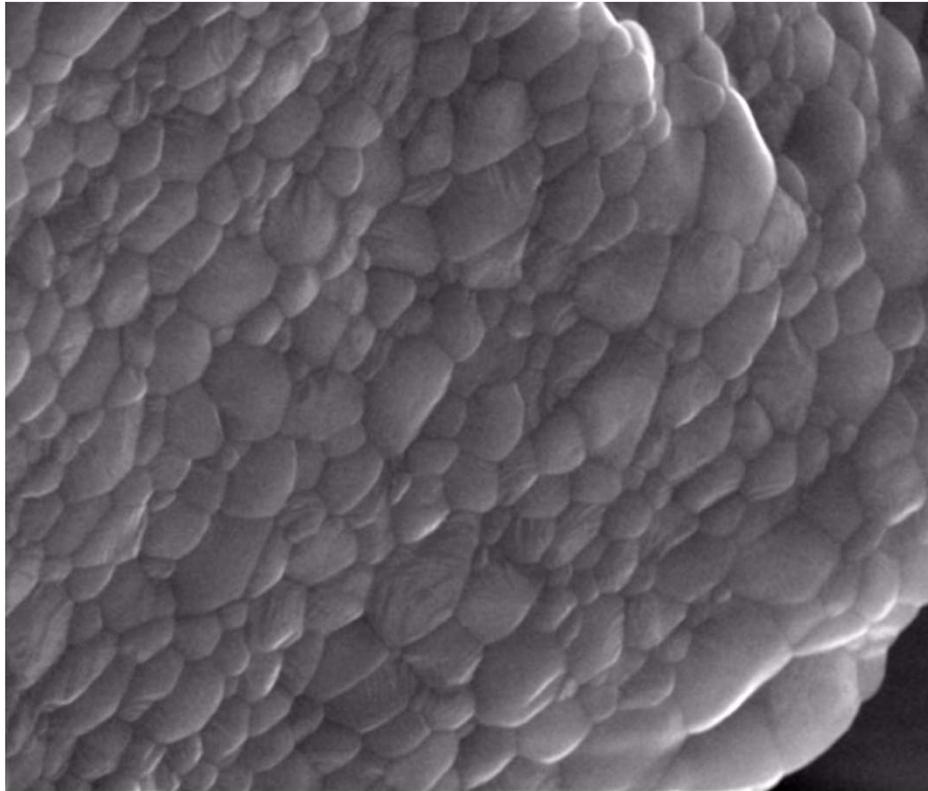
- *In-situ* HT-XRD and HT-Raman
- TRLFS

Nina Huittinen, Yulia Arinicheva,  
Prof. T. Stumpf



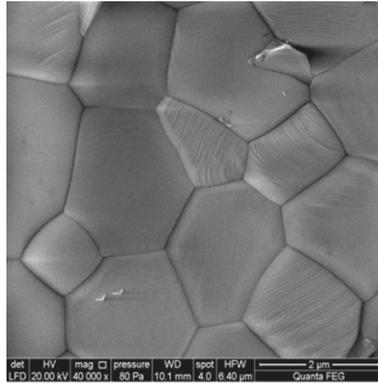
## WP4: Sintering

- Evolution of microstructure  
*In-situ* HT-ESEM investigation

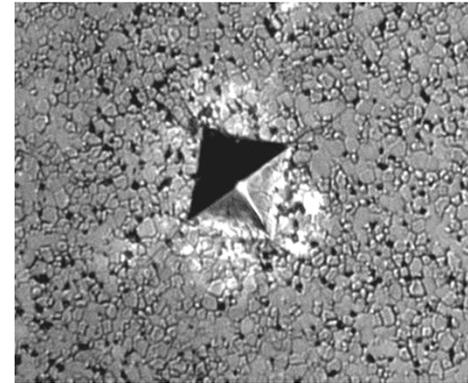


- Grain growth is controlled through grain-boundary mobility

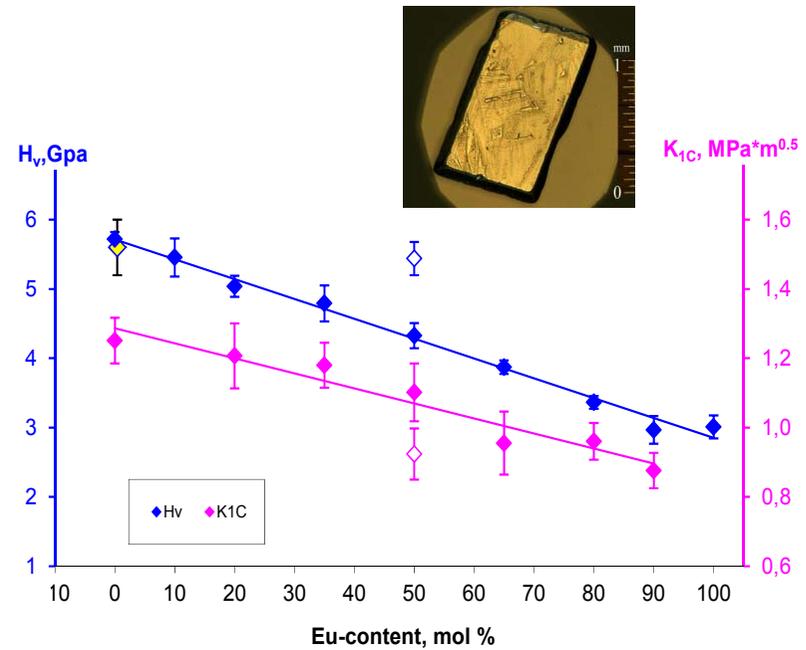
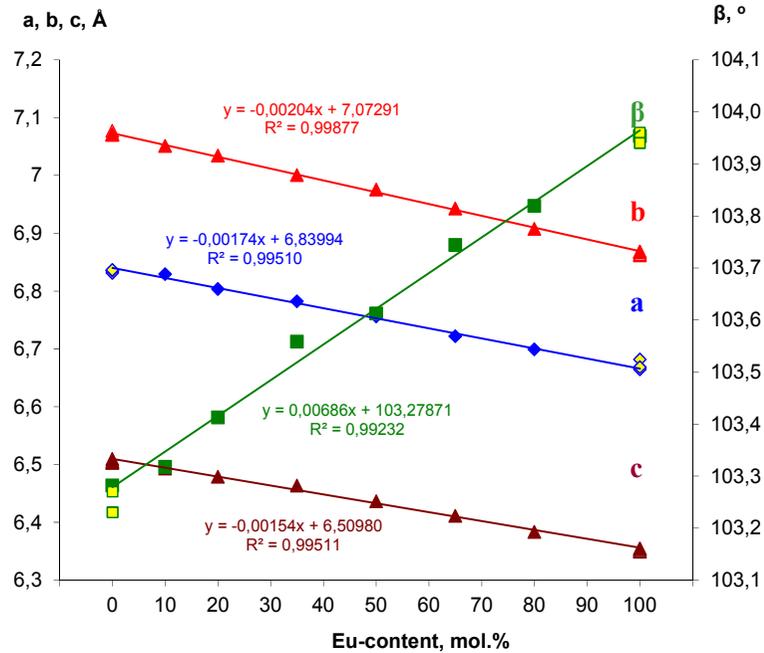
# WP4: Mechanical properties



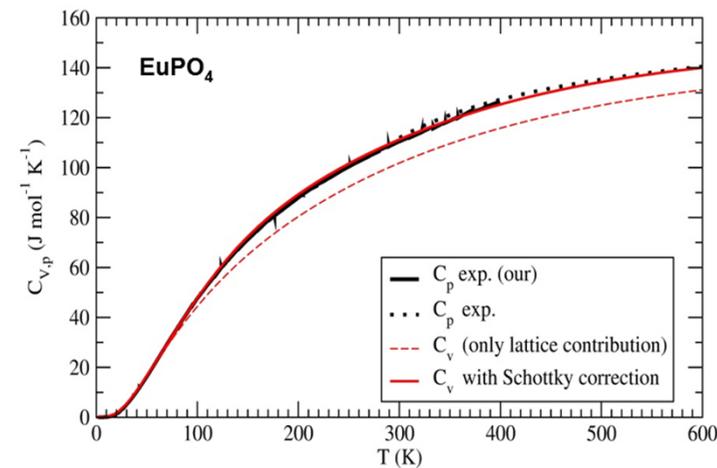
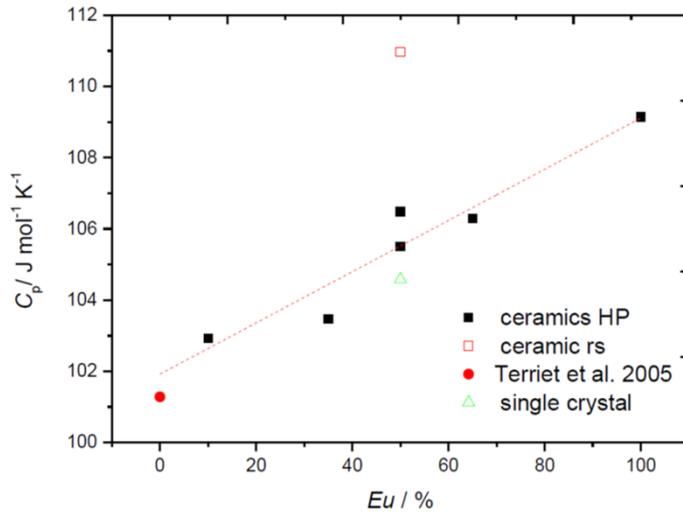
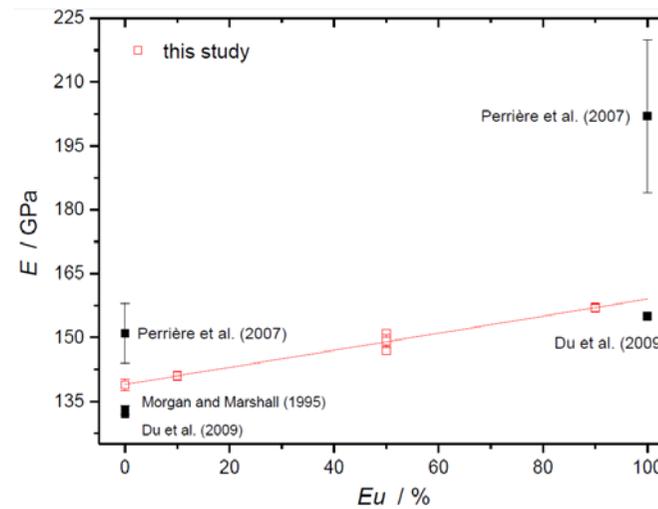
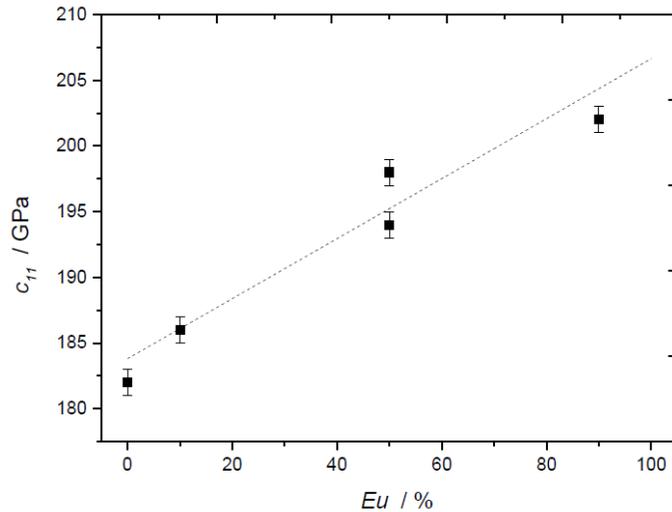
**Microstructure**



**Vicker's hardness**



# WP4: Physical properties



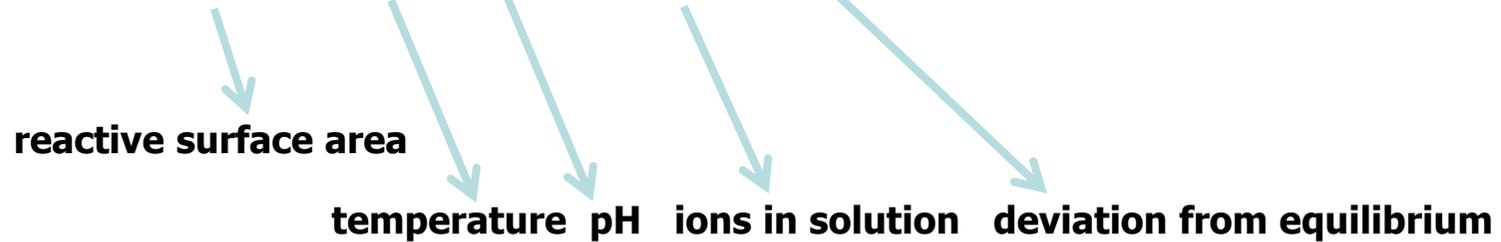
## ➤ Linear dependence of elastic coefficient and Young's Modulus

Anja Thust, Johannes Bauer, Yulia Arinicheva  
Prof. B. Winkler

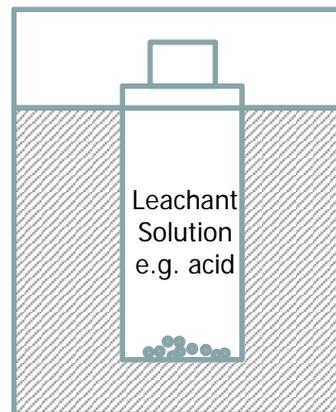
Perrière L. et al. (2007) J. Eur. Ceram. Soc. 27, 3207-3213.  
Morgan, P.E.D. and Marshall, D.B. (1995) J. Am. Ceram. Soc. 78, 1553-1563.  
Du, A. et al. (2009) J. Am. Ceram. Soc. 92, 2687-2692.

## Mineral dissolution kinetics according to Transition - State Theory

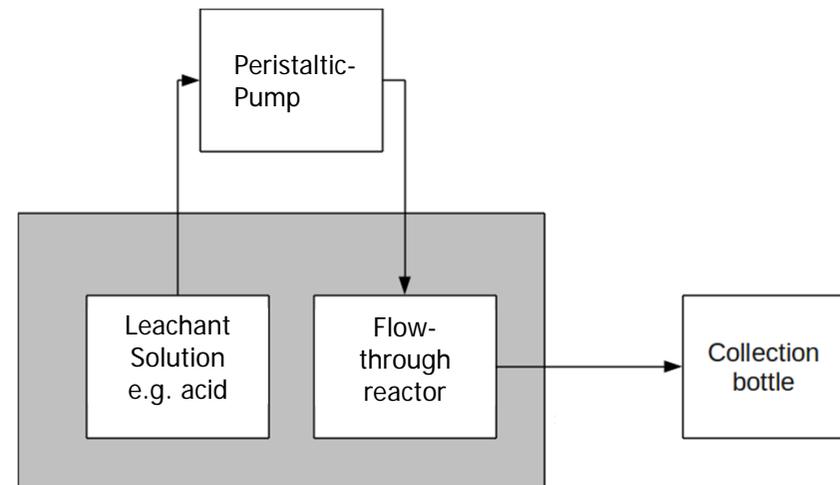
$$\text{Rate} = k_0 \cdot A_{\text{reactive}} \cdot e^{-E_a/RT} \cdot C_{\text{H}^+}^{n_{\text{H}^+}} \cdot \prod C_i^{n_i} \cdot f(\Delta G_r)$$



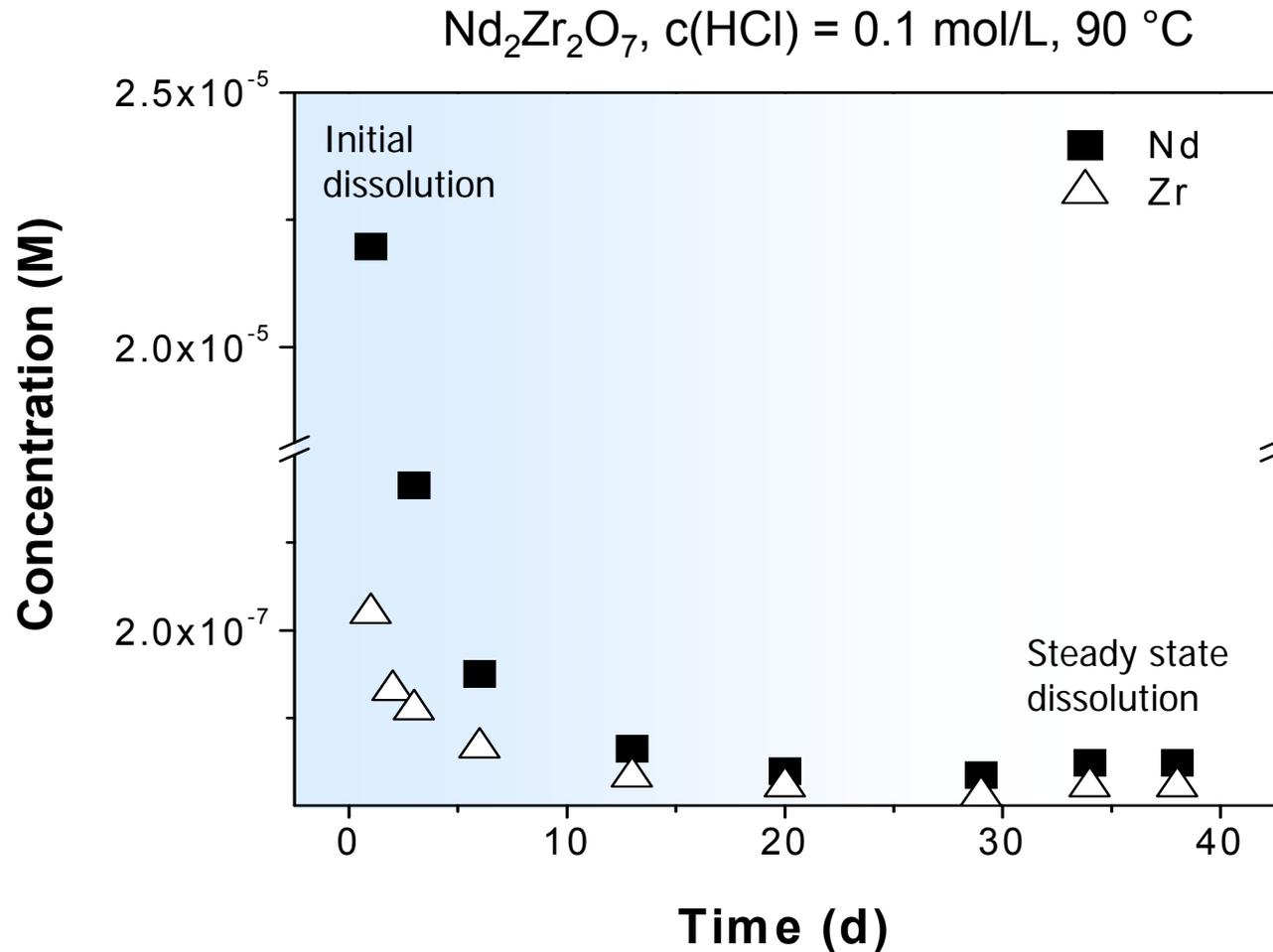
Static



Dynamic



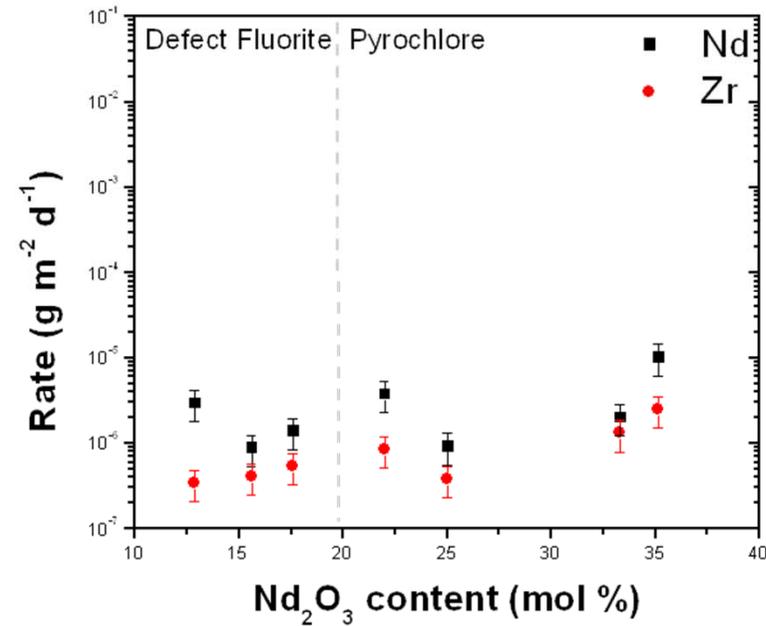
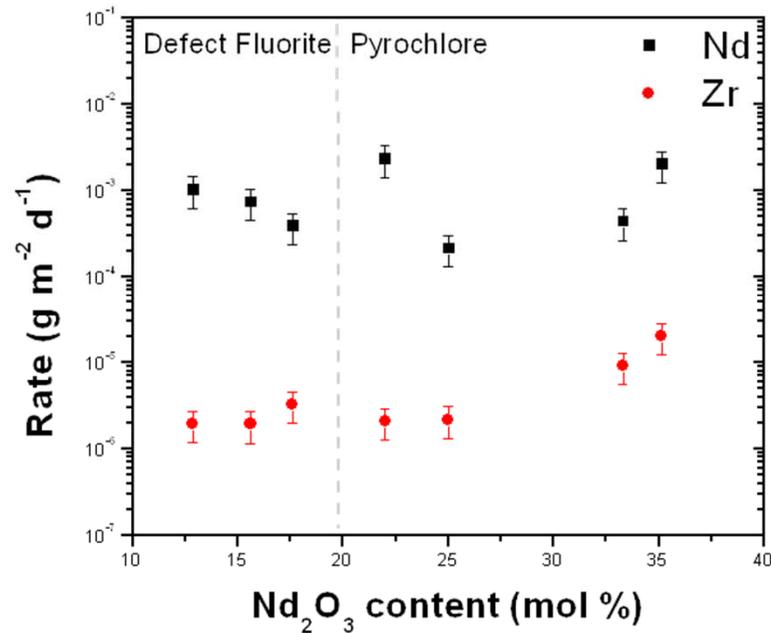
## WP5: Dynamic experiments – results



- Initial dissolution is non-stoichiometric compared to the solid composition
- Approach of a stoichiometric steady state dissolution

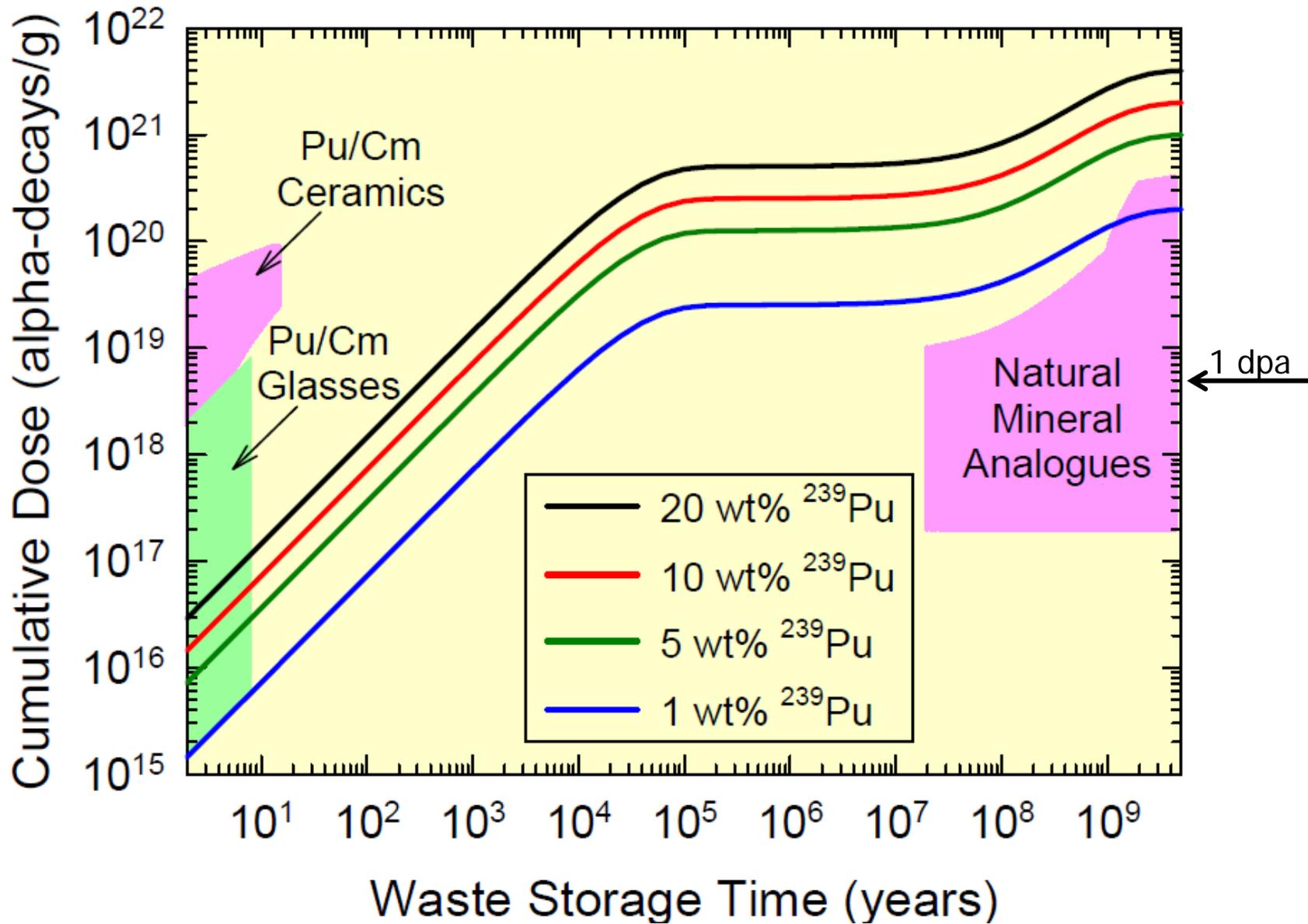
# WP5: Effect of chemical composition

**Initial dissolution** (90 °C,  $c(\text{H}^+) = 0.1 \text{ n}$ ) **Steady state dissolution**



- Dissolution of non-stoichiometric pyrochlore and defect fluorite solid solutions
- Strongly preferential release of Nd during initial dissolution
- Dissolution kinetics similar for all compositions

# WP3: Radiation stability



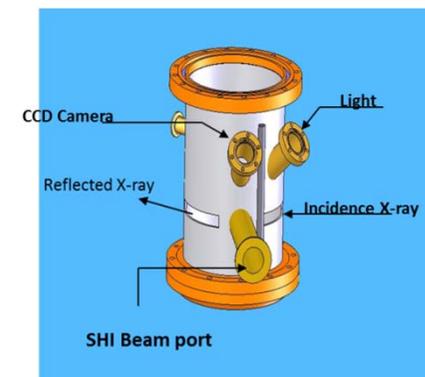
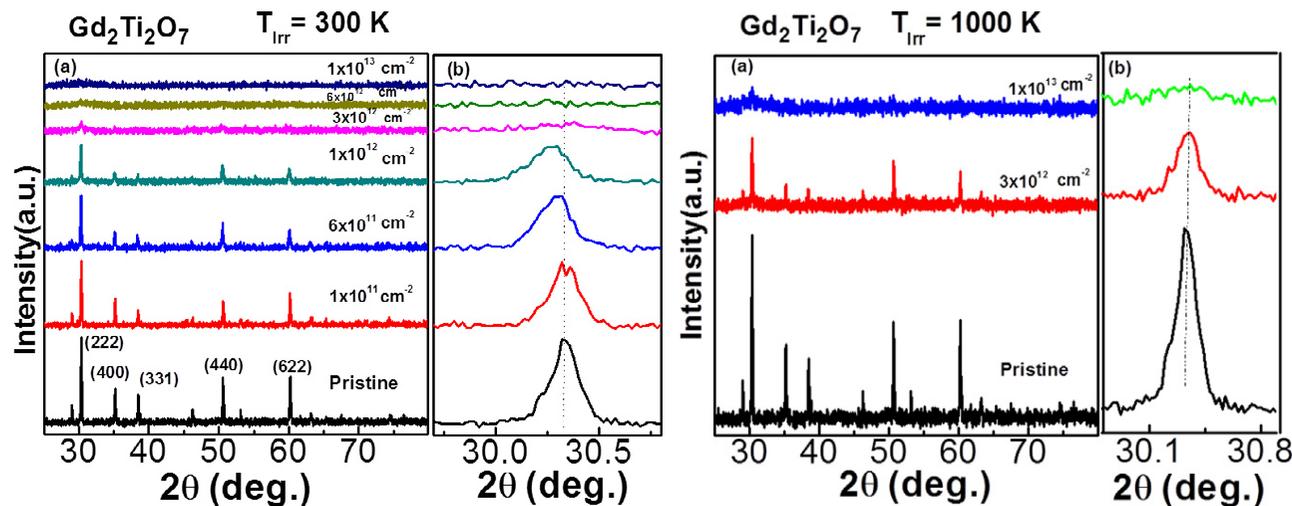
Courtesy: W. Weber

# WP3: Radiation damages

- Irradiation of zirconate ceramics
- Irradiation of phosphate ceramics
- XRD and Raman (incl. *In-situ*) studies in dependence of:
  - Chemical composition
  - Temperature
  - Ion fluence
  - Energy



Inter-University Accelerator Centre,  
New Delhi, India



# International Summer School

**When:** 07<sup>th</sup>-09<sup>th</sup> July 2014

**Where:** GSI Bad Godesberg (Gustav Stresemann Institut)

**Who:** 59 participants from France, Russia and Germany

18 lectures

37 poster



# BMBF „Conditioning“ Session at MRS 2015

## Scientific Basis for Nuclear Waste Management

**When:** November 2<sup>nd</sup> to 6<sup>th</sup>, 2015

**Where:** Montpellier, France

**Organisation:** Young scientists & me

**Abstract deadline:** April 27<sup>th</sup>, 2015



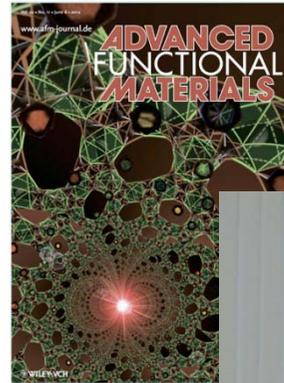
# Publications & awards

12 Paper (accepted)

22 Poster

3 have been awarded

27 Presentations  
&  
7 invited talks



Dr. Sarah Finkeldei →  
Promotionspreis Fachgruppe Nuklearchemie der Gesellschaft Deutscher Chemiker  
(GDCh)

# Summary & Outlook

## ➤ **Network works perfectly**

- Interesting topic
- Good combination of different expertise of project partners, but with scientific overlaps
- Well educated and highly motivated young scientist
- .....

## ➤ **High output**

- Results of high quality in all WPs
- High international visibility number of presentations at national & international conferences
- Remarkable number of publications in renowned journals
  - More will follow this and next year

## ➤ **What's next?**

- Final experiments until end of year
- Publication in journals & BMBF report
  
- Keeping the network & competence

 **Conditioning 2**

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

**02NUK021**



***„Thank you for your kind attention“***

# Verbund

## „Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen“



**HelmholtzZentrum münchen**  
Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt



Technische Universität München



Friedrich-Schiller-Universität Jena

gefördert vom



02NUK030  
06/2013 – 05/2017

Koordination:  
Jochen Tschiersch, HMGU  
Kerstin Hürkamp, HMGU

# Ziele des Verbundes

- Abschätzung der Strahlenexposition des Menschen über aquatische Expositionspfade
- Verständnis der hydrogeochemischen und biologischen (mikrobiellen) Prozesse bei der Freisetzung und beim Transport von Radionukliden
- Bewertung der Sensitivität von unterschiedlichen Reservoirien (fluviale Systeme, Grundwasser, Trinkwasser, Abwassersysteme) bzgl. Radionuklideinträgen
- Erstellung von Prognosemodellen für die Radionuklidausbreitung
- Bewertung der gesundheitlichen Risiken und Auswirkungen auf den menschlichen Körper (Strahlenrisikoanalyse)
- Erarbeitung von Strategien zur Minimierung der Exposition

gefördert vom

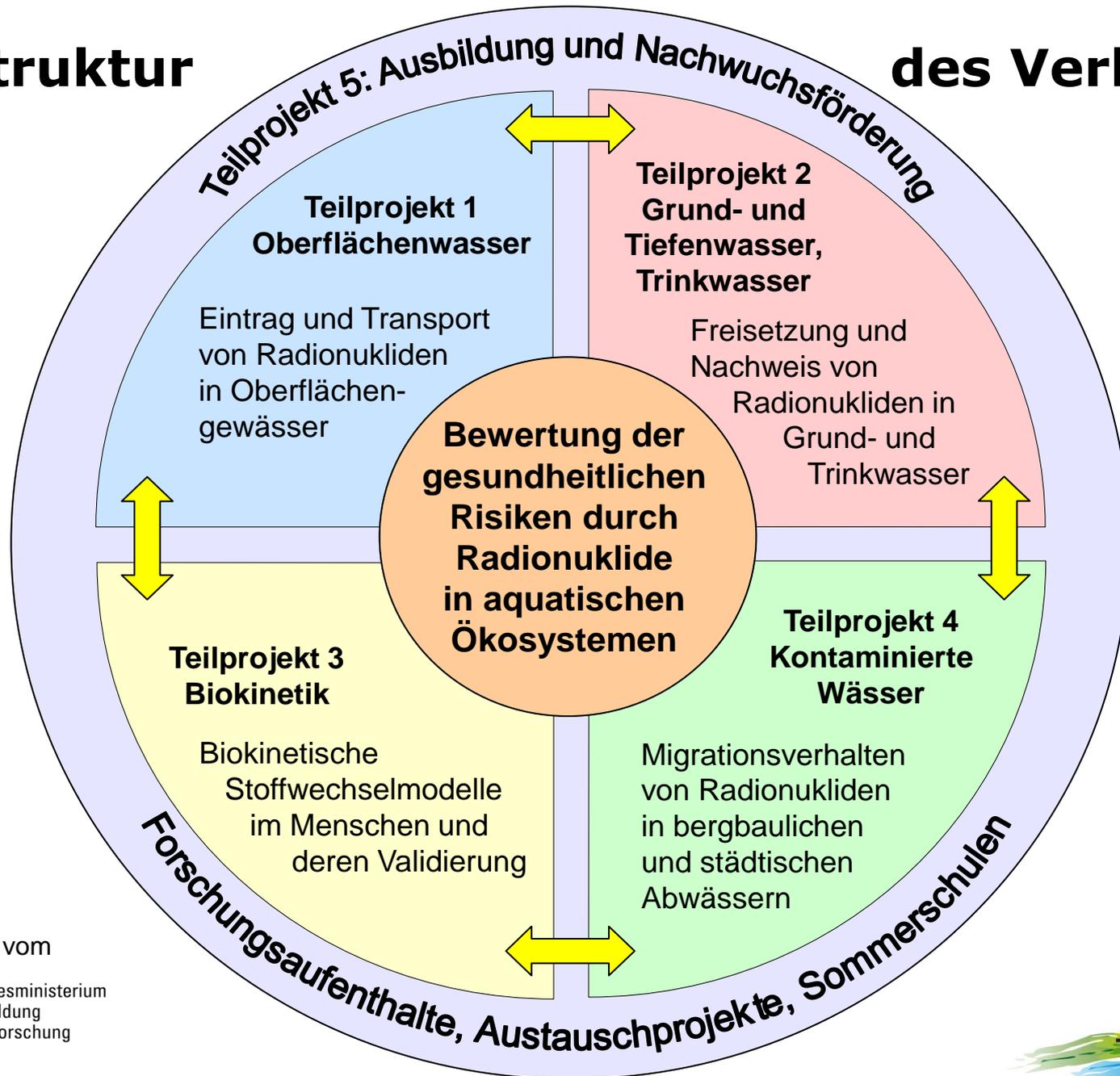


Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung



# Struktur

# des Verbundes



gefördert vom



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

# TransAqua- Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen

## Teilprojekt 1: Oberflächenwasser

**1.1** Natürliche und künstliche Radionuklide als Tracer in fluvialen Systemen  
H. Fischer  
(Universität Bremen)

**1.2** Transport von Radionukliden von einem Schneefeld in Vorfluter: Bilanzierung am Beispiel des Reintals, Zugspitze  
K. Hürkamp, J. Tschiersch  
(Helmholtz Zentrum München)

**1.3** Das Verhalten von Plutonium in der Schnee-Hydrosphäre  
T. Shinonaga  
(Helmholtz Zentrum München)

**1.4** Messung und Modellierung der Verteilung und des Transportes von Radiocäsium in einem eutrophen Seesystem  
E. Klemt  
(Hochschule Ravensburg-Weingarten)

**1.5** Nachweis langlebiger Spaltprodukte in aquatischen Ökosystemen mit Beschleuniger-Massenspektrometrie  
G. Korschinek, T. Faestermann  
(Technische Universität München)

## Teilprojekt 2: Grund- und Tiefenwasser, Trinkwasser

**2.1** Entwicklung eines Detektors zum empfindlichen Online-Nachweis von Radionukliden im (Trink-)Wassernetz  
B. Breustedt, C. Wilhelm  
(Karlsruher Institut für Technologie)

**2.2** Sensitivität von Trinkwasserreservoirs im Bezug auf den Eintrag von künstlichen Radionukliden  
B. Riebe (Universität Hannover)

**2.3** Freisetzung von Radium an der Grenzfläche Gestein-Wasser  
M. Köhler, D. Degering, D. Walther (VKTA Dresden)

**2.4** Hydrogeochemischer und mikrobieller Einfluss auf den Transfer von Radionukliden im Grund- und Tiefenwasser  
G. Büchel, E. Kothe  
(Universität Jena)

**2.5** Untersuchung und Bewertung des reaktiven Stofftransports von Radionukliden in heterogenen Grundwassersystemen  
P. Maloszewski, C. Stumpp  
(Helmholtz Zentrum München)

## Teilprojekt 3: Biokinetische Modelle

**3.1** Untersuchungen zur Biokinetik inkorporierter Radionuklide aus aquatischen Ökosystemen zur verbesserten Dosisabschätzung  
U. Oeh, V. Höllriegel, W. Li  
(Helmholtz Zentrum München)

**3.2** Spektroskopische Bestimmung der Bindungsform (Speziation) trivalenter Actinide/Lanthanide in Biofluiden des menschlichen Gastrointestinaltraktes  
A. Barkleit  
(Helmholtz Zentrum Dresden-Rossendorf)

## Teilprojekt 4: Kontaminierte Wässer

**4.1** Bestimmung und Modellierung der Partitionierung von künstlichen und natürlichen Radionukliden in Klärschlamm und Abwasser  
H. Fischer, V. Hormann  
(Universität Bremen)

**4.2** Abschätzung der radiologischen Auswirkungen von Nuklearunfällen auf die städtische Trinkwasserversorgung und Stadtentwässerung  
J.C. Kaiser  
(Helmholtz Zentrum München)

**4.3** Untersuchungen zu den Wechselwirkungen zwischen unter Tage lebenden Mikroorganismen mit Uran  
T. Arnold  
(Helmholtz Zentrum Dresden-Rossendorf)

## Teilprojekt 5: Ausbildung und Nachwuchsförderung

### Forschungsaufenthalte, Austauschprojekte, Sommerschulen

W. Rühm (Helmholtz Zentrum München), B. Breustedt (Karlsruher Institut für Technologie), E. Kothe (Universität Jena)

# Geplanter Gewinn und Nutzen des Verbundes

- Exzellente Beiträge zu den wissenschaftlichen Fragestellungen
- Empfehlungen für Behörden
- Zusammenarbeit im Verbund
- Ausbildung von wissenschaftlichem Nachwuchs  
(8 Doktoranden, 12 Postdocs)
- Bildung einer radioökologischen Community  
(9 führende deutsche Radioökologie-Organisationen)

gefördert vom



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung



# Teil 2 - Ergebnisse



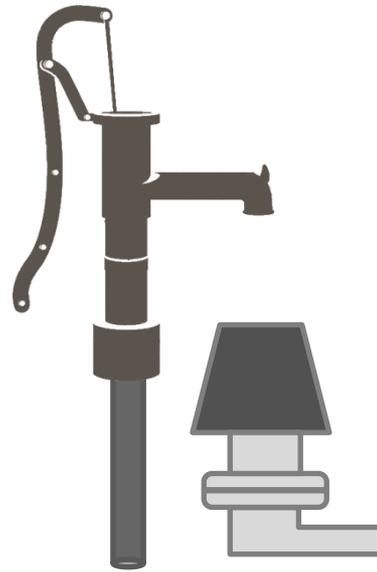
## Kontaminierte Wässer

- Städtische Abwässer
- Bergbaubürtige Wässer

## Oberflächenwasser

- Flüsse
- Seen
- Schneedecke

## Biokinetische Modelle



## Grund- und Tiefenwasser, Trinkwasser

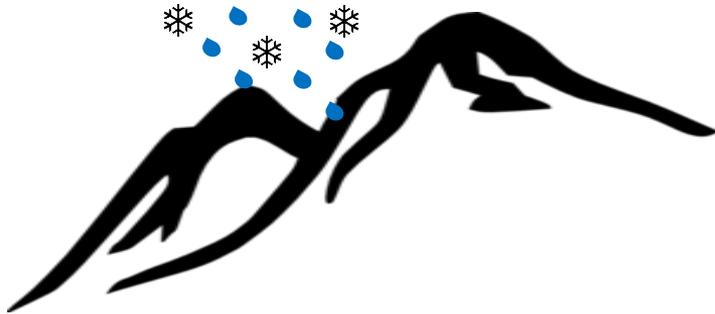
gefördert vom



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung



# TP 1 - Oberflächenwasser



## AP 1.1: Radionuklide als Tracer in fluvialen Systemen

H. Fischer, Uni Bremen

## AP 1.2: Transport von Radionukliden in Schnee und Schmelzwasser

K. Hürkamp, J. Tschiersch, HMGU

## AP 1.3: Verhalten von Plutonium im Schnee

T. Shinonaga, HMGU

## AP 1.4: Verteilung und Transport von Radiocäsium in Seen

E. Klemt, HS Ravensburg-Weingarten

## AP 1.5: Nachweis langlebiger Spaltprodukte mit Beschleuniger-Massenspektrometrie

G. Korschinek, TUM



gefördert vom

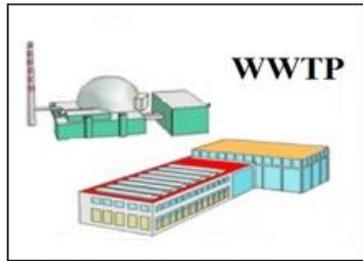


Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung





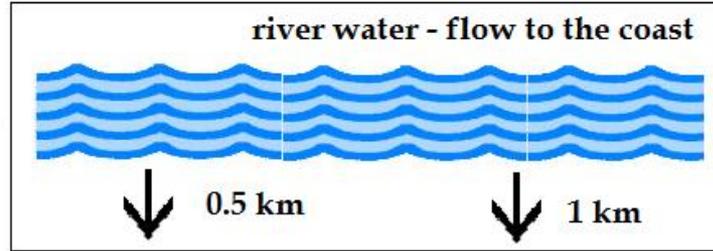
# Messung und Modellierung des Transfers im Fluss- (AP 1.1) und Seesystem (AP 1.4)



I-131 : 327 mBq/kg



I-131 : 87 mBq/kg  
Dilution: 4

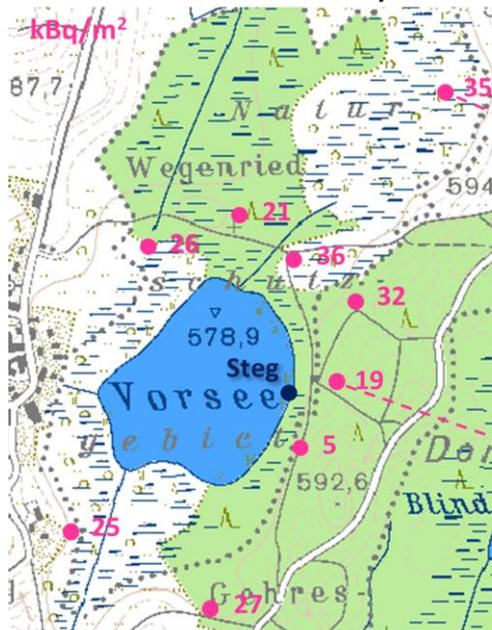


I-131 : 2.4 mBq/kg  
Dilution : 135

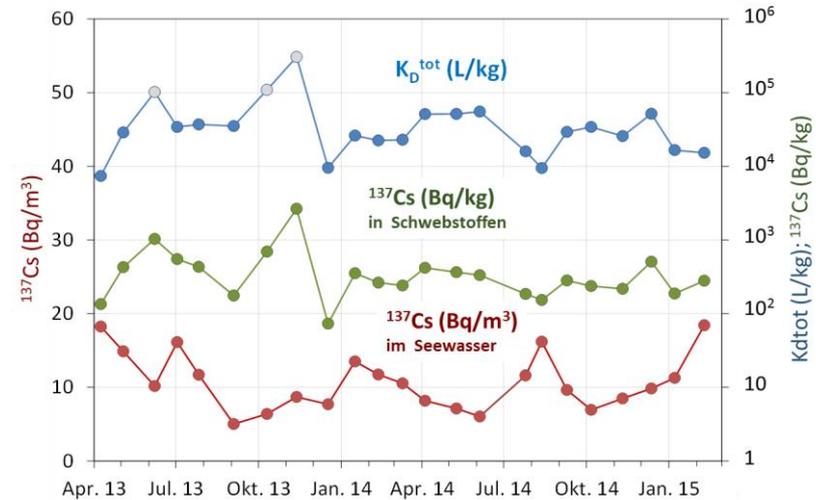
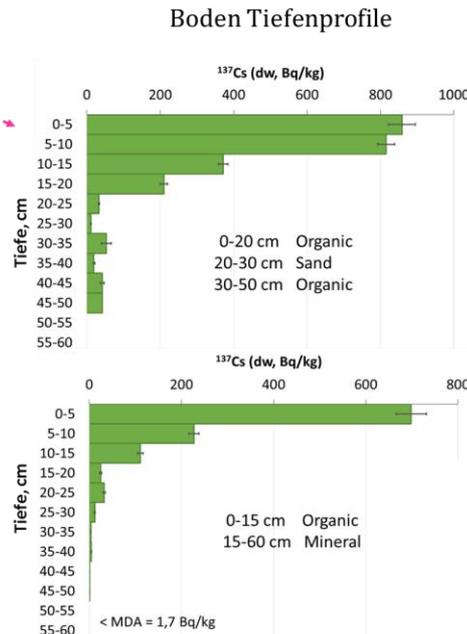
I-131 : < 1.4 mBq/kg  
Dilution : > 237

I-131 in  
Weser-  
Wasser  
bei Bremen

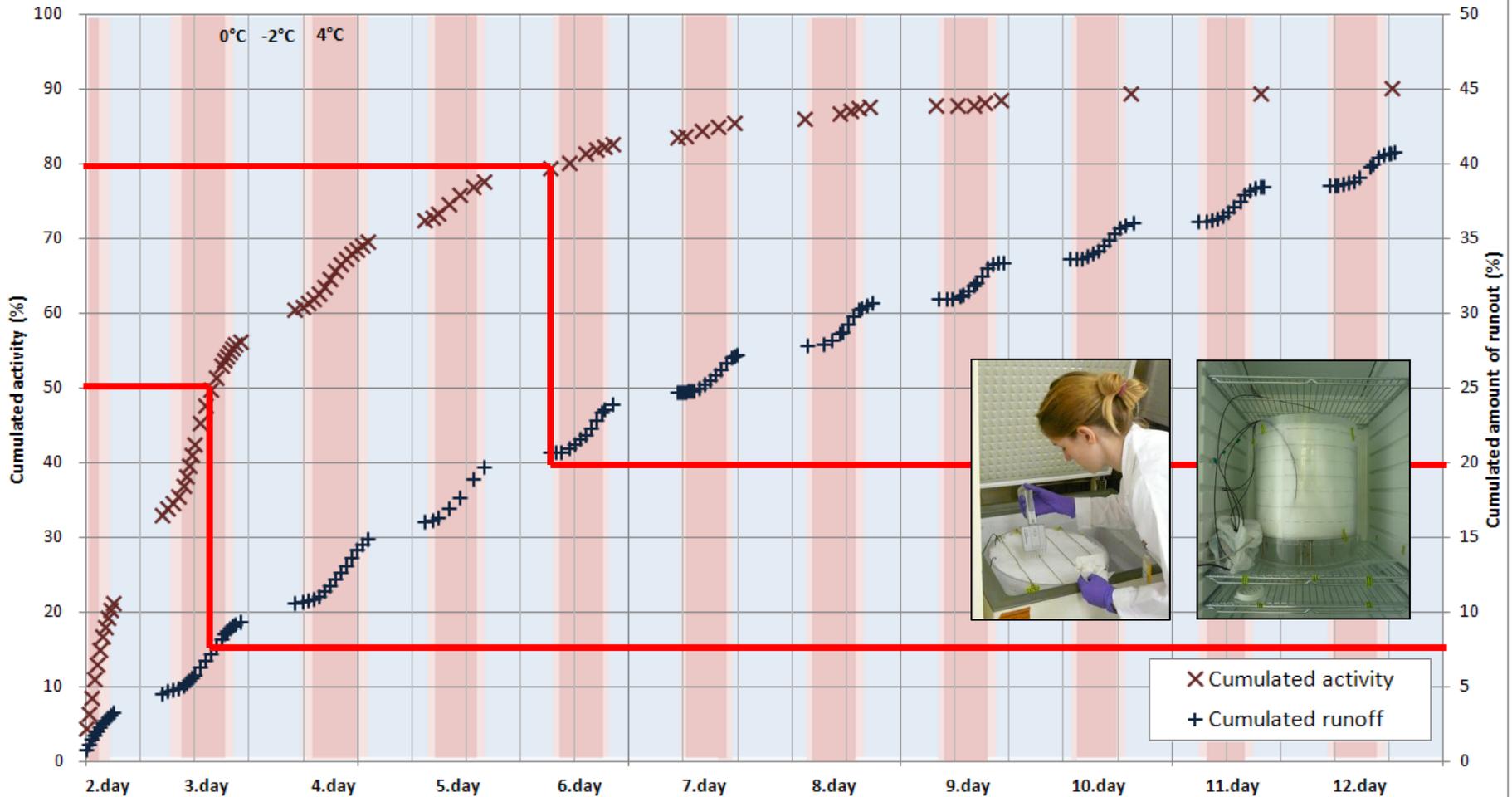
## Cs-137 in Boden, Wasser und Schwebfracht des Vorsees



auf den 01.05.1986 zerfallskorrigiert



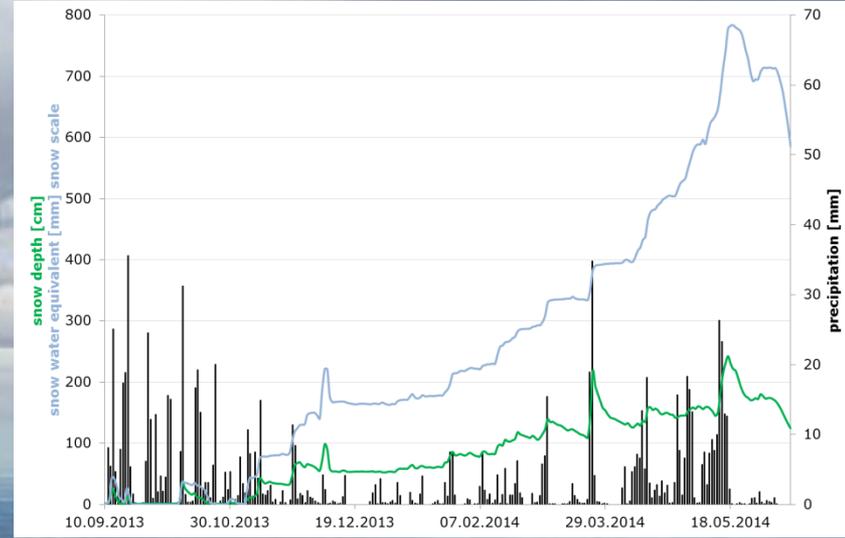
# Tracer-Versuche mit $^{134}\text{Cs}$ und $^{85}\text{Sr}$ in Schneesäulen



50 % der Radionuklide in ersten 7 % des Schmelzwassers enthalten,  
~80 % werden mit ersten 20 % des Schmelzwassers freigesetzt!

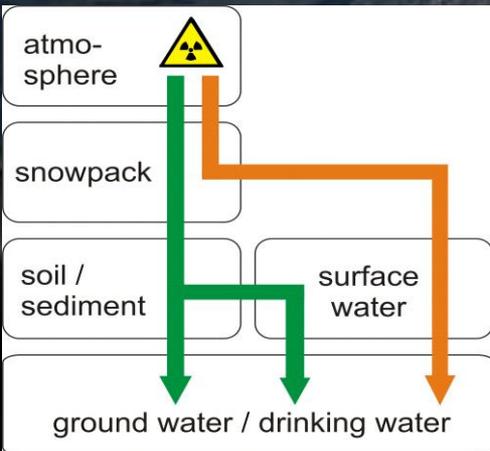
# Bilanzierung der Radionuklide in Schnee und Schmelzwasser

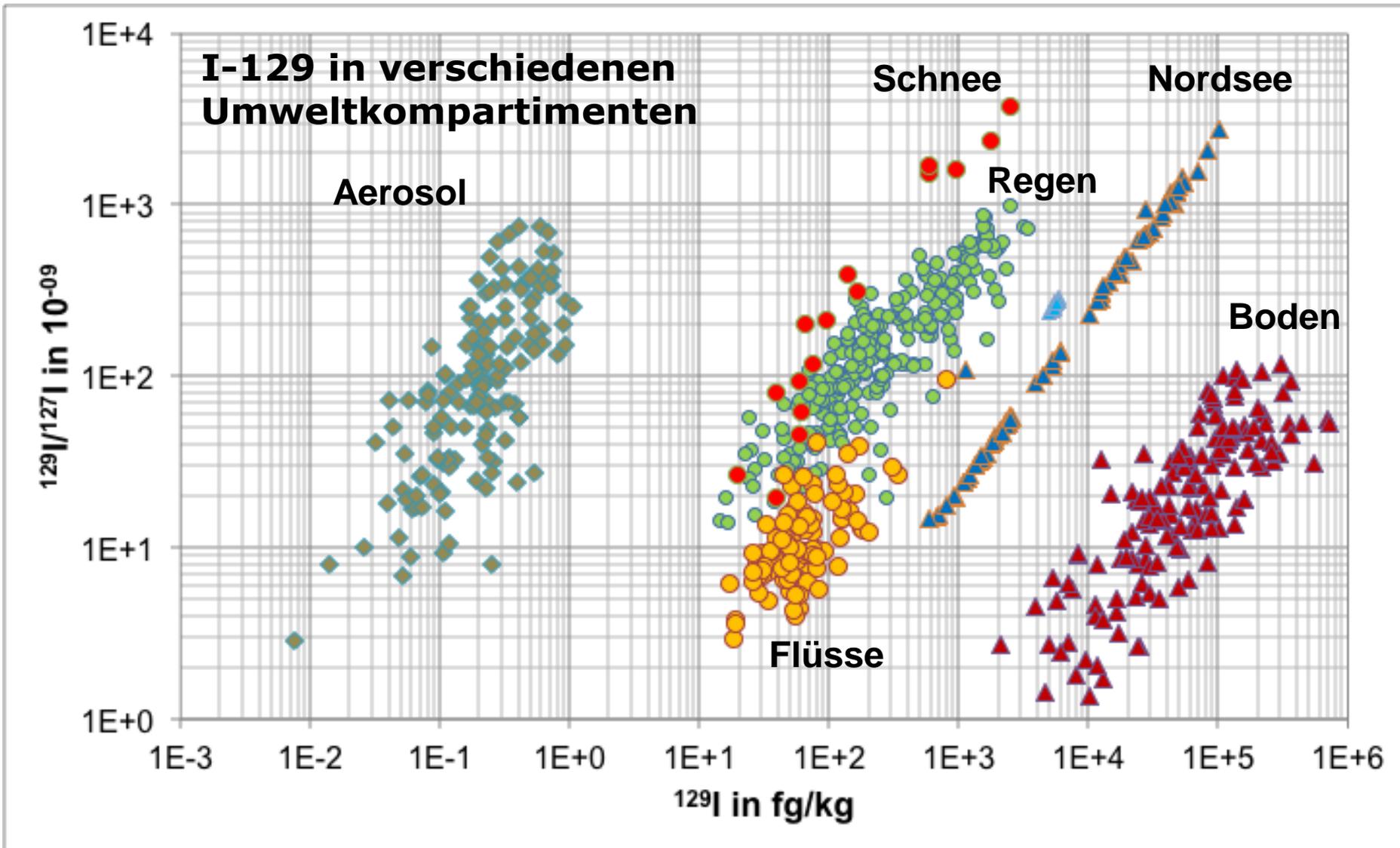
Zugspitze



Zugspitzplatt

Reintal





# TP 2 – Grund- und Tiefenwasser, Trinkwasser

AP 2.1: **Entwicklung eines Detektors zum Online-Nachweis von Radionukliden im Trinkwassernetz**

B. Breustedt, KIT

AP 2.2: **Sensitivität von Trinkwasserreservoiren im Bezug auf Radionuklideinträge**

B. Riebe, Uni Hannover

AP 2.3: **Freisetzung von Radium an der Grenzfläche Gestein-Wasser**

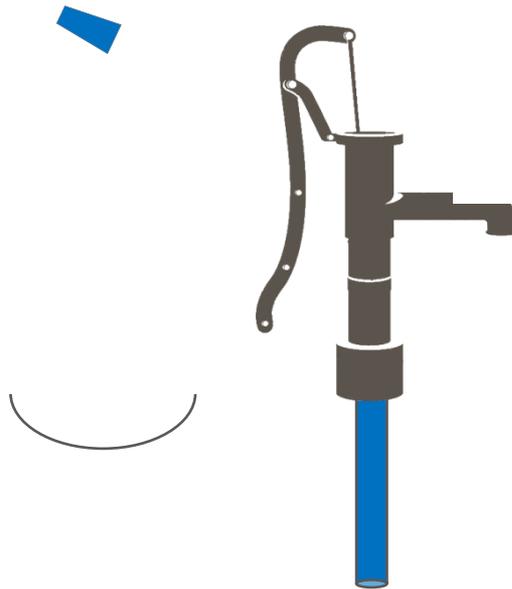
M. Köhler, VKTA

AP 2.4: **Hydrogeochemischer und mikrobieller Einfluss auf Transfer von Radionukliden in Grund- und Tiefenwasser**

G. Büchel, E. Kothe, Uni Jena

AP 2.5: **reaktiver Stofftransport in heterogenen Grundwassersystemen**

P. Maloszewski, C. Stumpp, HMGU



# Sensitivität von Trinkwasserreservoiren (AP 2.2)

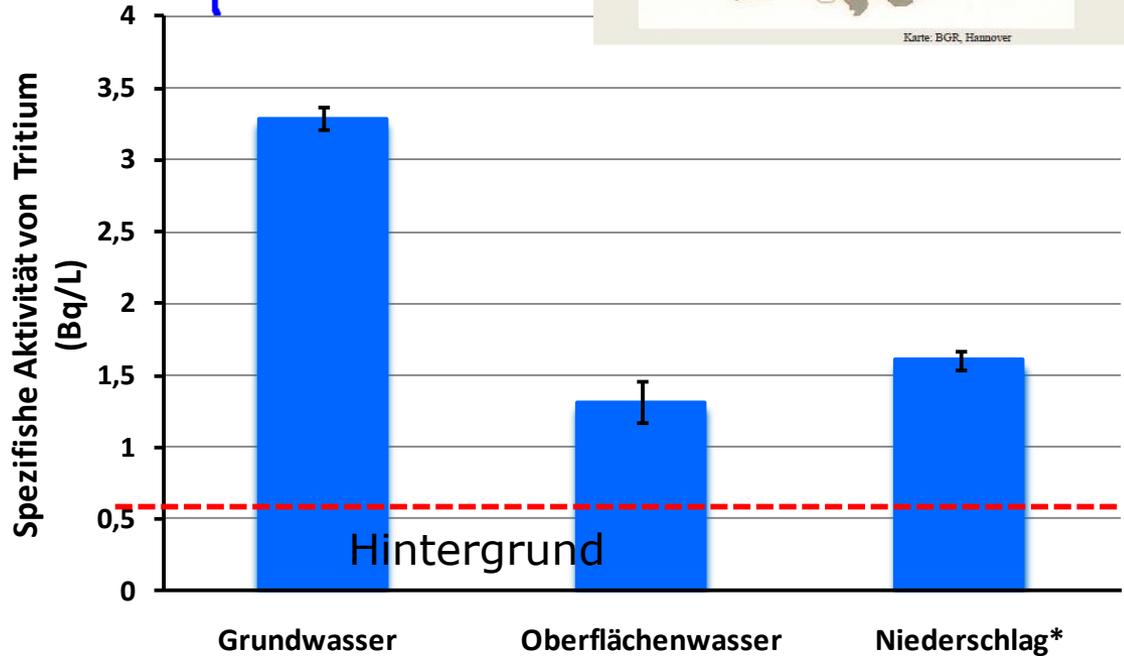
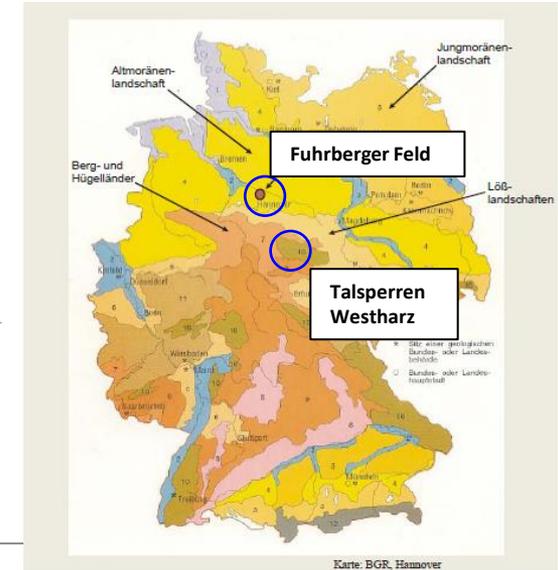
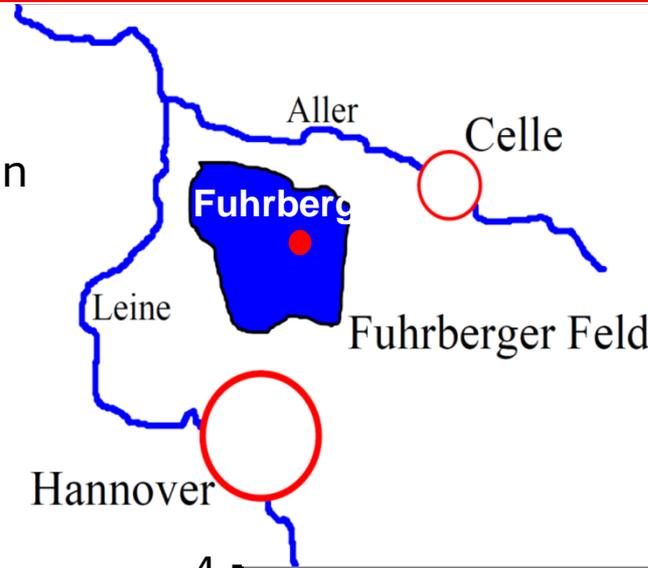


$^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  
 $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$  in Stoffkreisläufen  
von Geosphäre, Hydrosphäre,  
Atmosphäre und Biosphäre

Rohwasser-Beprobung  
**2 Trinkwassergewinnungs-  
gebiete (Fuhrberg,  
Talsperre)**, Trinkwasser,  
Böden, Zuflüsse, Sedimente

Zusammenwirken  
**geochemischer Reaktionen  
- geohydraulische Vorgänge**

**Prüfung der Sensitivität von  
Reservoiren in Hinblick auf  
Radionuklideinträge und  
-akkumulation**



# Freisetzung von Radium an der Grenzfläche Gestein-Wasser (AP 2.3)

## Motivation

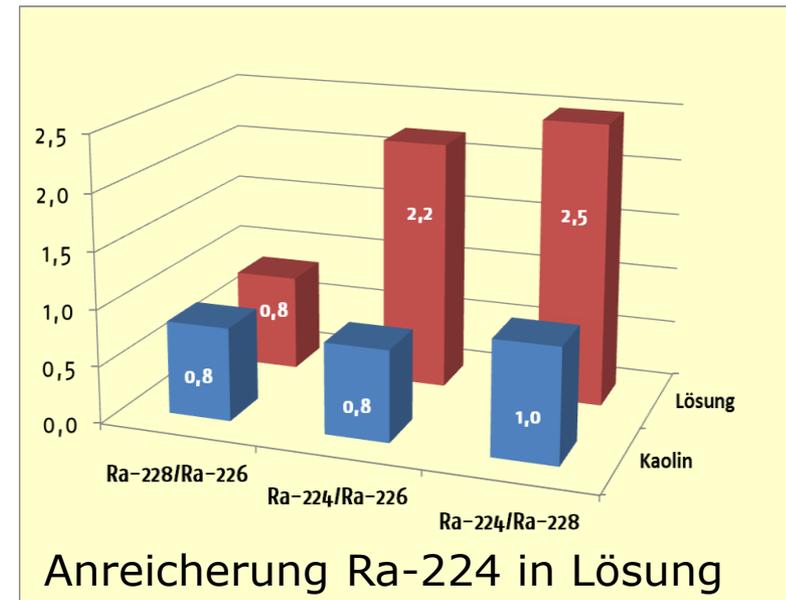
Strahlenschutzrelevante Anreicherung von Radium in Ablagerungen an Anlagenteilen bei geothermischer Nutzung der salinen Grundwässer auf  $\geq 100$  Bq/g

## Ziele

- Experimente zur Freisetzung von Ra an Gesteinsoberflächen im Labormaßstab
- Bestimmung von physikochemischen (Lösung, Sorption, ...) und kernphysikalischen ( $\alpha$ -Rückstoß) Anteilen der Radiumfreisetzung
- Vergleich Experiment - reale Systeme Geothermie mit Modellrechnungen
- Optimierung eines Prognosemodells



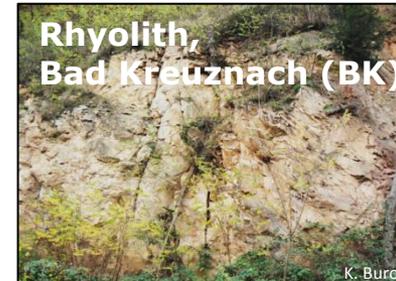
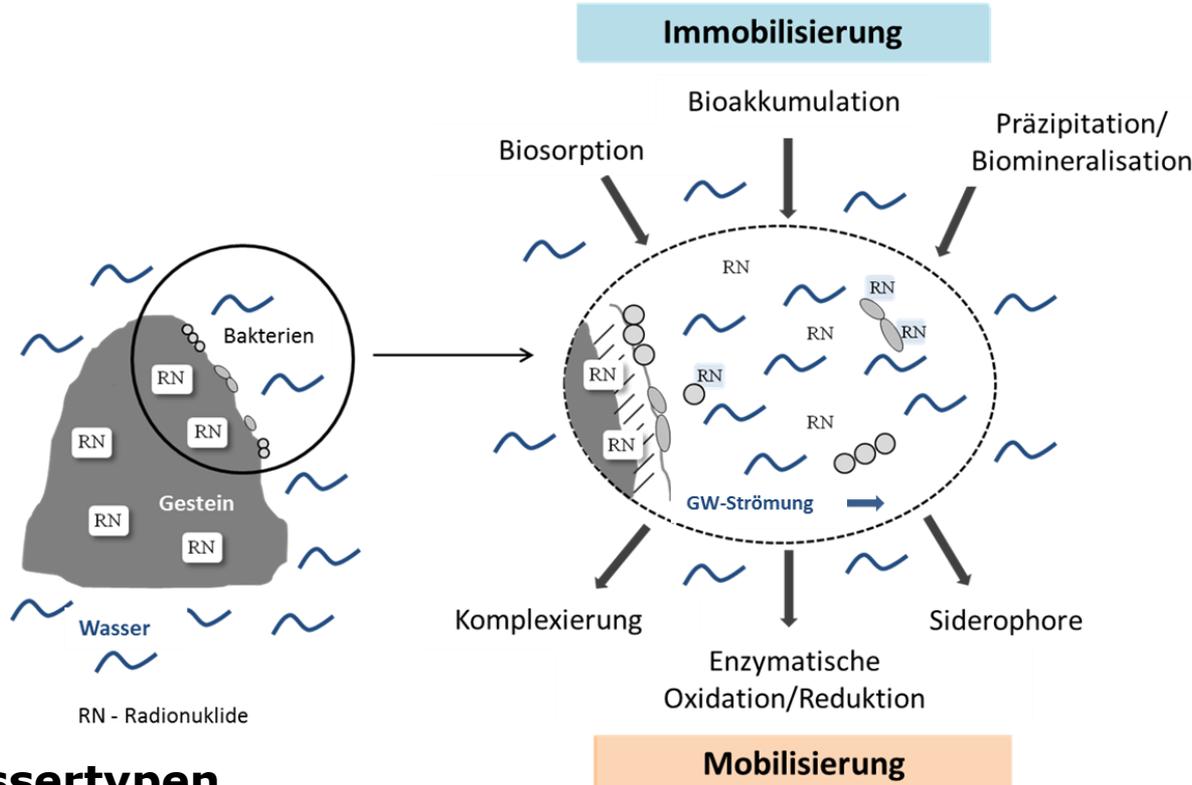
Ablagerung vom Wärmetauscher einer Geothermieranlage.



Anreicherung Ra-224 in Lösung

Aktivitätsverhältnisse in Kaolin und in Lösung

# Mikrobiologische Freisetzung von Radionukliden aus dem Gestein/Grundwasser (AP 2.4)



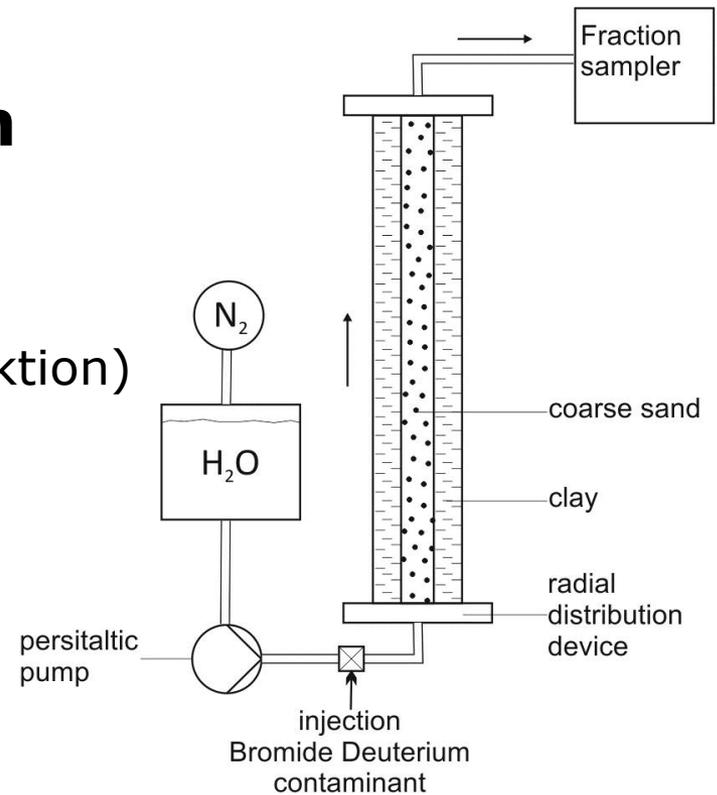
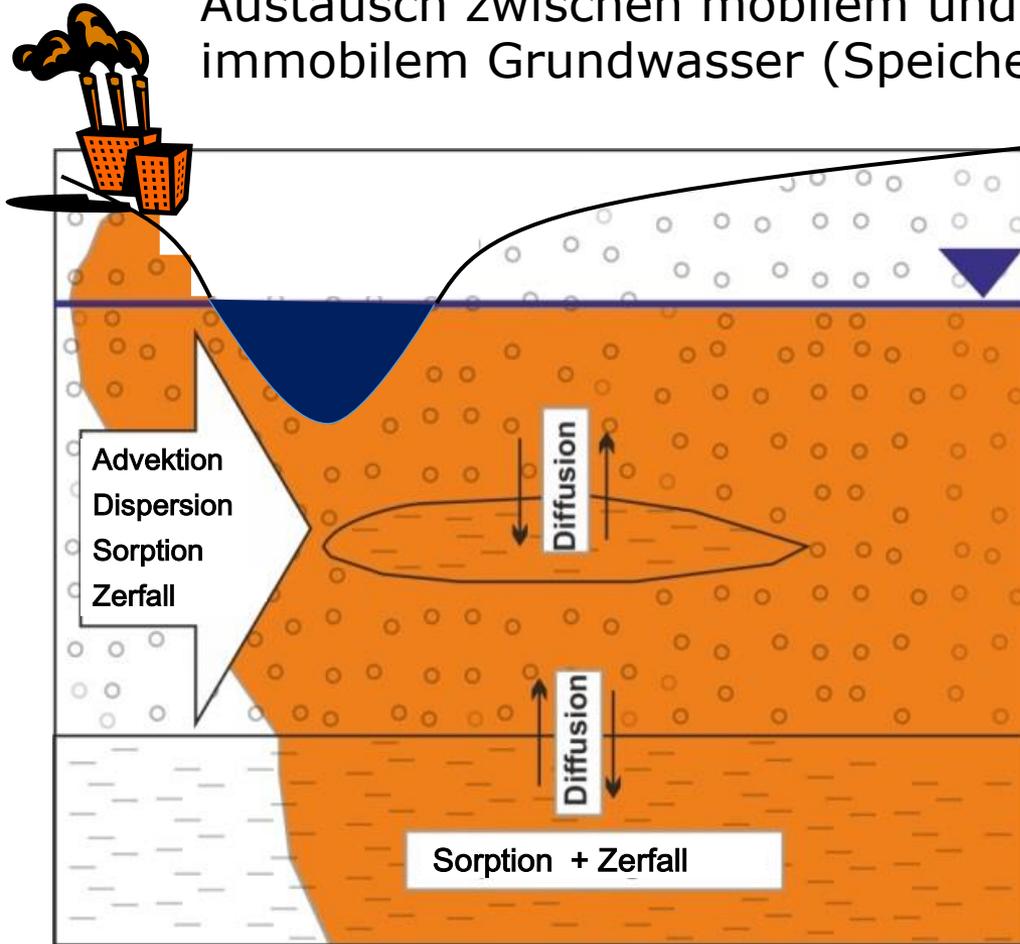
## Wassertypen

**H:** Na-Cl; *Sole*    **M:** Ca-Mg-SO<sub>4</sub>; *sauer, ARD*    **BK:** Na-Cl; *Thermalwasser*

	Wasser [Bq/L]					Gestein [Bq/kg]			
	<sup>238</sup> U	<sup>228</sup> Th	<sup>228</sup> Ra	<sup>226</sup> Ra	<sup>222</sup> Rn	<sup>238</sup> U	<sup>228</sup> Th	<sup>228</sup> Ra	<sup>226</sup> Ra
<b>H</b>	< 0,58	< 0,04	< 0,14	< 0,04	<i>n.b.</i>	<i>n.b.</i>			
<b>M</b>	in Arbeit					in Arbeit			
<b>BK</b>	< 0,43	< 0,13	15,5	23,3	70-120	50	104	103	46,3

# Bewertung des reaktiven Stofftransports in heterogenen Grundwasserleitern (AP 2.5)

Austausch zwischen mobilem und immobilem Grundwasser (Speicherfunktion)



# TP 3 – Biokinetische Modelle



**AP 3.1: Untersuchungen zur Biokinetik  
inkorporierter Radionuklide aus  
aquatischen Ökosystemen zur verbesserten  
Dosisabschätzung**

U. Oeh, HMGU

**AP 3.2: Spektroskopische Bestimmung der  
Bindungsform trivalenter  
Actinide/Lanthanide in Biofluiden des  
menschlichen Gastrointestinaltraktes**

A. Barkleit, HZDR

gefördert vom



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung



# Speziation von Aktiniden/Lanthaniden in Biofluiden des Gastrointestinaltraktes (AP 3.2)

## Motivation

- Transport und chemische Bindungsformen von An(III)/Ln(III) im Verdauungstrakt?

## Ziel

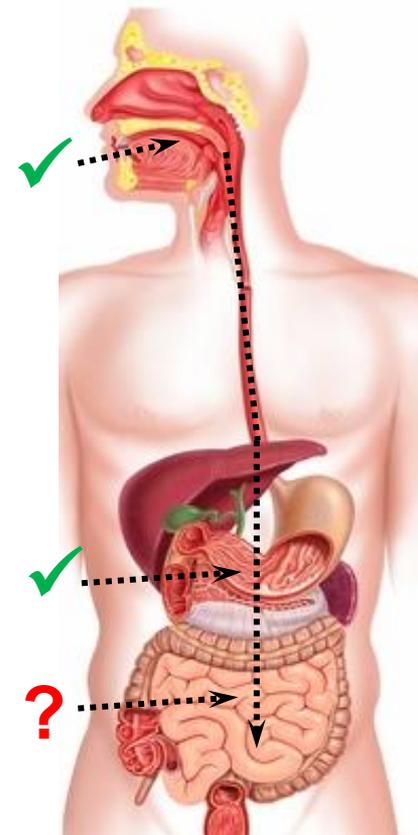
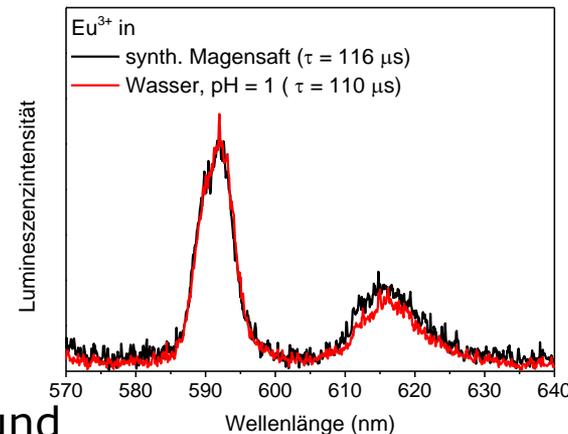
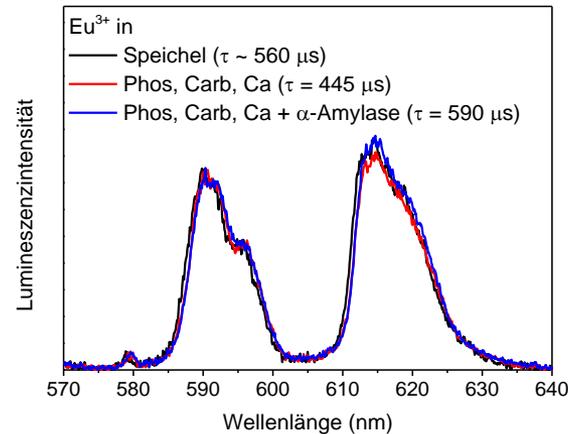
- Identifizierung der dominierenden Bindungspartner von Eu(III)/Cm(III) in Biofluiden des Verdauungstraktes mittels zeitaufgelöster laserinduzierter Fluoreszenzspektroskopie
- Charakterisierung der dominierenden Bindungsformen mit verschiedenen spektroskopischen Methoden

## Ergebnisse

- Speichel\***: Komplexierung von Eu(III) und Cm(III) durch Phosphat, Carbonat (+ Calcium) und das Enzym  $\alpha$ -Amylase
- Magen**: Vollständige Dekomplexierung von Eu(III) aufgrund des sauren pH-Wertes des Magensaftes

\* **Publikation:**

A. Barkleit et al., *Chem. Res. Toxicol.* (2015) eingereicht

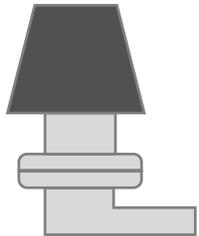


# TP 4 – Kontaminierte Wässer



**AP 4.1: Modellierung der Partitionierung von Radionukliden in Klärschlamm und Abwasser**  
V. Hormann, Uni Bremen

**AP 4.2: Abschätzung der radiologischen Auswirkungen von Nuklearunfällen auf die städtische Trinkwasserversorgung und Stadtentwässerung**  
J.C. Kaiser, HMGU



**AP 4.3: Untersuchung zu den Wechselwirkungen zwischen unter Tage lebenden Mikroorganismen mit Uran**  
T. Arnold, HZDR

gefördert vom



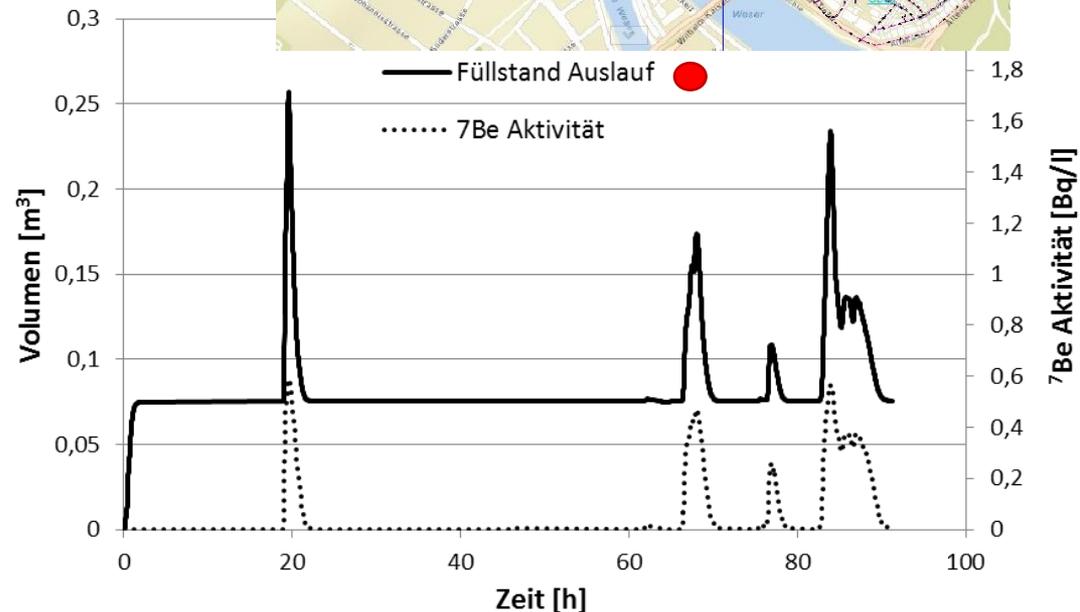
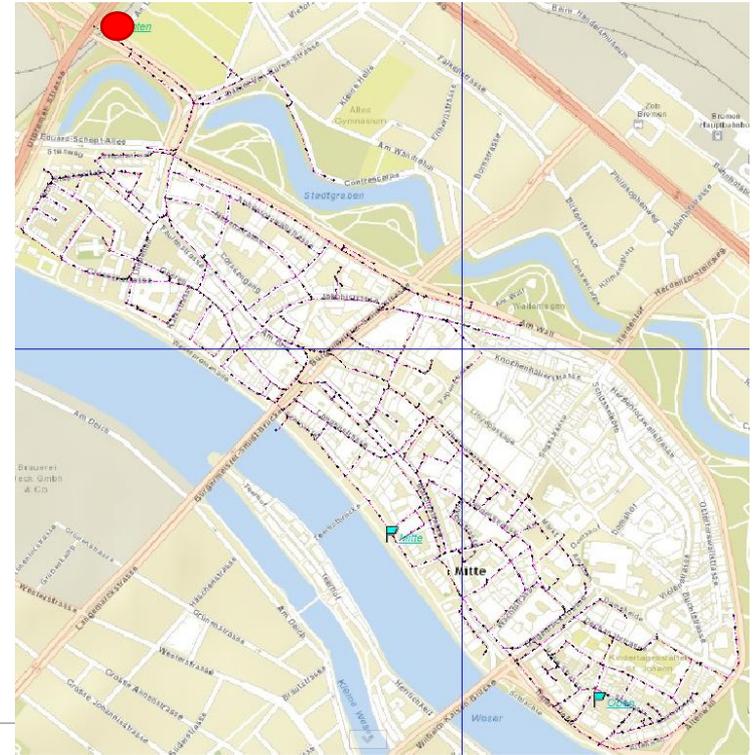
Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung



# Radionuklidtransport in der Stadtentwässerung (AP 4.2)

- **Szenario:**  
Radionuklideintrag ins Kanalsystem der Altstadt Bremen
- Definierte Be-7 Konzentration im Regenwasser
- Berechnung der durchfließenden Be-7 Aktivität an verschiedenen Punkten des Kanalsystems nach einem Regenereignis (Abgleich Durchflüsse mit hanseWasser)
- Verifikation ++Systems-Modell mit Probenahmen vor Ort

HelmholtzZentrum münchen  
Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt



**AP 4.1: Partitionierung I-131 in Abwasser und Klärschlamm (Messung + PHREEQC-Modellierung)**

# Teil 3 – Gewinn

## **Wissenschaft: Publikationen und Konferenzbeiträge**

International Conference on Radioecology and Environmental Radioactivity (ICRER 2014), Barcelona 2014:

**5 Vorträge und 4 Poster**

## **Zusammenarbeit im Verbund**

Laborbesuche, Probenaustausch, Methodenvergleich  
(→ Synergien)

## **Bildung einer radioökologischen Community**

- Kick-off-Meeting sowie halbjährliche Workshops (Neuherberg 06/13, Hannover 03/14, Karlsruhe 11/14, Bremen 04/15)
- Gemeinsame Homepage <http://transaqua.helmholtz-muenchen.de/>



- Verbund
- Teilprojekte
- Abgeschlossene Projekte
- Publikationen
- Aktuelles
- Workshops
- Interner Bereich



- TEILPROJEKTE
- TP 1: OBERFLÄCHENWASSER
- TP 2: GRUND- UND TIEFENWASSER, TRINKWASSER
- TP 3: BIKINETISCHE MODELLE
- TP 4: KONTAMINIERTES WÄSSER
- TP 5: AUSBILDUNG UND NACHWUCHSFÖRDERUNG

## AKTUELLES



**WE-Heraeus Physics School**

03.08.2015 | on "Ionizing Radiation and Protection of Man", Bad Honnef, 03.-14.08.2015. The scientific...



**3. Workshop TransAqua**

20.04.2015 | Vom 20.-21.04.2015 findet der 3. Workshop TransAqua auf dem Schulschiff Deutschland in...



**2. Projektstatusgespräch NUK**

25.03.2015 | Der Projektträger Karlsruhe, Wassertechnologie und Entsorgung (PTKA-WTE) wird am 25. und 26. März...

Suche

## GEFÖRDERT VOM



Förderkennzeichen 02NUK030

## MITGLIED IM



## KOORDINATION

Institut für Strahlenschutz

## PROJEKTPARTNER

**HelmholtzZentrum münchen**  
Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt



Friedrich-Schiller-Universität Jena

# TP 5 – Ausbildung und Nachwuchsförderung

## Teilnahme an WE Heraeus Sommerschule “Radiation Protection”

5 Doktoranden/Postdocs pro Jahr (2013 und 2014: je 3 Doktoranden)

## Organisation von 3 Workshops

- Workshop 1: 25.-27.11.2014, KIT Karlsruhe  
Thema: “Aufbereitung von Wasserproben und Radionuklidnachweis in Wasserproben” mit Tutorials von erfahrenen AP-Leitern und Laborbesichtigung
- Workshop 2: Herbst 2015 “Verhalten von Radionukliden im Wasserpfad”
- Workshop 3: Herbst 2016 “Biokinetik von Radionukliden nach Zufuhr flüssiger Stoffe”

## Organisation einer Sommerschule 2017

Zusammenfassung aller wesentlichen Ergebnisse

Sie befinden sich hier: [TransAqua](#) > [Workshops](#) > 1. Workshop TP5

1. Workshop TP5

## 1. Workshop TP5

Suche

### "Aufbereitung von Wasserproben und Nachweis von Radionukliden in Wasserproben"

25.-27. November 2014

Karlsruher Institut für Technologie



1. TP5 Workshop TransAqua am KIT (Fotos: K. Gückel)

Der erste Workshop des Teilprojekt 5: Ausbildung und Nachwuchsförderung fand vom 25.-27.11.2014 in Karlsruhe am Institut für Sicherheit und Umwelt unter der Leitung von Bastian Breustedt statt.

Neben einer Laborführung durch die Radioanalytischen Labore hielten erfahrene Wissenschaftler Tutorials zu methodischen Themen der Radioanalytik wässriger Proben.

Das Programm kann [hier](#) herunter geladen werden.

Die pdfs der Tutorials stehen ebenfalls zum Download bereit.



**Danke für Ihre Aufmerksamkeit  
...und für die Förderung durch das**



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

02NUK030

# In Vitro Untersuchungen zur Wirkung von dicht und dünn ionisierender Strahlung auf die frühe pränatale Entwicklung

Margot Mayer



**hochschule aschaffenburg**  
university of applied sciences

## Einleitung

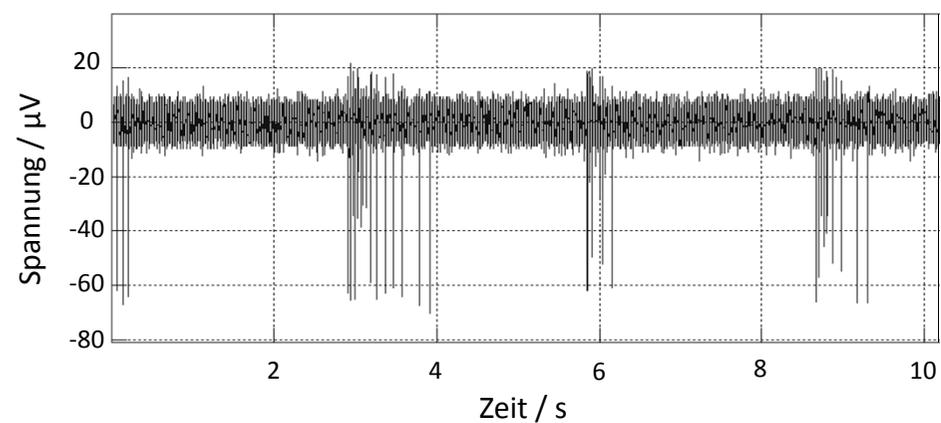
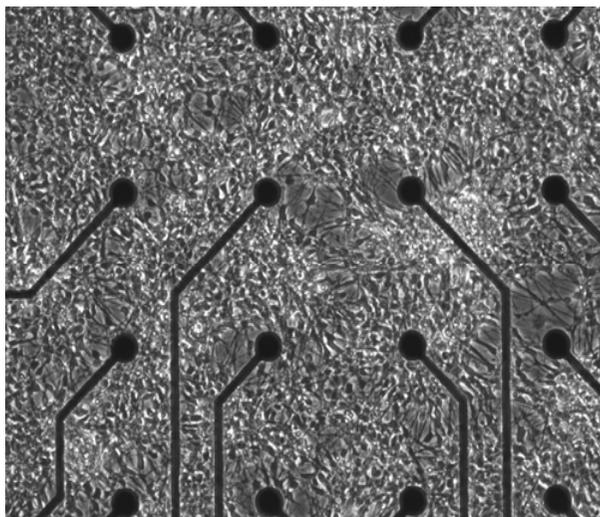
### Motivation

Margot Mayer

Ziel des Projektes: Genauere Kenntnis der Strahlenwirkung während der frühen Embryonalentwicklung des Menschen

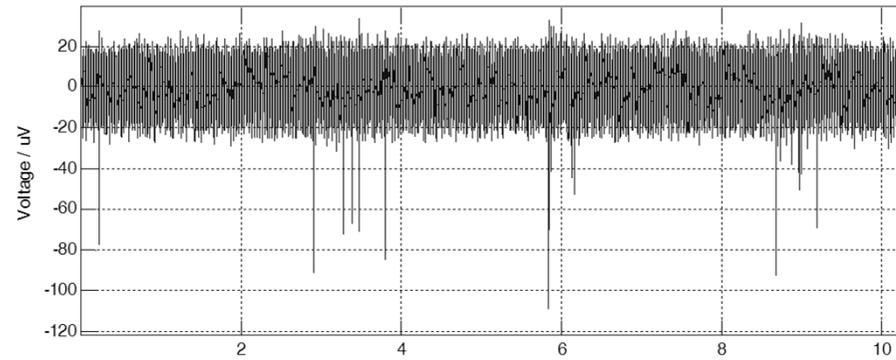
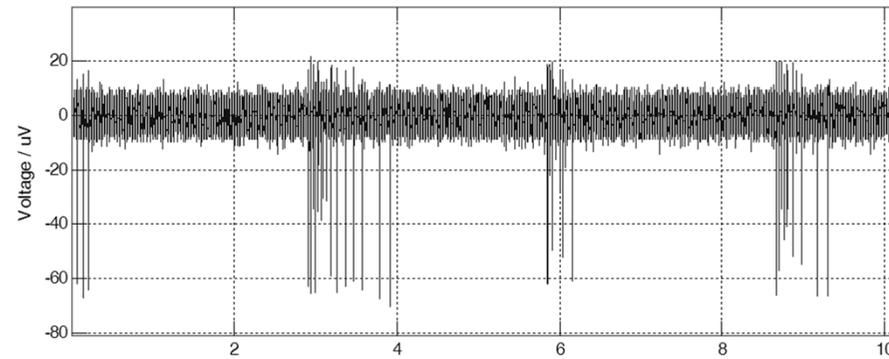
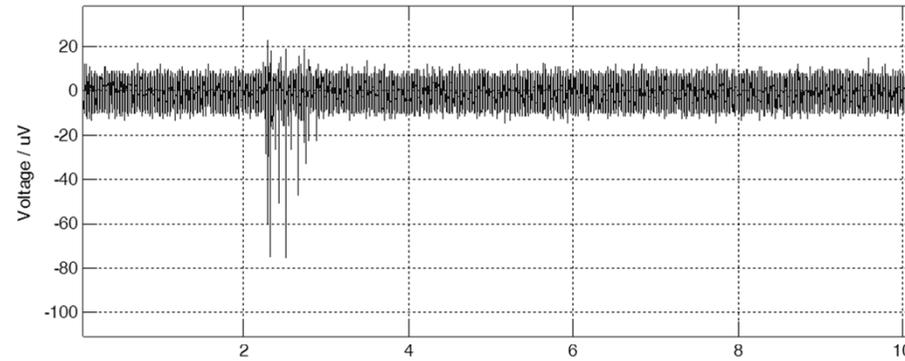
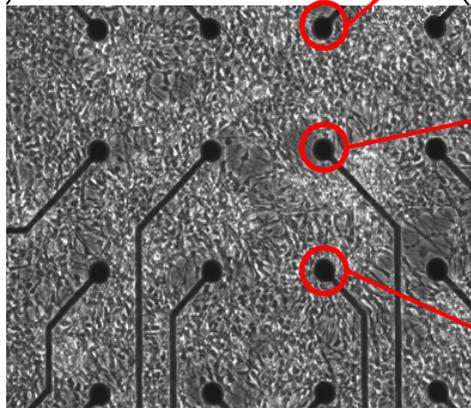
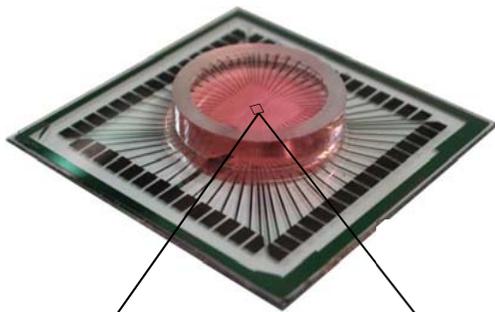
➡ Funktionelle Charakterisierung neuronaler Zellen

➡ Einfluss ionisierender Strahlung auf sich entwickelnde **neuronale Netzwerke**



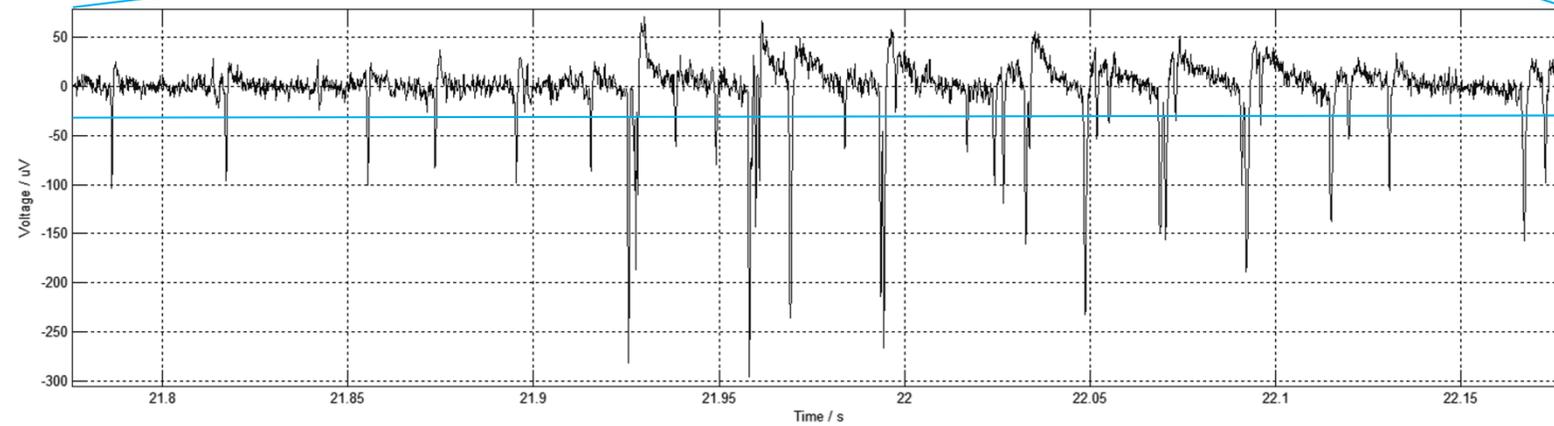
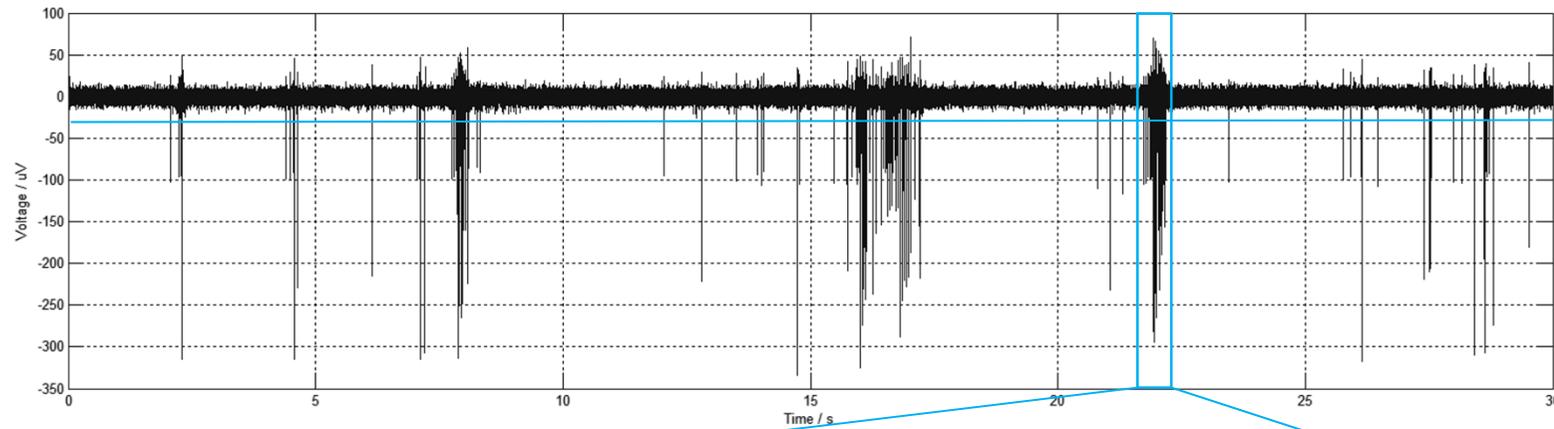
# Einleitung

## MEA System



# Einleitung

## Datenanalyse



threshold

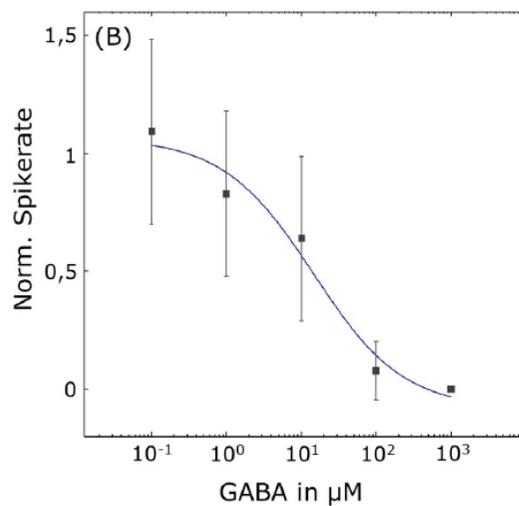
## Einleitung

## Positivkontrolle

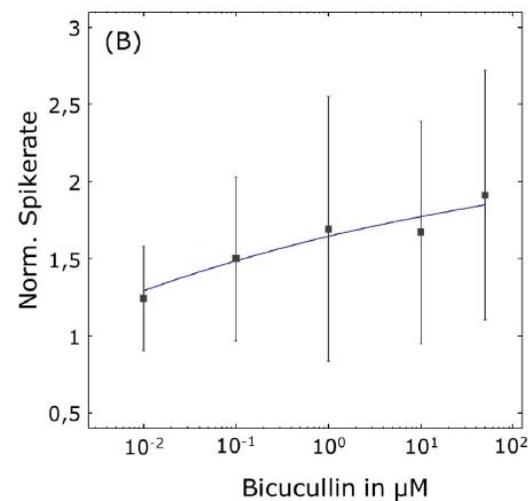
Margot Mayer

**Parameter:**

- Burst und Spike Rate
- Amplitude
- Burstdauer
- Interburst Intervall
- ...



Zugabe von GABA führt zu einer Reduktion der Spikerate



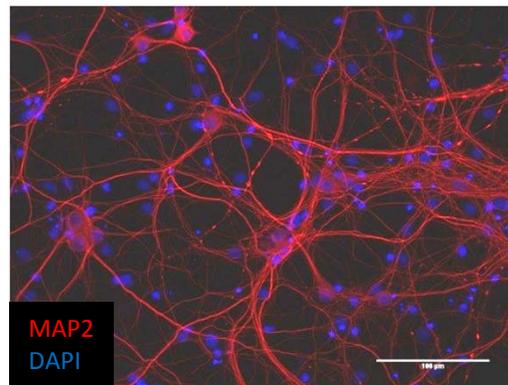
Zugabe von Bicucullin führt zu einer Erhöhung der Spikerate

# Einleitung

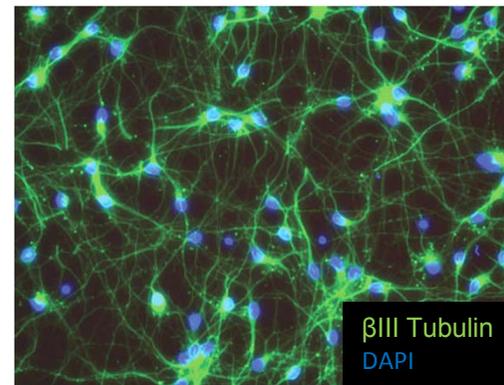
## Etablierte embryonale Modellsysteme

Margot Mayer

Primäre, embryonale Rattenneurone

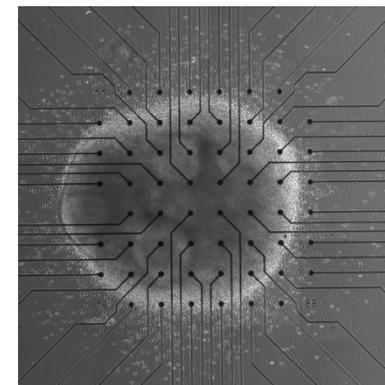


Humane Neurone aus iPS Zellen



Quelle: Cellular Dynamics

Humane Neurosphären

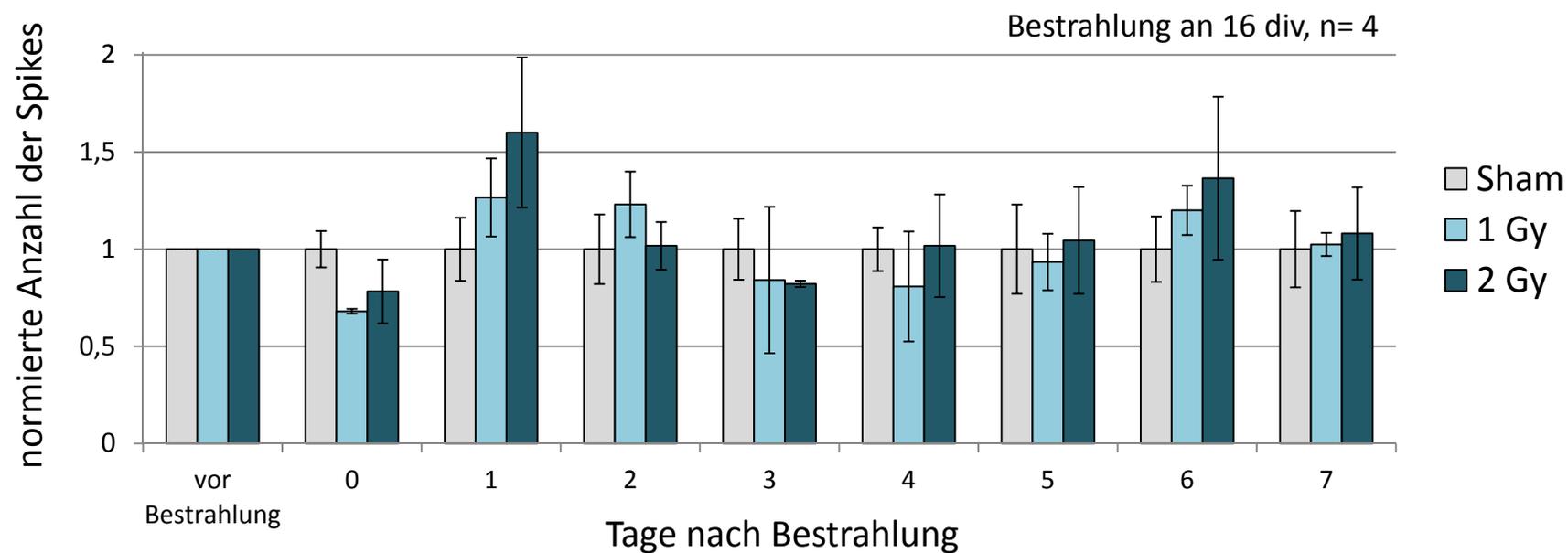
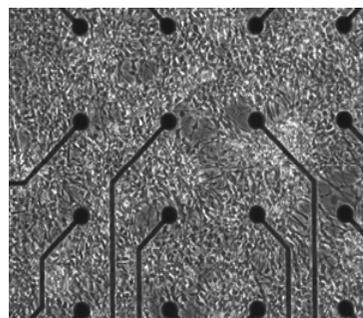


Enthaltene Zelltypen		Herkunft	Kultivierungszeitraum
Primäre Rattenneurone	Neurone und Gliazellen	Primäre Neurone; Ratte 2D	Mehrere Monate
Humane Neurone aus iPS Zellen	Neurone	Aus hiPSC differenzierte Neurone; Human 2D	Etwa 14 Tage
Humane Neurosphären	Neurone und Gliazellen	Aus hESC differenzierte Neurone; Human 3D	> 1 Woche

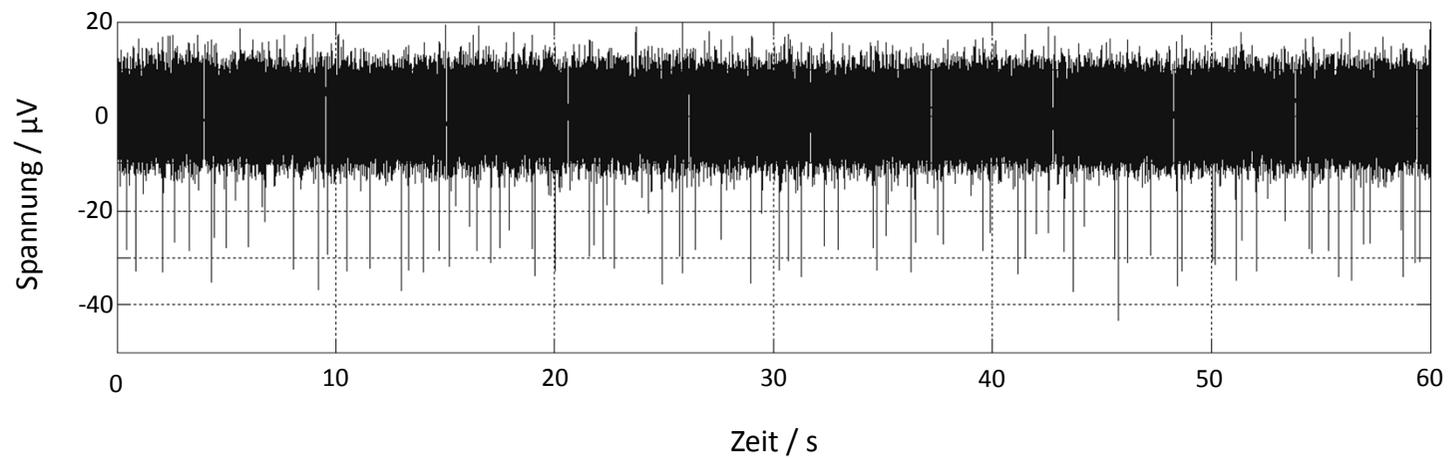
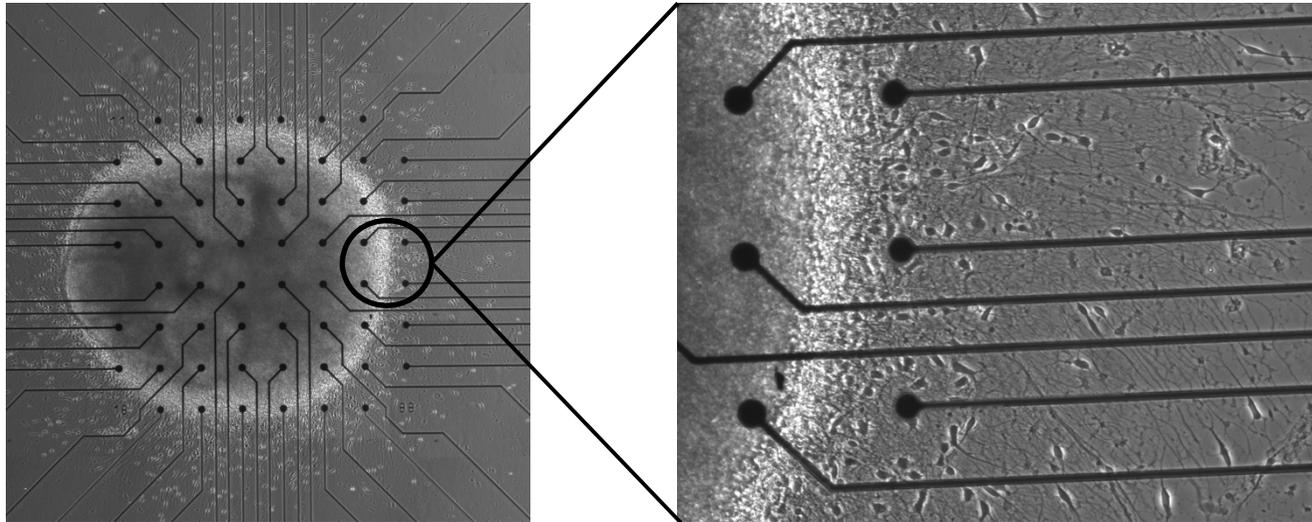
## Kortikale Neurone aus der Ratte

## Exposition mit Röntgenstrahlung

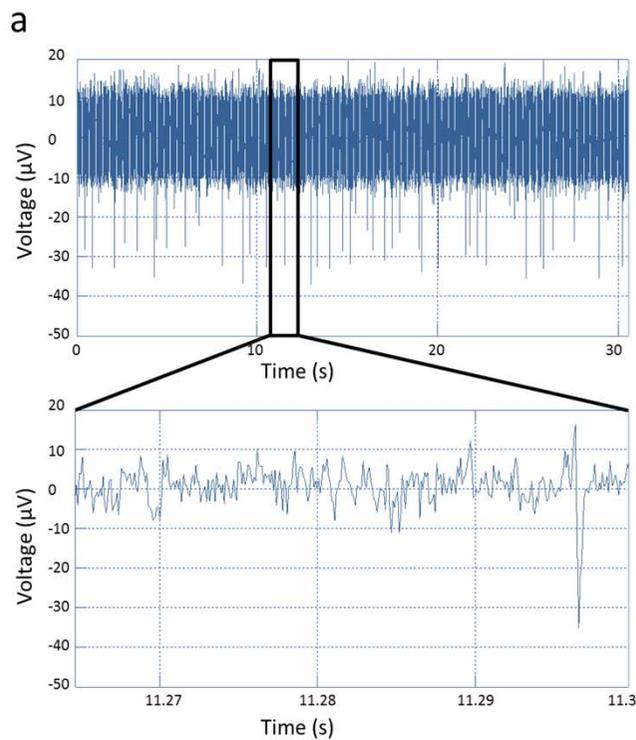
Margot Mayer



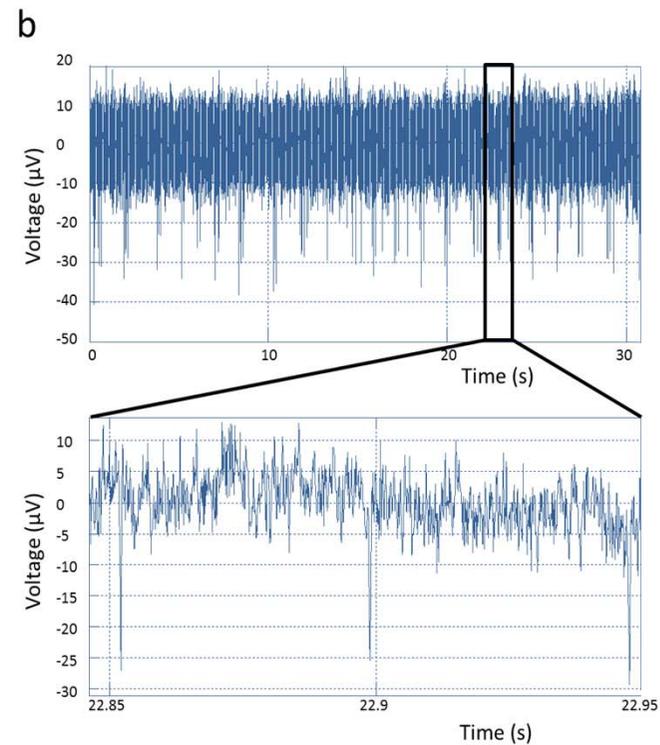
**Keine Veränderung der elektrischen Aktivität infolge einer Exposition mit Röntgenbestrahlung**



### Entwicklung der elektrophysiologischen Signale im Laufe der Netzwerkbildung

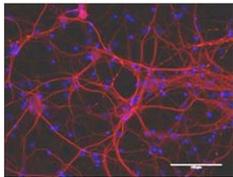


Die ersten Spikes konnten nach einem Tag detektiert werden



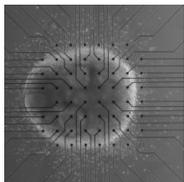
Die ersten Spike-trains konnten nach zwei Tagen detektiert werden

## Exposition kortikale Neurone aus der Ratte mit Röntgenstrahlen



Keine Veränderung der elektrischen Aktivität infolge einer Exposition mit 1 oder 2 Gy Röntgenstrahlung

## Elektrophysiologische Ableitungen von dreidimensionalen Neurosphären



Erfolgreiche Kultivierung der Neurosphären auf den MEA Chips

### **humane Neurone aus iPS Zellen**

-  Exposition mit Röntgenstrahlung
-  TUNEL assay

### **Neurosphären**

-  Elektrophysiologische Charakterisierung des Modellsystems
-  Immunhistochemische Charakterisierungen

**Vielen Dank für Ihre Aufmerksamkeit!**



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

Förderkennzeichen: 02NUK025



Hochschule  
Albstadt-Sigmaringen  
Albstadt-Sigmaringen University



hochschule aschaffenburg  
university of applied sciences



Klinikum rechts der Isar  
Technische Universität München



HelmholtzZentrum münchen  
Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt

# Simulation von Hoch-LET-Effekten mittels fokussierter niedrig-LET-Strahlung

**Günther Dollinger**  
Angewandte Physik und Messtechnik  
Universität der Bundeswehr München

für  
“LET-Verbund”

# Berechnung von Strahlenschädigungs- Effekten in biologischen Systemen

## **Ionisierende Strahlung:**

$\alpha$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ , Röntgen, Protonen, Schwere Ionen, (Neutronen)

- **Akute Strahlenschäden durch Zelltod:**
  - Entzündungsreaktionen
  - Strahlenkrankheit
  - Tumor-Kontrolle
- **Spätschäden durch überlebende, geschädigte Zellen**
  - Genetischer Schaden
  - Mutationen

# Relevanz

## **Strahlenschutz**

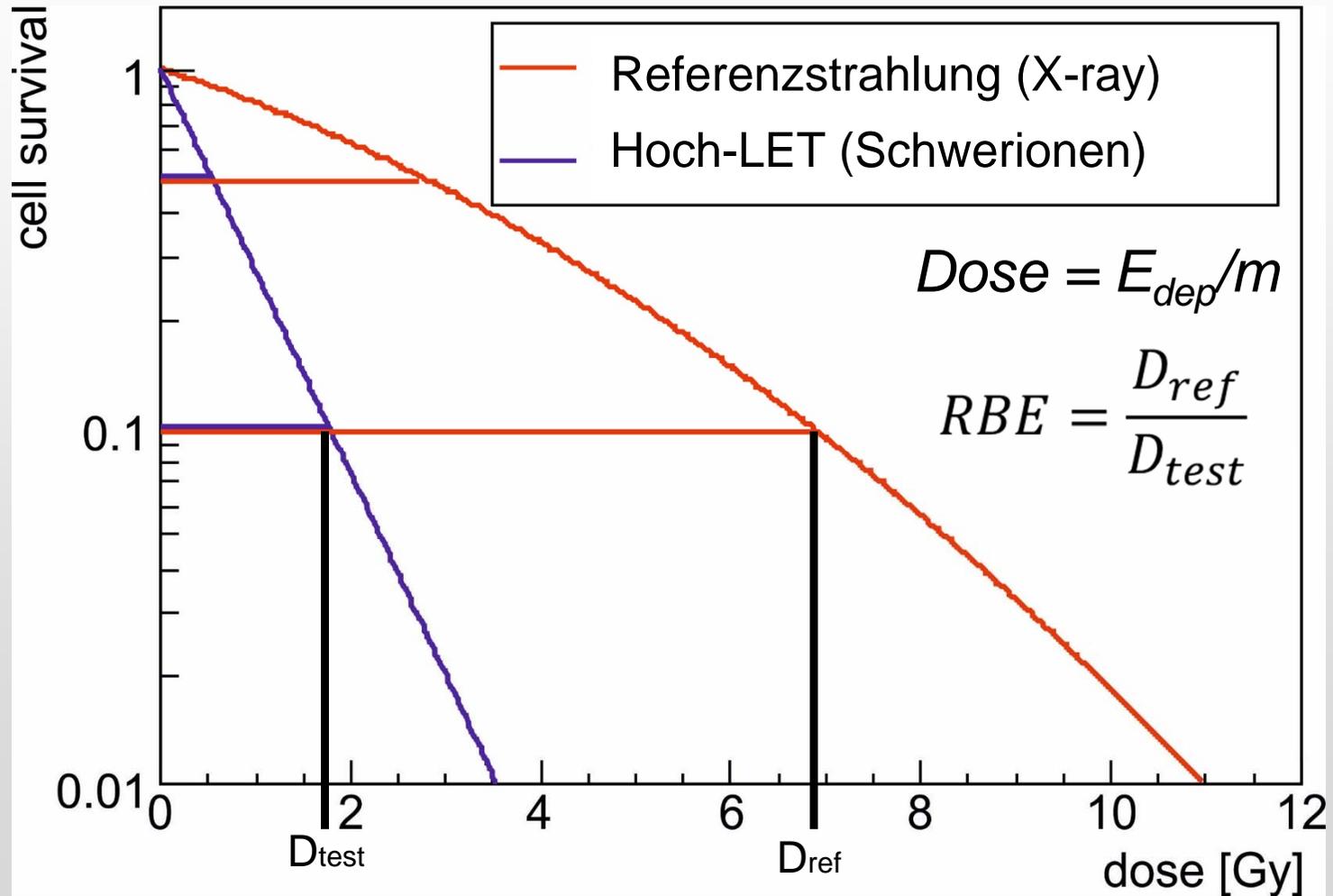
- Kernreaktoren
- fliegendes Personal
- medizinisches Personal
- bemannte Raumfahrt

## **Strahlen-Therapie**

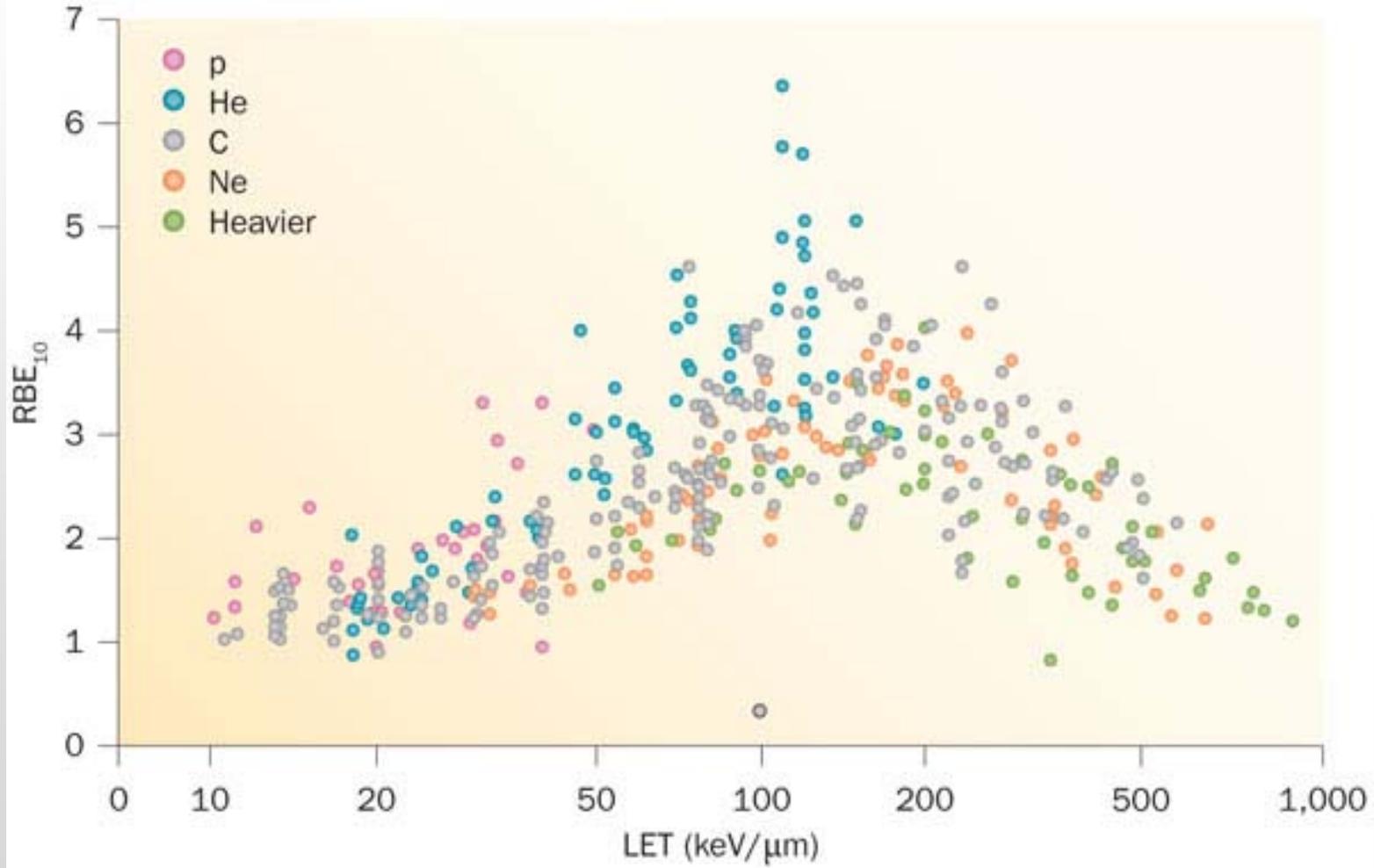
- Tumor-Kontrolle
- Nebenwirkungen

# Energiedosis - Strahlenantwort

## RBE (Relative-Biological-Effectiveness)



# Experimentelle Daten

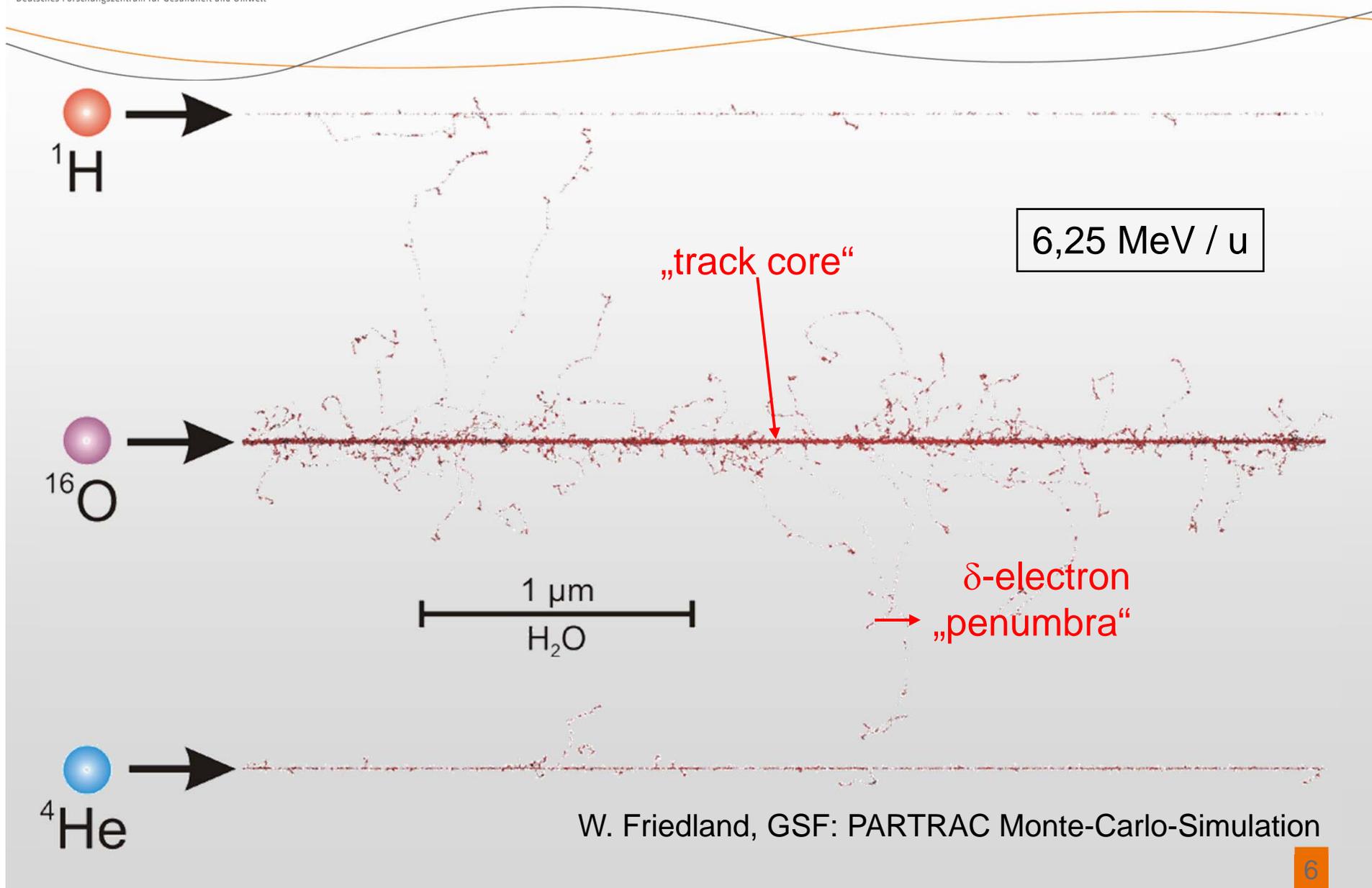


Jay S. Loeffler & Marco Durante  
Nature Reviews Clinical Oncology 10 (2013) 411-424

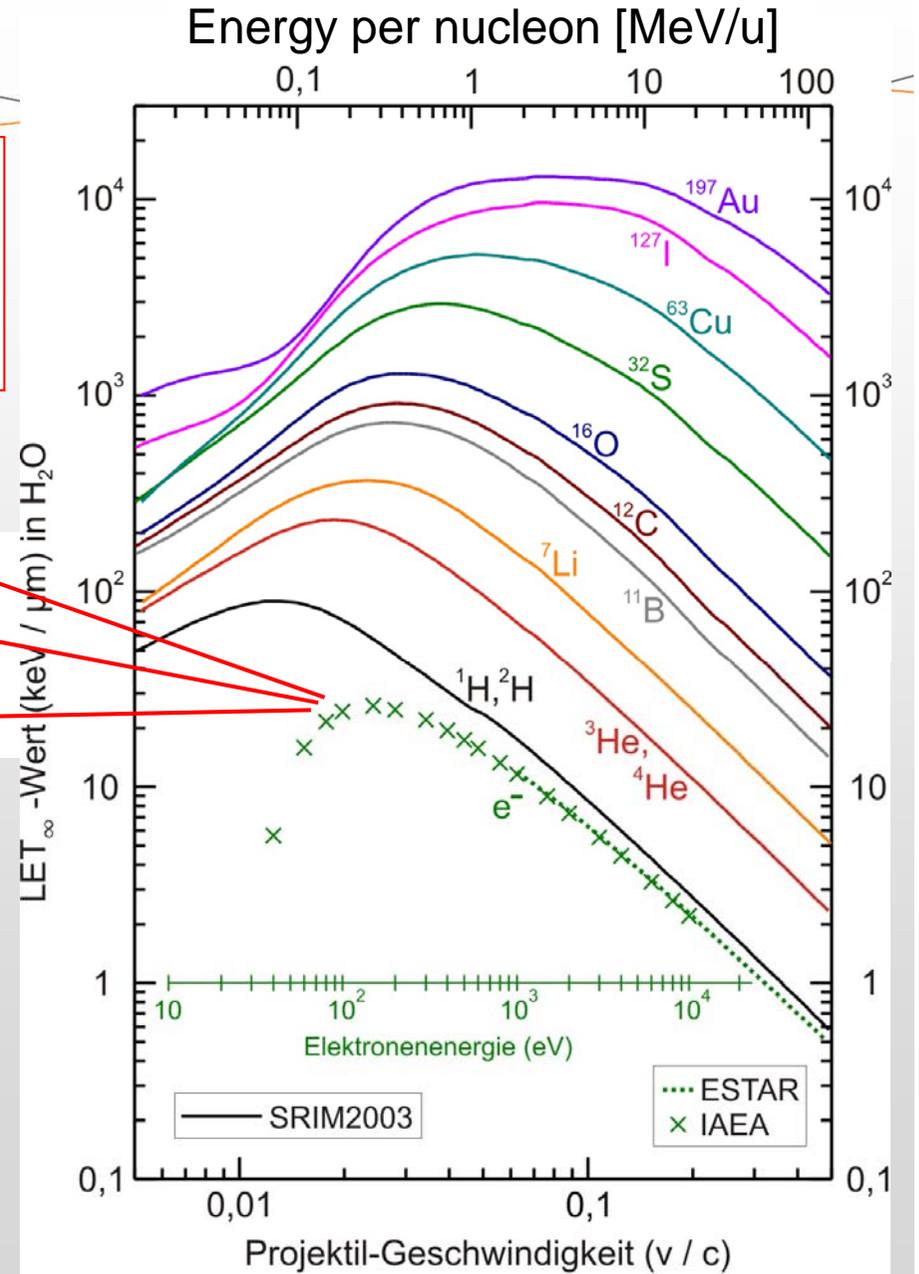
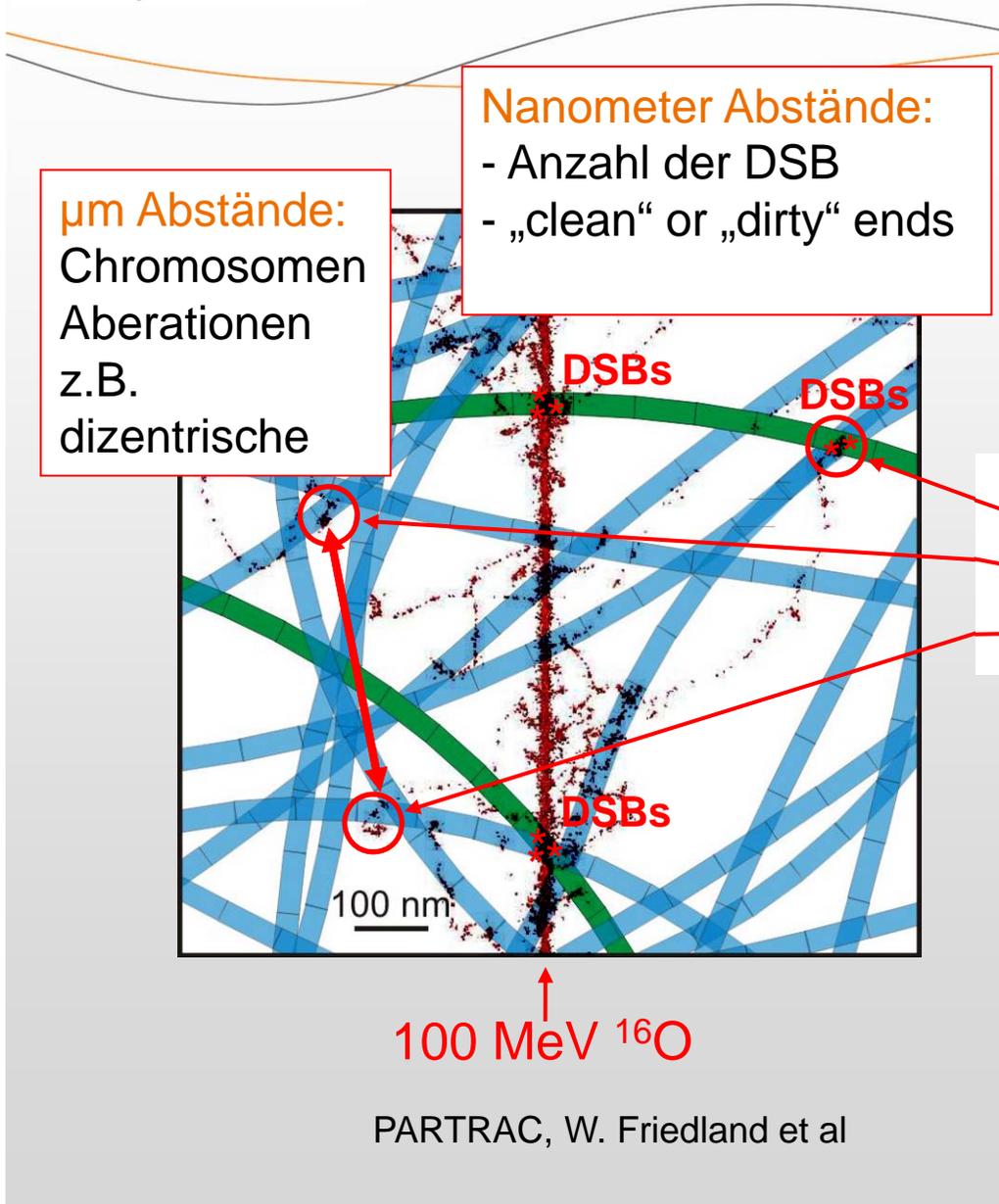


# Ionisationsspuren von Ionen

HelmholtzZentrum münchen  
Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt



# Induktion von Doppelstrangbrüchen (DSB)



# Mikroskopische Modelle

- Wieviele Doppelstrangbrüche werden erzeugt?
  - Wieviele der Doppelstrangbrüche werden falsch repariert?
- ⇒ Chromosomenaberrationen
- ⇒ Zelltod
- ⇒ Mutationen

Mikroskopisches Modell: PARTRAC (W. Friedland et al)

Semiempirisches Modell: LEM (Local effect model)  
(M. Scholz, T. Elsässer, et al)

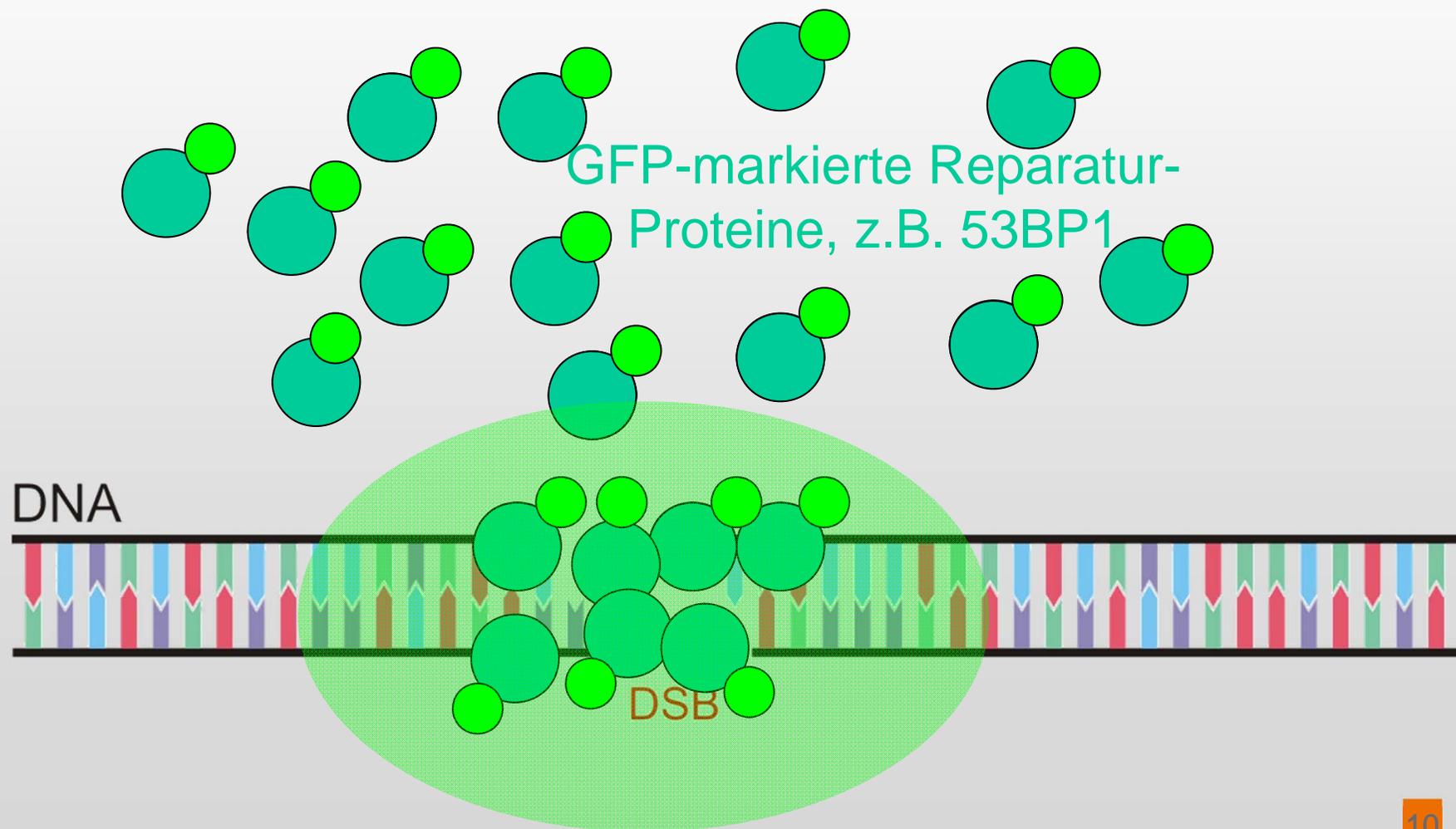
Benutzt für Bestrahlungsplanung in Schwerionentherapie

# Problem der Modellierung

Änderung des LET  
=> Gemeinsame Änderung von Nanoskalen- und  
Mikroskalen- Effekte

Wie Effekte klar separieren?

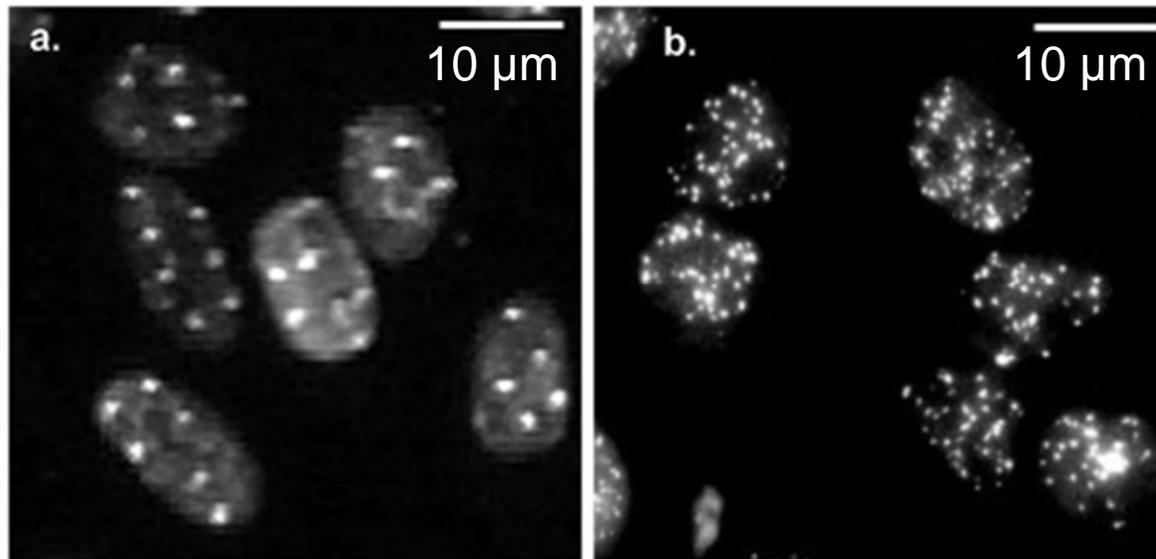
# Beobachtung von DSB im Mikroskop



# RBE ändert sich bei Fokussierung von niedrig LET Protonen

55 MeV C-Ionen, 1,7 Gy  
5 × 5 μm<sup>2</sup> matrix

20 MeV protons, 1,7 Gy  
randomly distributed



C-Ionen versus Protonen:

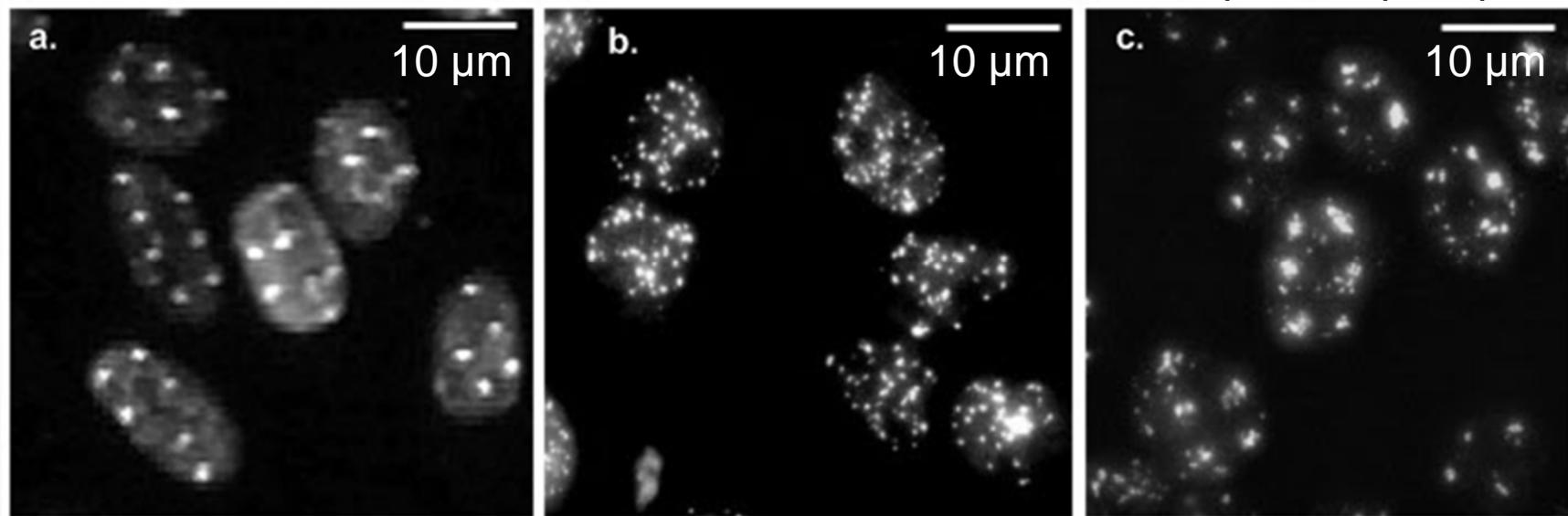
- Änderung der DSB-Verteilung
- Aber auch Änderung der DSB-Zahl und DSB-Charakter

# Idee des LET-Verbundes: RBE von fokussierten Protonen

55 MeV carbon, 1,7 Gy  
5 × 5 μm<sup>2</sup> matrix

20 MeV protons, 1,7 Gy  
randomly distributed

20 MeV protons, 1,7 Gy  
5 × 5 μm<sup>2</sup> matrix  
117 protons per spot



Fokussierte Protonen::

- Änderung der DSB-Verteilung in Abhängigkeit der Fokusgröße
  - Anzahl der DSB wie bei nichtfokussierten Protonen
  - Keine Veränderung der Komplexität der DSB-Schäden
- => Unabhängige Überprüfung der RBE Modelle auf Mikrometer-Skala

# Ziel LET-Verbund

- Neuer experimenteller Ansatz:
  - Test der Modelle
  - Verständnis der Schädigungsmechanismen in der Zelle
  - Weiterentwicklung Partrac und LEM
- Genauere Vorhersage:  
RBE in Abhängigkeit des LET und Ionenenergie



# Das Konsortium



- C. Greubel, S. Girst, D. Walsh, J. Reindl, G. Dollinger  
Universität der Bundeswehr München  
concepts, experimental physics, micro irradiation  
1 postdoc, 1 PhD, 4 years



Klinikum rechts der Isar  
Technische Universität München

- T. Schmid, K. Ilicic, C. Siebenwirth, G. Multhoff  
Klinikum Rechts der Isar, TU München  
Biology  
1 postDoc, 1 PhD, 4 years



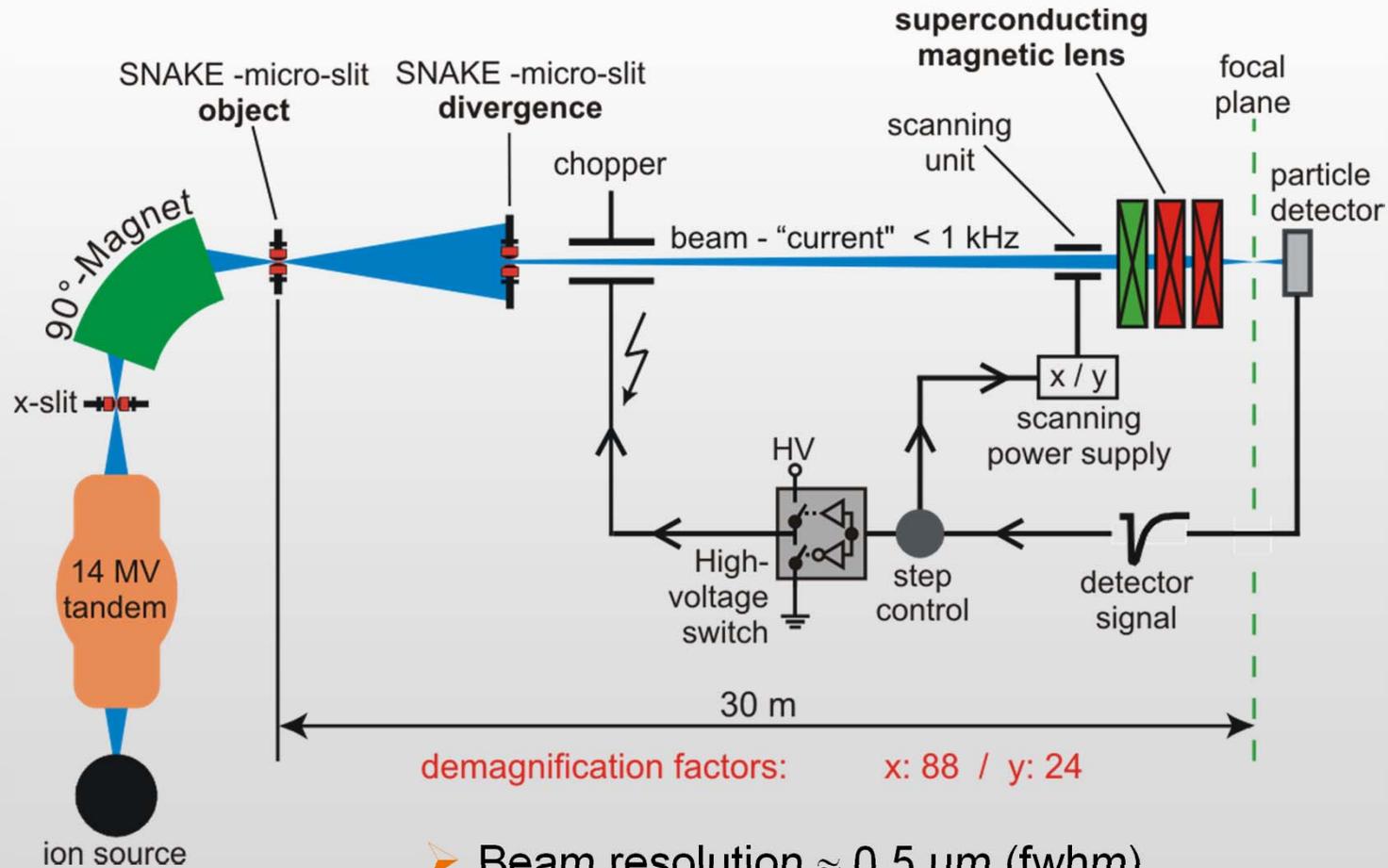
- T. Friedrich, M. Scholz  
GSI  
LEM-Model  
1 PostDoc, 3 years

HelmholtzZentrum münchen  
Deutsches Forschungszentrum für Gesundheit und Umwelt

- E. Schmitt, P. Kundrat, W. Friedland  
Helmholtzzentrum München  
PARTRAC simulations  
1 PostDoc, 4 years

# Ionen Mikrobestrahlung an SNAKE

Superconducting Nanoscope for Applied nuclear (Kern-) physics Experiments



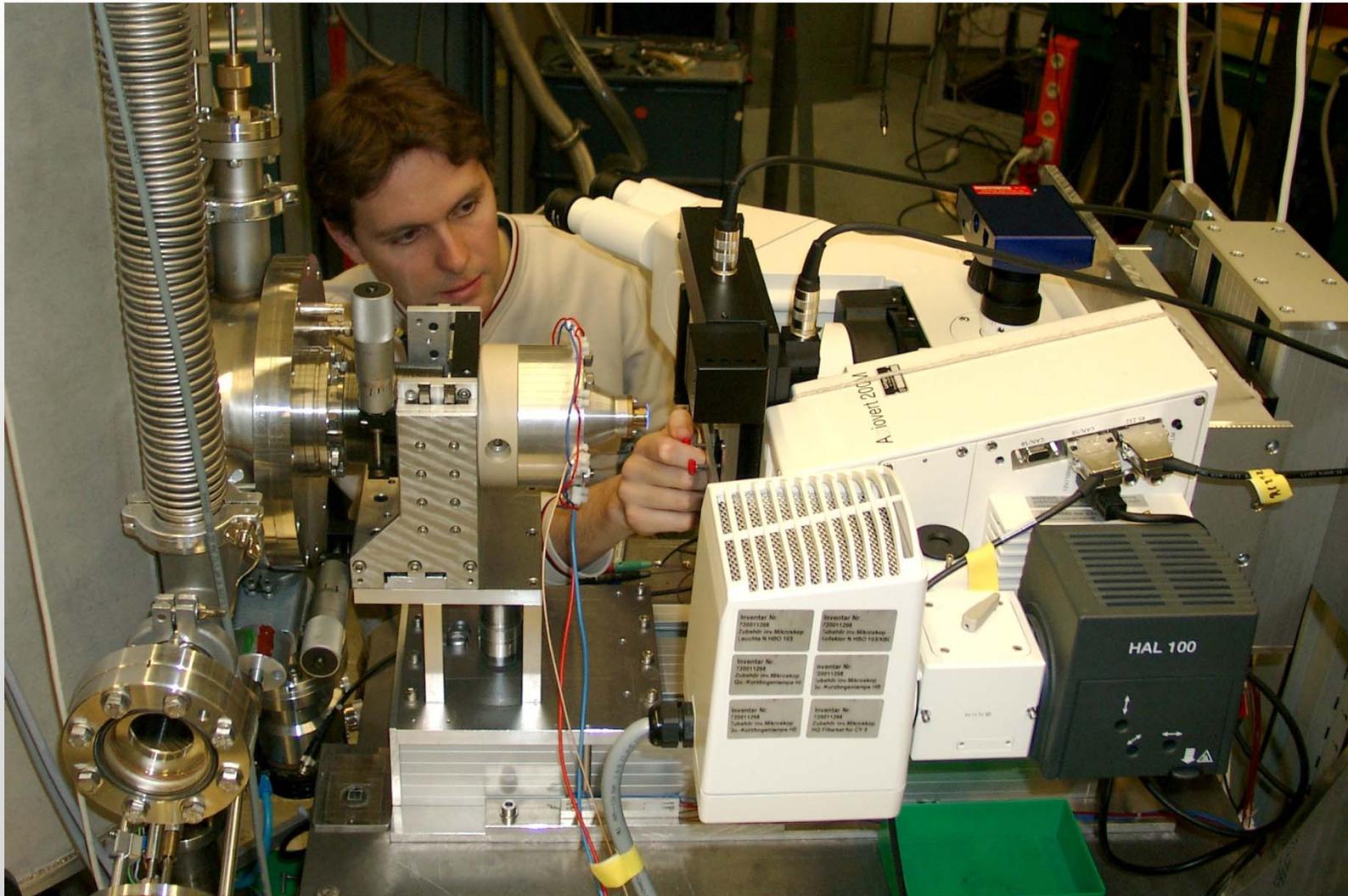
- Beam resolution  $\approx 0.5 \mu\text{m}$  (fwhm)
- Single ion irradiation facility

# Der Münchener 14 MV Tandembeschleuniger

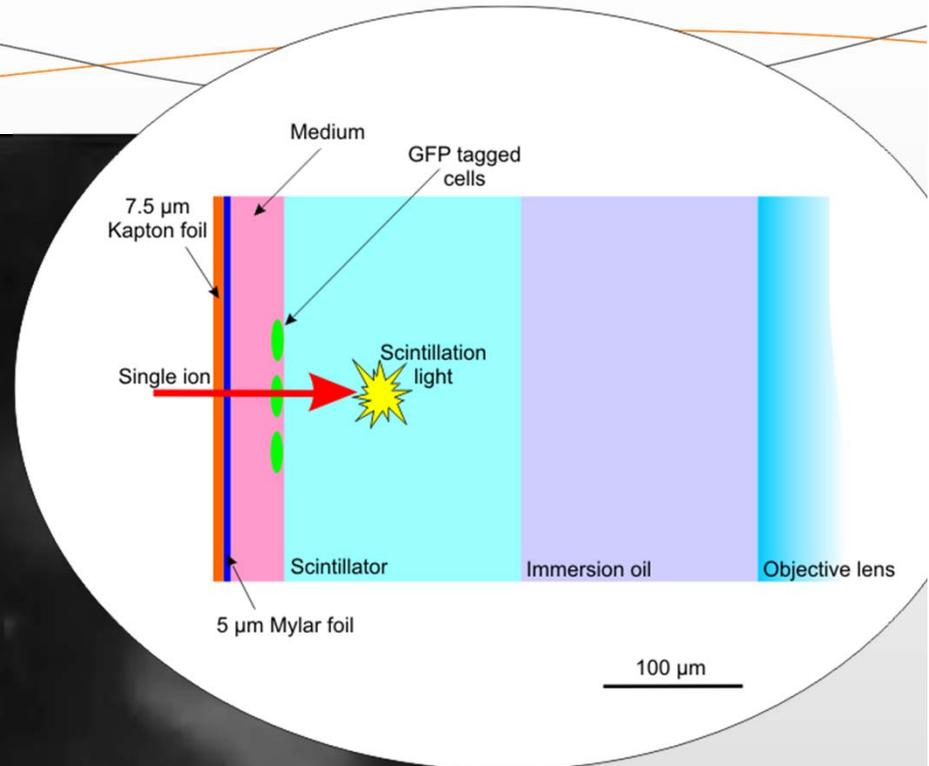
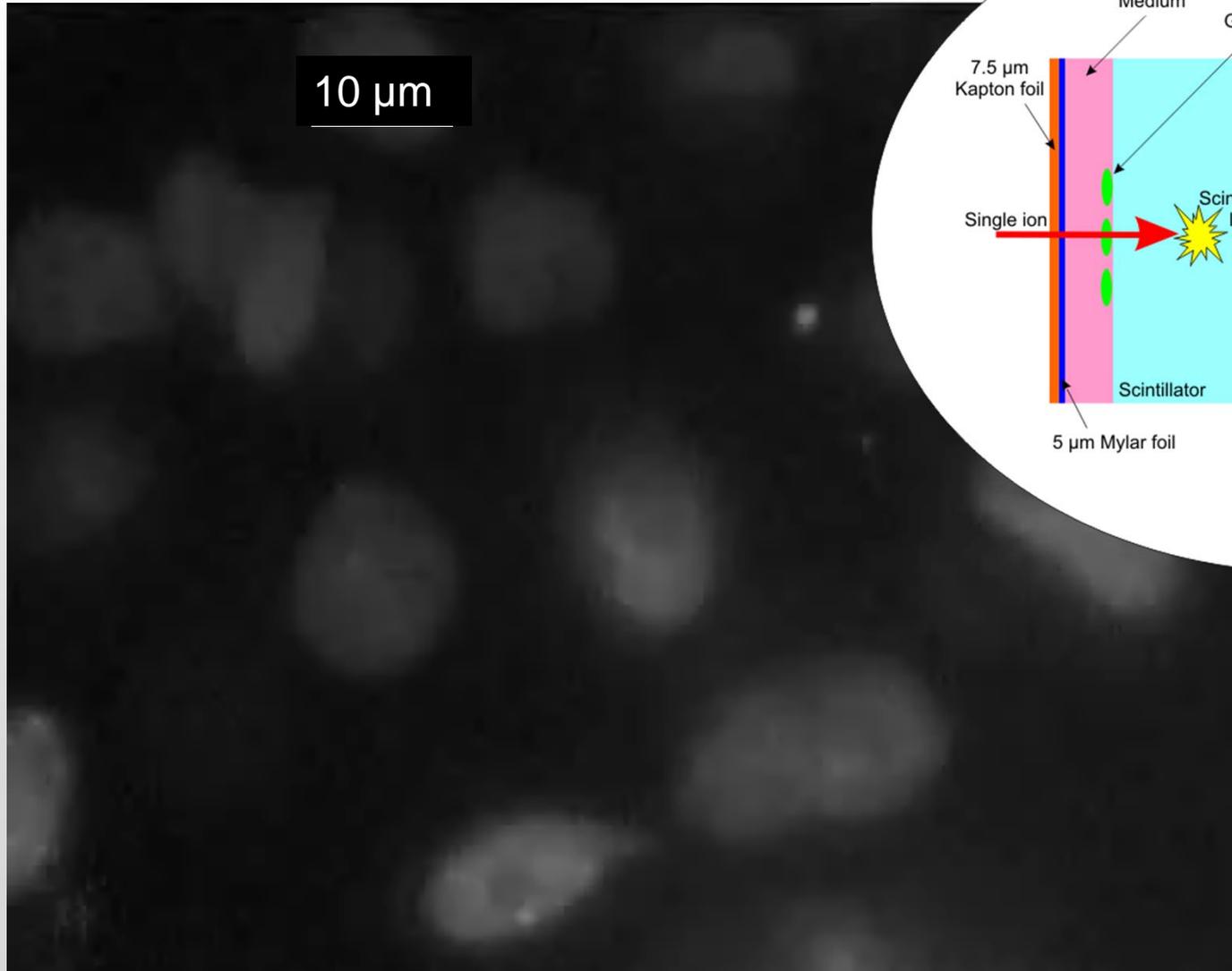
- 20 MeV p  
LET= 2.6 keV/ $\mu\text{m}$
- 55 MeV C  
LET= 304 keV/ $\mu\text{m}$   
in Wasser



# SNAKE: Mikrobestrahlung und online Mikroskopie



# MDC1 Reparaturfoci an DSB (55 MeV carbon ions)



# Die Mikrobestrahlungsanlage SNAKE

- Hochenergetische (10 – 20 MeV) Protonen, niedriger LET
- Hochenergetische (20 – 200 MeV) Schwerionen, hoher LET
- Strahldurchmesser kleiner 1  $\mu\text{m}$
- Gezielte Bestrahlungen und geometrische Muster
- Bestrahlung von Zellen, Geweben, und Mäusen
- Protonenraten bis 1 MHz in sub-Mikrometer Durchmesser

LET-Verbund: Vergleich von Bestrahlungseffekten bei 1.7 Gy

55 MeV Kohlenstoff-Ionen, Matrixbestrahlung

20 MeV Protonen, homogen verteilt

20 MeV Protonen fokussiert, Matrixbestrahlung

⇒ Direkter Vergleich der Bestrahlungseffekte

⇒ RBE aus Vergleich mit Röntgenbestrahlungen

⇒ Christoph Greubel



**2. Projektstatusgespräch**  
**zur BMBF geförderten „Nuklearen Sicherheitsforschung“**  
Dresden, 25-26 März 2015

## **Kompetenzverbund Strahlenforschung (KVSF)**

Prof. Dr. Ekkehard Dikomey  
Sprecher des KVSF

Universitätsklinikum Hamburg-Eppendorf  
Labor für Strahlenbiologie & Experimentelle Radioonkologie

- **ab 1980 kontinuierlicher Rückgang der Anzahl universitärer Institutionen mit physikalischer, chemischer oder biologischer Strahlenforschung!**
- **ab 1980 Appelle der Strahlenschutzkommission (SSK) sowie der Deutschen Gesellschaft für Radiotherapie und Onkologie (DEGRO)**

### Befürchtete Konsequenzen:

- *fehlende Kompetenz im Strahlenschutz*
  - *fehlende Kompetenz bezgl. Risikoabschätzung und Strahlenepidemiologie sowie Radioökologie*
  - *Mangel an MedizinphysikernInnen in der Klinik*
  - *fehlende Expertise für UV-Forschung und Protektion*
  - *Verlust an Expertise in der klinischen Radiobiologie sowie der experimentellen Radioonkologie*
  - *Verlust in der strahlenrelevanten Grundlagenforschung*
- **ab 1990 Treffen mit Ministerien, DFG, Fachverbänden etc.**
  - **2 / 2007 Gründung des Kompetenzverbundes Strahlenforschung (KVSF)**

### Mitglieder:

- *SSK, BfS, Projektträger*
- *Helmholtzzentren*
- *Universitäten / Fachhochschulen*
- *Gäste: BMBF und BMUB*

## 1. Strategische Ziele des Kompetenzverbunds:

Der Kompetenzverbund Strahlenforschung (KVSF) soll die wissenschaftliche und gesellschaftlich-politische Bedeutung der Strahlenforschung hervorheben. Er stellt das Exzellenzforum für eine zukunftsorientierte interdisziplinäre Strahlenforschung in Deutschland dar.

Der KVSF versteht sich als ein offenes Forum für alle auf dem Gebiet der Strahlenforschung tätigen deutschen Institutionen. Neben Universitäten mit entsprechenden Lehrstühlen und Forschungszentren (Helmholtz-Gemeinschaft, Leibniz-Gemeinschaft, Fraunhofer-Gesellschaft, Max-Planck-Gesellschaft u. a.) steht der KVSF weiteren forschenden Einrichtungen, z. B. in der Industrie, offen. Er soll aktuelle wissenschaftliche Aufgaben der Strahlenforschung identifizieren und sich für die Förderung und Weiterentwicklung des Fachgebiets einsetzen.

Eine **aktive Öffentlichkeitsarbeit** des KVSF soll dazu beitragen, die Stellung der Strahlenforschung in der Wissenschaft und ihre öffentliche Wahrnehmung zu stärken.

Ein wichtiges Anliegen des KVSF ist es, eine **systematische und kontinuierliche Nachwuchsförderung** auf dem Gebiet der Strahlenforschung gemeinsam mit Hochschulen, außeruniversitären Forschungszentren, Industrie, Politik und Verbänden zu initiieren, um das **wissenschaftliche Niveau** langfristig zu sichern und den zukünftigen Bedarf an Fachleuten mit **hoher Kompetenz** zu decken.

## 2. Handlungsfelder des Kompetenzverbundes Strahlenforschung

- Abstimmung und Bündelung von Aktivitäten im Bereich der (mit öffentlichen Mitteln geförderten) Strahlenforschung,
- **Konzeptentwicklungen zur Nachwuchsförderung** im Bereich der Strahlenforschung sowie Eintreten für eine stärkere Nachwuchsförderung gegenüber Bund und Ländern, Forschungszentren, Hochschulen und Wirtschaft,
- **Konzeptentwicklungen für die Lehre im Bereich Strahlenforschung** an Universitäten und Fachhochschulen, z.B. mit dem Ziel, Kompetenzzentren zu bilden,
- Unterstützung der Zusammenarbeit von auf dem Gebiet der Strahlenforschung tätigen Institutionen auf nationaler, europäischer und internationaler Ebene,
- Stärkung des Bewusstseins in der Öffentlichkeit für die gesellschaftliche Bedeutung der Strahlenforschung,
- Zusammenarbeit mit anderen Gremien, insbesondere mit der Strahlenschutzkommission (SSK) und mit forschenden Fachverbänden,
- **Identifizierung von Zukunftsthemen** der Strahlenforschung,
- Verfolgung und Darstellung von Trends bei der Arbeitsplatzentwicklung und bei den Ausbildungskapazitäten im Bereich der Strahlenforschung; Eruiierung von Berufschancen,
- Verfolgung von Entwicklungen und Veränderungen im Bereich einschlägiger Fachinstitutionen,
- Erarbeitung und Herausgabe von Stellungnahmen, Pressemitteilungen, Positionspapieren zu aktuellen Fragen der Strahlenforschung.

#### **4. Fachgebiete**

- Strahlenbiologie
- Strahlenepidemiologie
- Strahlenrisikoanalyse
- Medizinischer Strahlenschutz
- Radioökologie
- und verwandte Gebiete der Grundlagenforschung



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

## 1. Bekanntmachung in 2007

- Start von 8 Projekten, Laufzeit 3 Jahre, Gesamtvolumen 14 M€



Bundesministerium  
für Umwelt, Naturschutz,  
Bau und Reaktorsicherheit

## 2. Bekanntmachung in 2009

- Start von 2 Projekten, Laufzeit 3 Jahre, Gesamtvolumen 2,5 M€



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

- Start von 2 Projekten, Laufzeit 3 Jahre, Gesamtvolumen 4 M€



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

## 3. Bekanntmachung in 2011

- Start von 11 Projekten, Laufzeit 3-5 Jahre, Gesamtvolumen 30 M€



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

## 4. Bekanntmachung in 2016 geplant

- **Fragen**

- Was wurde bisher gefördert?
- Welche Fachgebiete wurden gefördert?
- Welche wissenschaftliche und gesellschaftliche Relevanz?
- Wer wurde gefördert?
- Kann die Strahlenforschung neue Fachgebiete dazugewinnen?
- Können Forschungscluster gebildet werden?
- Welche Öffentlichkeitsarbeit wurde geleistet?

- **Bewertung der Förderung**

- Was wurde getan?
- Was wurde erreicht?
- Was muss getan werden?

## Was wurde bisher gefördert?

### Abgelaufene Projekte

#### BMBF geförderte Projekte

Nr	Titel	Gesamtkosten	Leitung
1	Wechselwirkung verschiedener Reparaturwege bei der Prozessierung von DNA Strahlenschäden	2.880.072 €	Prof. Dr. Gisela Taucher-Scholz, HZ GSI Darmstadt
2	Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen	1.426.153 €	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
3	Bedeutung von UVA für Hautkrebs und Hautalterung	1.935.032 €	Prof. Dr. Petra Boukamp, DKFZ Heidelberg
4	Systematische Analyse von Strahleneffekten mit Relevanz für Krebsentstehung und Krebstherapie	2.209.743 €	Prof. Dr. Peter Huber, DKFZ Heidelberg
5	Ein systembiologischer Ansatz für die Strahlenbiodosimetrie und der Analyse der individuellen Strahlensensitivität	2.509.762 €	Dr. Ralf Kriehuber, HZ Jülich
6	Schädigungspotential von Radionukliden	2.208.700 €	Prof. Dr. Jörg Steinbach, HZ Rossendorf
7	Individuelle Strahlenempfindlichkeit und genomische Instabilität	2.230.983 €	Prof. Heinz-Erich Wichmann, LMU München
8	Innovative Verfahren der biomedizinischen Bildgebung zur Optimierung von medizinischen Strahlenanwendungen	2.598.271 €	Dr. Christoph Hoeschen, HZ München
9	Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen	3.706.370 €	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
10	Intrinsische Strahlenempfindlichkeit: Identifikation, Mechanismen und Epidemiologie	2.804.222 €	Prof. Dr. Maria Blettner, Uni Mainz

#### BMUB geförderte Projekte

Nr	Titel	Gesamtkosten	Leitung
11	3D/4D Architektur von chromosomalen Bruchpunktregionen in Zellkernen nach Bestrahlung von Normalzellen und Tumorzellen	1.182.385 €	Prof. Dr. Michael Hausmann, Uni Heidelberg
12	Entwicklung strahleninduzierter DNA-Schäden während der S-Phase des Zellzyklus	1.334.840 €	Prof. Dr. Irene Dornreiter, PETTE, Hamburg
	<b>Summe</b>	<b>27.026.533 €</b>	

## Was wurde bisher gefördert?

### Laufende Projekte

#### BMBF geförderte Projekte

Nr	Titel	Gesamtkosten	Leitung
13	Genetische Risiken und entzündungshemmende Wirkung von dicht-ionisierender Strahlung: Vergleichende Untersuchungen zur Wirkung von Radon in Zell- und Tier-Modellen und in Radon-Patienten	4.072.045 €	Prof. Dr. Claudia Fournier, HZ GSI Darmstadt
14	Identifizierung von molekularen Zielstrukturen und Signalnetzwerken, die Strahlenüberempfindlichkeit und -resistenz beeinflussen	1.756.643 €	Dr. Sabine Hornhardt, BfS Neuherberg
15	In-vitro Untersuchungen zur Wirkung von dicht und dünn ionisierender Strahlung auf die frühe pränatale Entwicklung	717.981 €	Dr. Sylvia Ritter, HZ GSI Darmstadt
16	Personalisierte Abschätzung von Spätfolgen nach Strahlenexposition und Orientierungshilfe für Strahlenanwendungen in der Medizin	3.156.472 €	Dr. Peter Jacob, HZ München
17	Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen	4.057.243 €	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
18	Simulation von Hoch-LET-Effekten mittels fokussierter Niedrig-LET-Strahlung	1.687.329 €	Prof. Dr. Günther Dollinger, Bund München
19	DNA-Doppelstrangbruchreparatur in Tumoren: Mechanismen und Targets	2.100.892 €	Prof. Ekkehard Dikomey, UKE Hamburg
20	Ein Ansatz zur Bewertung neurologischer Strahlenschäden	2.837.886 €	Prof. Dr. Markus Löbrich, Uni Darmstadt
21	DNA-Reparaturfoci als Marker der individuellen Strahlenempfindlichkeit	2.276.771 €	Prof Dr. Claudia E. Rube, Uni Homburg
22	Kombination statt Addition - UV bis IR Strahlung in der Krebsentstehung und Alterung	3.233.858 €	Prof. Dr. Petra Boukamp, DKFZ Heidelberg
23	Erkennung, Verarbeitung und biologische Konsequenzen von Chromatinschäden nach Teilchenbestrahlung	2.464.325 €	Dr. Burkhard Jakob, HZ GSI Darmstadt
	<b>Summe (neu)</b>	<b>28.361.445 €</b>	
	<b>Summe (alt)</b>	<b>27.026.533 €</b>	
	<b>Gesamtsumme</b>	<b>55.387.978 €</b>	

### 4. Fachgebiete

- Strahlenbiologie
  - DNA-Reparatur, UV-Schäden, Klinische Strahlenbiologie, Radioimmunologie
- Strahlenepidemiologie
- Strahlenrisikoanalyse
- Medizinischer Strahlenschutz
- Radioökologie
- und verwandte Gebiete der Grundlagenforschung
- Strahlenphysik und Strahlentherapie

## Welche Fachgebiete wurden gefördert?

### Abgelaufene Projekte

#### BMBF geförderte Projekte

Nr	Titel	Bereich	Leitung
1	Wechselwirkung verschiedener Reparaturwege bei der Prozessierung von DNA Strahlenschäden	DNA-Reparatur	Prof. Dr. Gisela Taucher-Scholz, HZ GSI Darmstadt
2	Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen	Radioökologie	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
3	Bedeutung von UVA für Hautkrebs und Hautalterung	UV-Schäden	Prof. Dr. Petra Boukamp, DKFZ Heidelberg
4	Systematische Analyse von Strahleneffekten mit Relevanz für Krebsentstehung und Krebstherapie	Strahlentherapie	Prof. Dr. Peter Huber, DKFZ Heidelberg
5	Ein systembiologischer Ansatz für die Strahlenbiodosimetrie und der Analyse der individuellen Strahlensensitivität	DNA-Reparatur / Klinische Strahlenbiol.	Dr. Ralf Kriehuber, HZ Jülich
6	Schädigungspotential von Radionukliden	Klinische Strahlenbiol.	Prof. Dr. Jörg Steinbach, HZ Rossendorf
7	Individuelle Strahlenempfindlichkeit und genomische Instabilität	Strahlenrisiko	Prof. Heinz-Erich Wichmann, LMU München
8	Innovative Verfahren der biomedizinischen Bildgebung zur Optimierung von medizinischen Strahlenanwendungen	Medizinischer Strahlenschutz	Dr. Christoph Hoeschen, HZ München
9	Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen	Radioökologie	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
10	Intrinsische Strahlenempfindlichkeit: Identifikation, Mechanismen und Epidemiologie	Strahlenrisiko / Epidemiologie	Prof. Dr. Maria Blettner, Uni Mainz

#### BMUB geförderte Projekte

Nr	Titel		Leitung
11	3D/4D Architektur von chromosomalen Bruchpunktregionen in Zellkernen nach Bestrahlung von Normalzellen und Tumorzellen	DNA-Reparatur	Prof. Dr. Michael Hausmann, Uni Heidelberg
12	Entwicklung strahleninduzierter DNA-Schäden während der S-Phase des Zellzyklus	DNA-Reparatur	Prof. Dr. Irene Dornreiter, PETTE, Hamburg

## Welche Fachgebiete wurden gefördert?

### Laufende Projekte

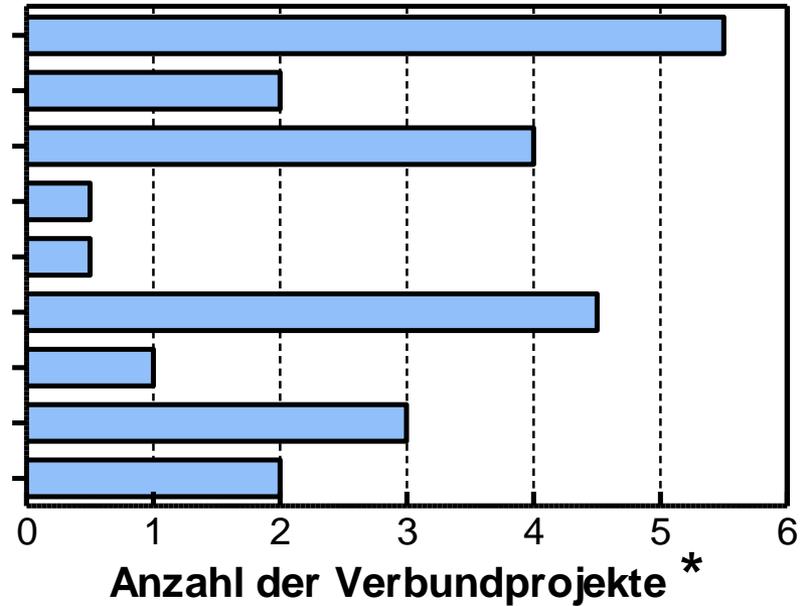
#### BMBF geförderte Projekte

Nr	Titel	Bereich	Leitung
13	Genetische Risiken und entzündungshemmende Wirkung von dicht-ionisierender Strahlung: Vergleichende Untersuchungen zur Wirkung von Radon in Zell- und Tier-Modellen und in Radon-Patienten	Strahlenrisiko, / Radioimmunol.	Prof. Dr. Claudia Fournier, HZ GSI Darmstadt
14	Identifizierung von molekularen Zielstrukturen und Signalnetzwerken, die Strahlenüberempfindlichkeit und -resistenz beeinflussen	Klinische Strahlenbiologie	Dr. Sabine Hornhardt, BfS Neuherberg
15	In-vitro Untersuchungen zur Wirkung von dicht und dünn ionisierender Strahlung auf die frühe pränatale Entwicklung	Strahlenrisiko	Dr. Sylvia Ritter, HZ GSI Darmstadt
16	Personalisierte Abschätzung von Spätfolgen nach Strahlenexposition und Orientierungshilfe für Strahlenanwendungen in der Medizin	Strahlenrisiko	Dr. Peter Jacob, HZ München
17	Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen	Radioökologie	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
18	Simulation von Hoch-LET-Effekten mittels fokussierter Niedrig-LET-Strahlung	Strahlenphysik	Prof. Dr. Günther Dollinger, Bund München
19	DNA-Doppelstrangbruchreparatur in Tumoren: Mechanismen und Targets	Klinische Strahlenbiologie	Prof. Ekkehard Dikomey, UKE Hamburg
20	Ein Ansatz zur Bewertung neurologischer Strahlenschäden	DNA Reparatur / Klinische Strahlenbiol.	Prof. Dr. Markus Löbrich, Uni Darmstadt
21	DNA-Reparaturfoci als Marker der individuellen Strahlenempfindlichkeit	DNA Reparatur / Strahlenrisiko	Prof. Dr. Claudia E. Rube, Uni Homburg
22	Kombination statt Addition - UV bis IR Strahlung in der Krebsentstehung und Alterung	UV-Schäden	Prof. Dr. Petra Boukamp, DKFZ Heidelberg
23	Erkennung, Verarbeitung und biologische Konsequenzen von Chromatinschäden nach Teilchenbestrahlung	DNA-Reparatur	Dr. Burkhard Jakob, HZ GSI Darmstadt

## Welche Fachgebiete wurden gefördert?

**Strahlenbiologie:** DNA Reparatur  
UV-Schäden  
Klin. Strahlenbiologie  
Radioimmunologie

**Epidemiologie**  
**Strahlenrisiko**  
**Medizin. Strahlenschutz**  
**Radioökologie**  
**Strahlenphysik, - therapie**



\* Projekte waren z.T. zwei Themenbereichen zuzuordnen

## ● Beispiele

- 02NUK002: Radioaktivität in der Nahrung
- 02NUK003: UV-A und Hautkrebs
- 02NUK006: Grundlagen für gezielte Tumorthherapie mittels radioaktiver Antikörper
- 02NUK007: Krebsrisiko und individuelle Strahlenempfindlichkeit
- 02NUK016: Marker der individuellen Strahlenempfindlichkeit
- 02NUK017: Wirkung von Radon
- 02NUK025: Wirkung von Strahlung auf pränatale Entwicklung
- 02NUK026: Abschätzung von Strahlenrisiken
- 02NUK030: Radioaktivität in der Umwelt
- 02NUK031: Simulation von Hoch-LET-Effekten durch Niedrig-LET-Strahlung
- 02NUK032: Grundlagen für gezielte Tumorthherapie mittels Bestrahlung
- 02NUK035: Reparaturfoci als Marker der individuellen Strahlenempfindlichkeit
- 02NUK036: UV-A, Hautkrebs und Alterung

## Wer wurde gefördert?

### Abgelaufene Projekte

#### BMBF geförderte Projekte

Nr	Titel	Bereich	Leitung
1	Wechselwirkung verschiedener Reparaturwege bei der Prozessierung von DNA Strahlenschäden	DNA-Reparatur	Prof. Dr. Gisela Taucher-Scholz, HZ GSI Darmstadt
2	Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen	Radioökologie	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
3	Bedeutung von UVA für Hautkrebs und Hautalterung	UV-Schäden	Prof. Dr. Petra Boukamp, DKFZ Heidelberg
4	Systematische Analyse von Strahleneffekten mit Relevanz für Krebsentstehung und Krebstherapie	Strahlentherapie	Prof. Dr. Peter Huber, DKFZ Heidelberg
5	Ein systembiologischer Ansatz für die Strahlenbiodosimetrie und der Analyse der individuellen Strahlensensitivität	DNA-Reparatur / Klinische Strahlenbiol.	Dr. Ralf Kriehuber, HZ Jülich
6	Schädigungspotential von Radionukliden	Klinische Strahlenbiol.	Prof. Dr. Jörg Steinbach, HZ Rossendorf
7	Individuelle Strahlenempfindlichkeit und genomische Instabilität	Strahlenrisiko	Prof. Heinz-Erich Wichmann, LMU München
8	Innovative Verfahren der biomedizinischen Bildgebung zur Optimierung von medizinischen Strahlenanwendungen	Medizinischer Strahlenschutz	Dr. Christoph Hoeschen, HZ München
9	Radionuklide in der Umwelt, ihr Transport in Nahrungsketten zum und im Menschen	Radioökologie	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
10	Intrinsische Strahlenempfindlichkeit: Identifikation, Mechanismen und Epidemiologie	Strahlenrisiko / Epidemiologie	Prof. Dr. Maria Blettner, Uni Mainz

#### BMUB geförderte Projekte

Nr	Titel		Leitung
11	3D/4D Architektur von chromosomalen Bruchpunktregionen in Zellkernen nach Bestrahlung von Normalzellen und Tumorzellen	DNA-Reparatur	Prof. Dr. Michael Hausmann, Uni Heidelberg
12	Entwicklung strahleninduzierter DNA-Schäden während der S-Phase des Zellzyklus	DNA-Reparatur	Prof. Dr. Irene Dornreiter, PETTE, Hamburg

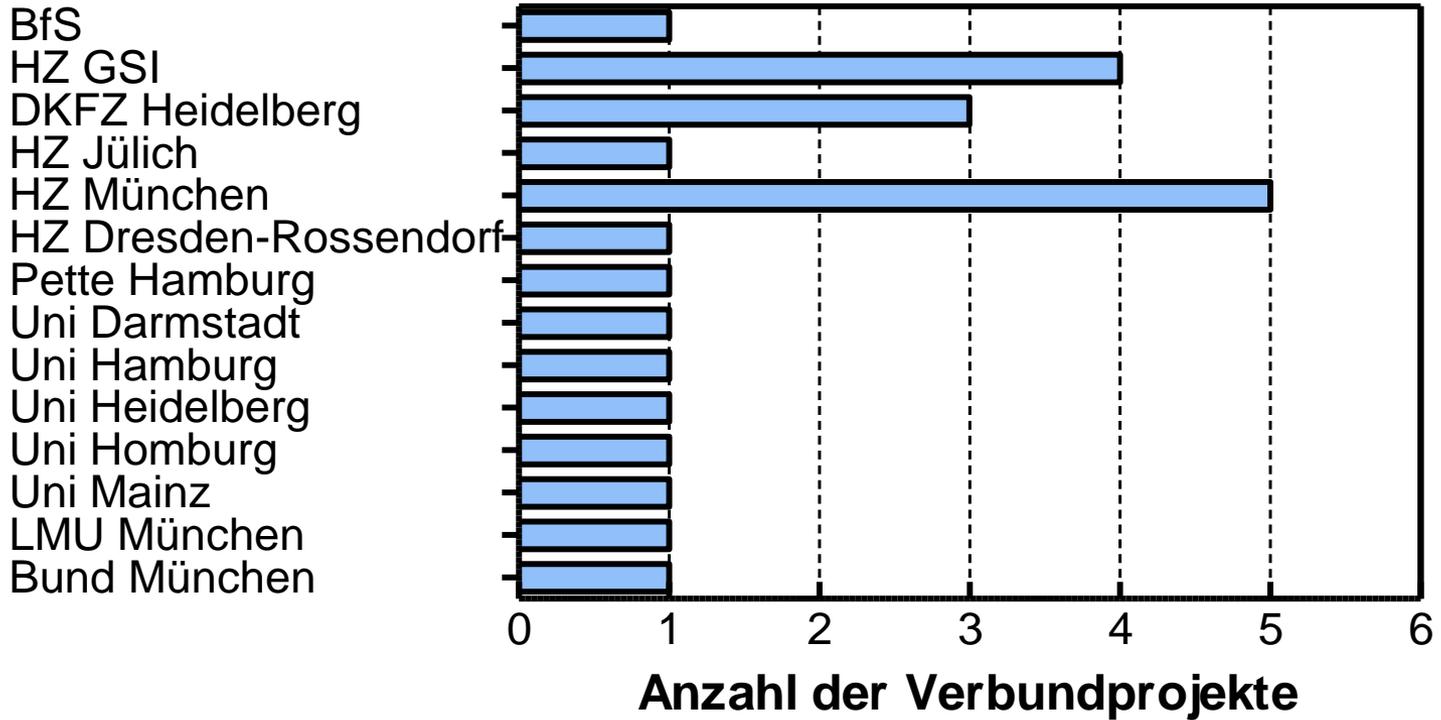
## Laufende Projekte

### BMBF geförderte Projekte

Nr	Titel	Bereich	Leitung
13	Genetische Risiken und entzündungshemmende Wirkung von dicht-ionisierender Strahlung: Vergleichende Untersuchungen zur Wirkung von Radon in Zell- und Tier-Modellen und in Radon-Patienten	Strahlenrisiko, / Radioimmunol.	Prof.Dr. Claudia Fournier, HZ GSI Darmstadt
14	Identifizierung von molekularen Zielstrukturen und Signalnetzwerken, die Strahlenüberempfindlichkeit und -resistenz beeinflussen	Klinische Strahlenbiologie	Dr. Sabine Hornhardt, BfS Neuherberg
15	In-vitro Untersuchungen zur Wirkung von dicht und dünn ionisierender Strahlung auf die frühe pränatale Entwicklung	Strahlenrisiko	Dr. Sylvia Ritter, HZ GSI Darmstadt
16	Personalisierte Abschätzung von Spätfolgen nach Strahlenexposition und Orientierungshilfe für Strahlenanwendungen in der Medizin	Strahlenrisiko	Dr. Peter Jacob, HZ München
17	Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen	Radioökologie	Dr. Jochen Tschiersch, HZ München
18	Simulation von Hoch-LET-Effekten mittels fokussierter Niedrig-LET-Strahlung	Strahlenphysik	Prof. Dr. Günther Dollinger, Bund München
19	DNA-Doppelstrangbruchreparatur in Tumoren: Mechanismen und Targets	Klinische Strahlenbiologie	Prof. Ekkehard Dikomey, UKE Hamburg
20	Ein Ansatz zur Bewertung neurologischer Strahlenschäden	DNA Reparatur / Klinische Strahlenbiol.	Prof. Dr. Markus Löbrich, Uni Darmstadt
21	DNA-Reparaturfoci als Marker der individuellen Strahlenempfindlichkeit	DNA Reparatur / Strahlenrisiko	Prof Dr. Claudia E. Rube, Uni Homburg
22	Kombination statt Addition - UV bis IR Strahlung in der Krebsentstehung und Alterung	UV-Schäden	Prof. Dr. Petra Boukamp, DKFZ Heidelberg
23	Erkennung, Verarbeitung und biologische Konsequenzen von Chromatinschäden nach Teilchenbestrahlung	DNA-Reparatur	Dr. Burkhard Jakob, HZ GSI Darmstadt

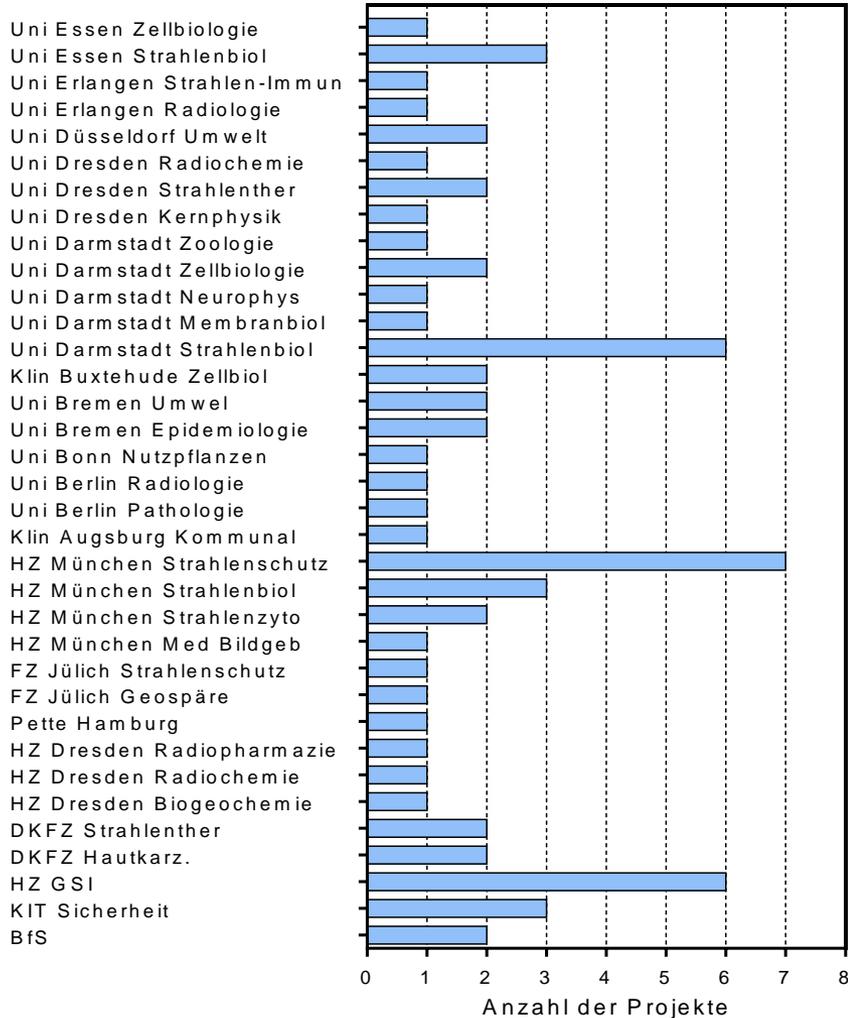
## Wer wurde gefördert?

### Koordination

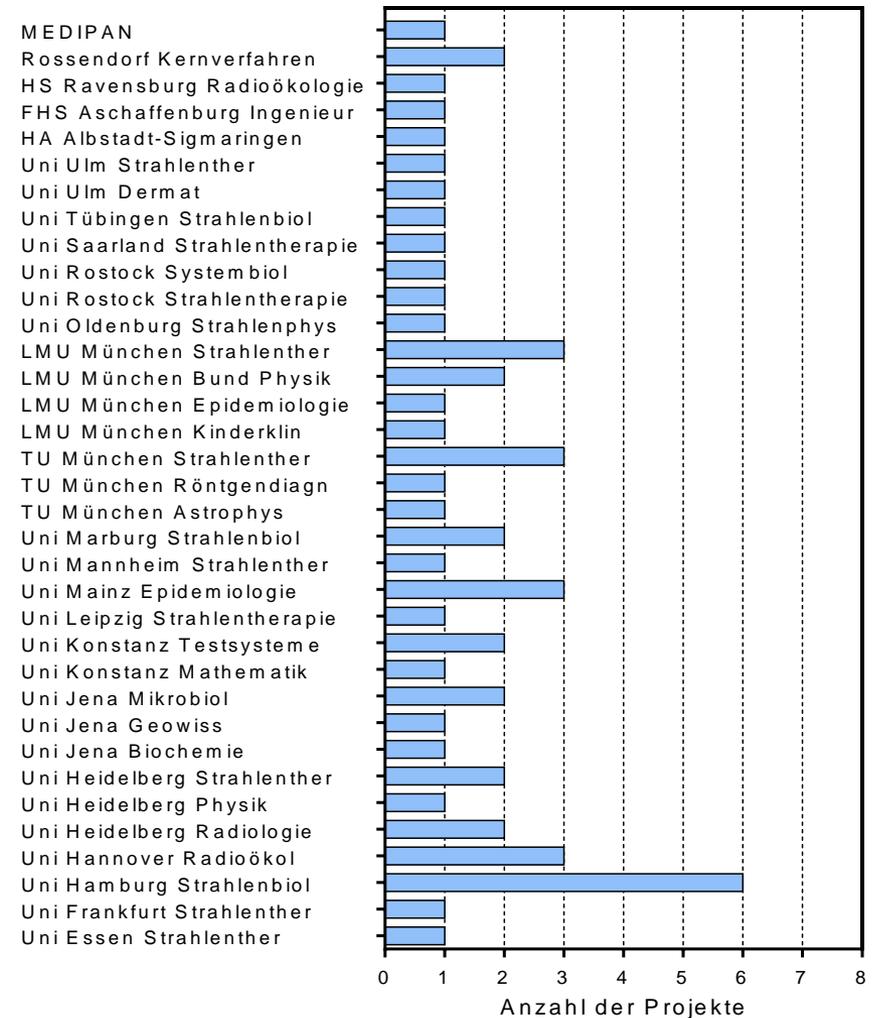


## Wer wurde gefördert?

Projekte



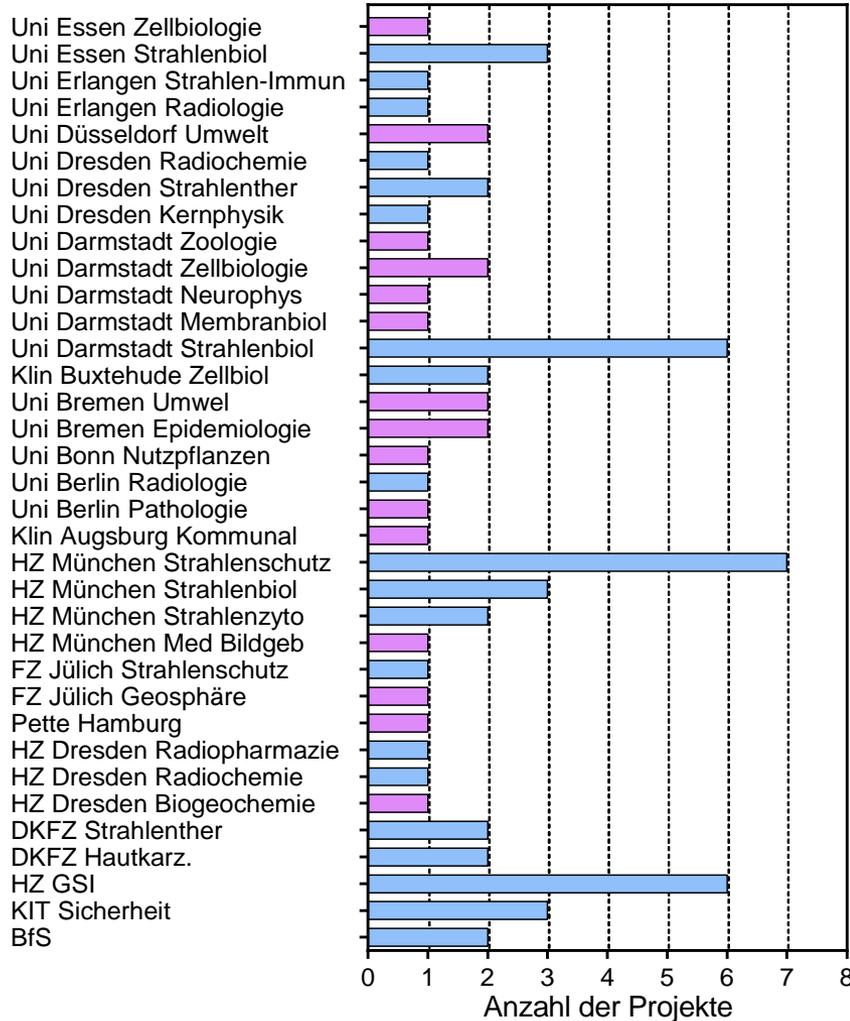
Projekte



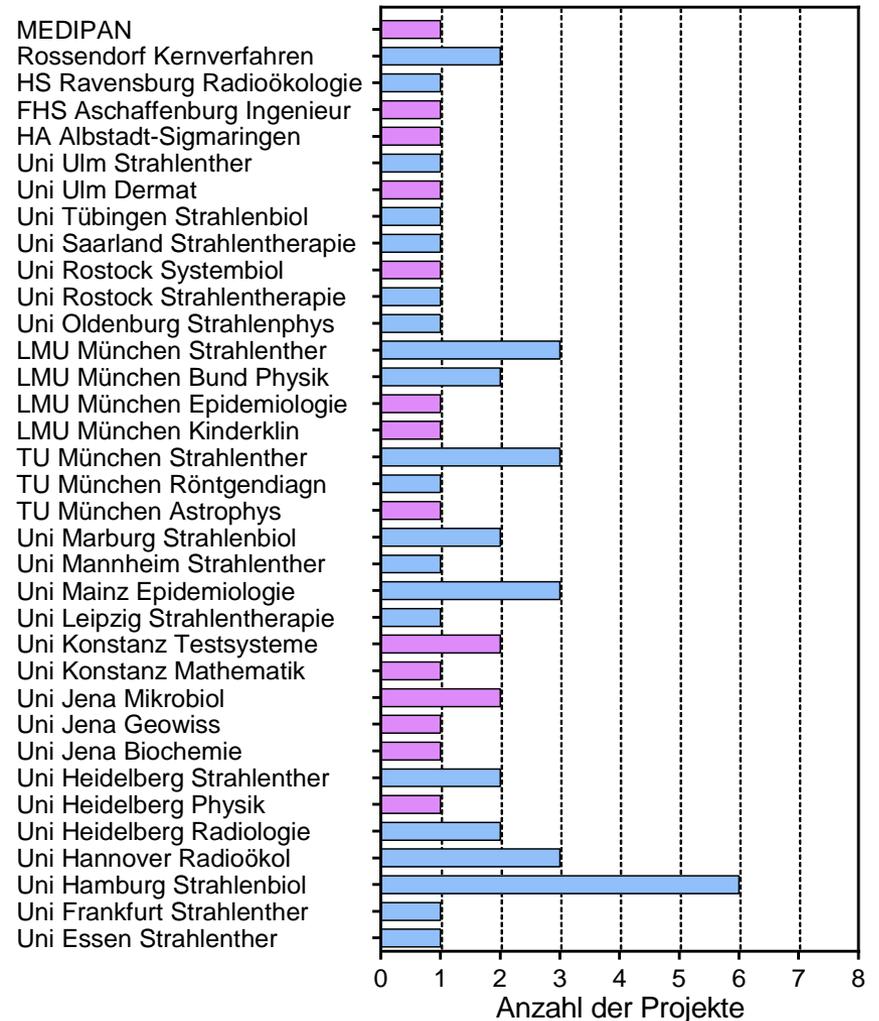
➤ **Gefördert wurden: 122 Teilprojekte in 70 Abteilungen**

## Integration von „Strahlungs-fremden“ Abteilungen!

Projekte



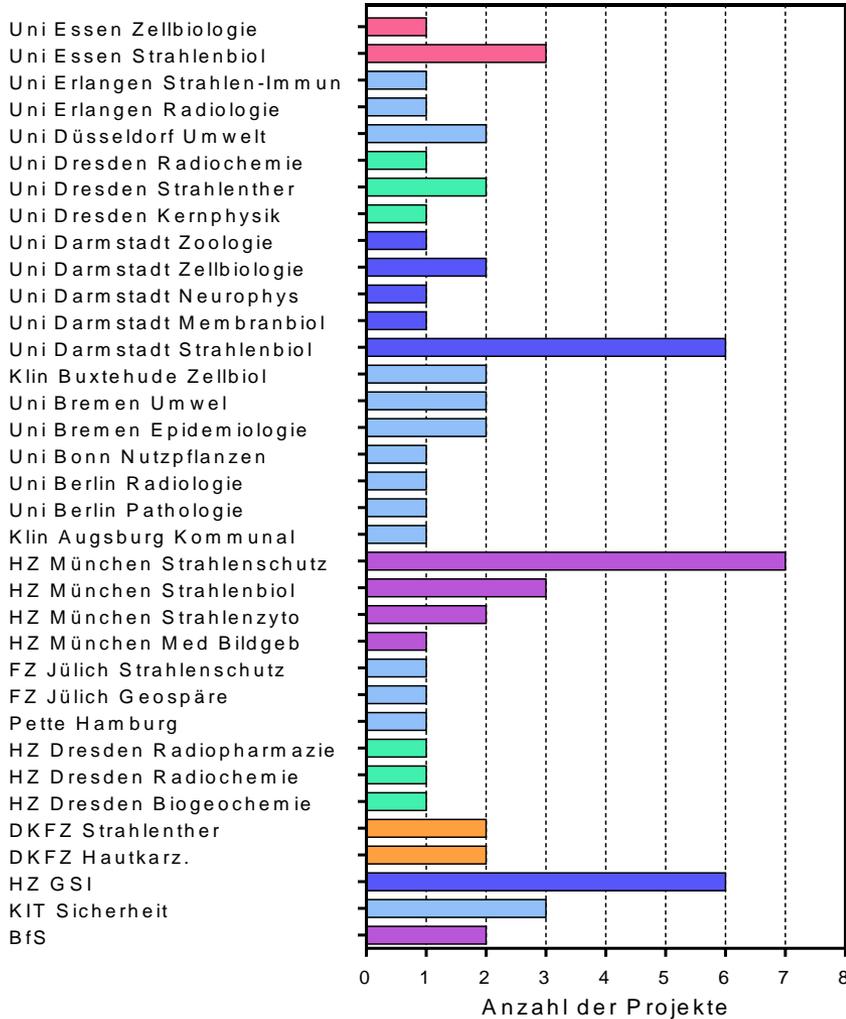
Projekte



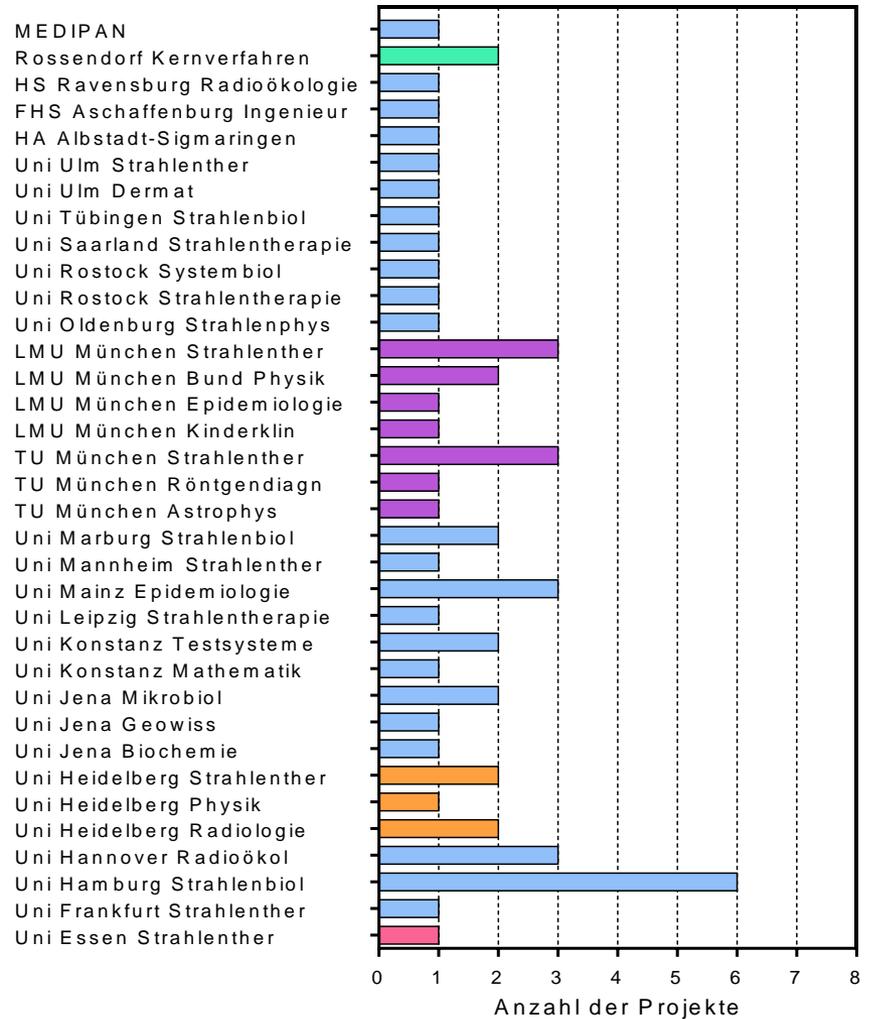
➤ Es konnten 30 bisher „Strahlungs-fremde“ Abteilungen gewonnen werden!!

# Aufbau von Forschungsclustern!

Projekte



Projekte



➤ **Starke lokale Cluster in Essen, Dresden, Darmstadt, München, Heidelberg!!**

**02NUK017** Genetische Risiken und entzündungshemmende Wirkung von dicht-ionisierender Strahlung: Vergleichende Untersuchungen zur Wirkung von Radon in Zell- und Tier-Modellen und in Radon-Patienten

**TU Darmstadt**  
**FG Membranbiophysik**  
Prof. Dr. G. Thiel

**TU Darmstadt**  
**AG Zellbiologie und Epigenetik**  
Prof. Dr. MC Cardoso

**TU Darmstadt**  
**AG Entwicklungsbiol. und Neurogenetik**  
Prof. Dr. P. Layer

**HZ GSI / Darmstadt**  
**Abt. Biophysik**  
Prof. Dr. C. Fournier  
*Koordination*

**TU Darmstadt**  
**AG Strahlenbiol. und DNA Reparatur**  
Prof. Dr. M Löbrich

**Uni Erlangen**  
**AG Strahlenimmunologie**  
PD. Dr. U Gaipl

**Uni Frankfurt**  
**Klin. f. Strahlenther. und Onkologie**  
Prof. Dr. F. Rödel

## 02NUK030 Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen

**KIT Karlsruhe**  
Radioanalyt.Labor  
Strahlenschutz  
Dr. S.Breustedt

**Dresden-Rossendorf**  
V. f. Kernverfahrens-  
technik und Analytik  
Dr. D. Hampe

**Uni Jena**  
Inst. f.  
Geowissenschaften  
Prof. Dr. G. Büchel

**HZ Dresden-Rossend.**  
Abt. Biogeochemie  
Dr. T. Arnold

**HZ München**  
Inst. f. Strahlenschutz  
Dr. J. Tschiersch  
*Koordination*

**Uni Hannover**  
Inst. f. Radioökologie  
und Strahlenschutz  
Dr. B. Riebe

**HS Ravensburg-  
Weingarten**  
FS Radioökologie  
Prof. Dr. T. E. Klemt

**TU München**  
Inst. f. Exp. Physik  
Prof. Dr. St. Schönert

**Uni Bremen**  
Inst. f. Umweltphysik  
Dr. H. Fischer

- **Wanderausstellung „Strahlenforschung“**



- **Initiator: Prof. Dr. Dr. Kraft (emer.), HR GSI, Biophysik**
  - In Koop. mit vielen KollegInnen
- **Förderung durch das BMBF / Referat Öffentlichkeitsarbeit**
- **Broschüre und 25 Wandtafeln!**

- **Ziel**

- Die Wanderausstellung richtet sich an alle Teile der Bevölkerung, vor allem aber an **interessierte Schülerinnen und Schüler**.
- Anhand der natürlichen und künstlichen Strahlenexposition, der medizinischen Anwendung in Diagnostik und Therapie sowie der Grundlagenforschung soll **das ganze Spektrum** der Strahlenexposition und -forschung dargestellt werden.
- Der Kompetenzverbund Strahlenforschung (KVSF) will mit dieser Darstellung zu einer **breiten Information** über den Nutzen und die Risiken der Strahlung beitragen und damit zu einer sachlichen Diskussion zwischen allen Teilen der Bevölkerung anregen.

● **Inhalt**



**Übersicht**

01 Strahlung ist überall



**Grundlagen und Methoden der Strahlenforschung**

- 02 Wozu brauchen wir biologische Strahlenforschung?
- 03 Was sind ionisierende Strahlen?
- 04 Ionisierende Strahlung – Erzeugung und Absorption
- 05 Dosimetrie – Wie kann man ionisierende Strahlung messen?
- 06 Methoden der Strahlenbiologie
- 07 Chromosomen-Analyse zur Bestimmung des Strahlenrisikos
- 08 DNA-Doppelstrangbrüche
- 09 Strahlenepidemiologie



**Natürliche Strahlenexposition**

- 10 Inkorporation und Nahrungsmittel
- 11 Radon in der Atemluft
- 12 UV-Strahlung
- 13 Kosmische Strahlung



**Künstliche Strahlenexposition – Kernkraft**

- 14 Kernenergie und Strahlenbelastung
- 15 Nukleare Unfälle und Notfallschutz
- 16 Strahlenwirkung und -risiko



**Medizinische Anwendungen – Diagnostik**

- 17 Röntgendiagnostik
- 18 Einzel-Photonen-Emissions-Computer-Tomographie (SPECT)
- 19 Positronen-Emissions-Tomographie (PET)



**Medizinische Anwendungen – Therapie**

- 20 Krebsbehandlung durch Strahlentherapie
- 21 Grundlagen der Strahlentherapie
- 22 Ablauf einer Strahlentherapie
- 23 Klinische Strahlenbiologie
- 24 Radon in der Therapie
- 25 Ionenstrahl-Therapie

● **Inhalt**

- **Wandtafel**
  - **Inkorporation und Nahrungsmittel**
- **Broschüre**
  - **Texte**

● **Erste Resonanz**

- **Anfragen bzw. Auslieferung:**
- **Schülerlabor Uni Essen**
- **Schülerlabor HZ GSI**
- **Schülerlabor KIT Karlsruhe**
- **Schülerlabor FZ Dresden-Rossendorf**
- **Schülerlabor DESY Hamburg**
- **Schulbehörde Hamburg**
- ...

NATÜRLICHE STRAHLENEXPOSITION

# INKORPORATION UND NAHRUNGSMITTEL

**Radioaktivität im Körper**

- In jedem menschlichen Körper finden ca. **10.000 Zerfälle pro Sekunde** durch natürliche, inkorporierte, **radioaktive Stoffe** statt, d. h. unser Körper enthält etwa **10 kBq** Aktivität
- Der hauptsächliche Anteil dieser Aktivität kommt von den Radionukliden **Kalium-40** (Halbwertszeit 1,3 Milliarden Jahre) und **Kohlenstoff-14** (Halbwertszeit 5730 Jahre)
- Die **Dosisleistung** (Dosis pro Zeit) beträgt etwa **0,04 µSv/h**



**Polonium in Zigaretten**  
Tabakpflanzen nehmen über die Wurzel bevorzugt Blei-210 auf, das im Boden aus Uran gebildet wird und in den Alpha-Strahler Polonium zerfällt.

Eine Zigarette enthält ca. 2–6 pCi Alpha-Strahler. Polonium geht quantitativ in den Rauch und wird nicht gefiltert. Belastung für mittleren Raucher: **40–150 mSv** in der Lunge.





- Auch in **Nahrungsmitteln** befinden sich natürliche, radioaktive Stoffe
- Fleisch, Gemüse und viele andere Nahrungsmittel enthalten eine Aktivität von etwa **50–150 Bq/kg**
- Milch enthält eine Aktivität von etwa **50 Bq/Liter**
- Trinkwasser enthält durch Radon eine Aktivität von etwa **5 Bq/Liter**



- Auch heute noch finden sich in Süddeutschland Wildpilze und Wildschweinfleisch mit Aktivitäten von **500 Bq/kg** und mehr durch Cäsium-137 aufgrund des **Tschernobyl-Fallouts**
- Die Nahrungsaufnahme von **150 g** mit 500 Bq/kg ergibt eine Dosis von **1 µSv**



AUSSTELLUNG STRAHLENFORSCHUNG

**KVSF**  
Kompetenzverbund  
Strahlenforschung



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

● **Was wurde getan?**

- **Förderung der Strahlenforschung durch BMBF und BMUB**
- **mit 55 M€**
- **23 Verbundprojekte**
- **Insgesamt 122 Teilprojekte**
- **70 Institutionen**

● **Was wurde erreicht?**

- **erhebliche Stabilisierung der Strahlenforschung in Deutschland**
- **Erhaltung und Ausbau von Institutionen**
- **Massive Integration neuer Disziplinen in die Strahlenforschung**
- **Bildung von lokal starken Clustern in Darmstadt, Dresden, Essen, Heidelberg und München!**
- **International herausragende Positionen für Themenbereiche**
  - **DNA-Reparatur**
  - **Klinische Strahlenbiologie**
  - **Strahlenrisiken**
- **Aufbau einer Wanderausstellung zur „Strahlenforschung“**

- **Was muss getan werden?**
  - **Stabilität in der Förderung der Strahlenforschung durch BMBF und BMUB**
  - **Darstellung der erreichten gesellschaftlichen Relevanz**
  - **Ausbau der „Cluster“**
  - **Gezielte Förderung von hoch-kompetitiver Forschung!**
  - **Nachwuchsförderung!!**
  - **Schwerpunkt „Lehre“**
    - **Strahlenbiologie**
    - **Strahlenrisiko**
    - **Strahlenphysik / Medizinphysik**
    - **...**

- KVSF ist ein Erfolgsmodell!**
- Danke an BMBF und BMUB!**
- Danke an den Projektträger**
- Danke an die vielen KollegenInnen!**
- Danke für Ihre Aufmerksamkeit!**

# AP 4.3 Investigations of the interactions of subsurface living microorganisms with uranium

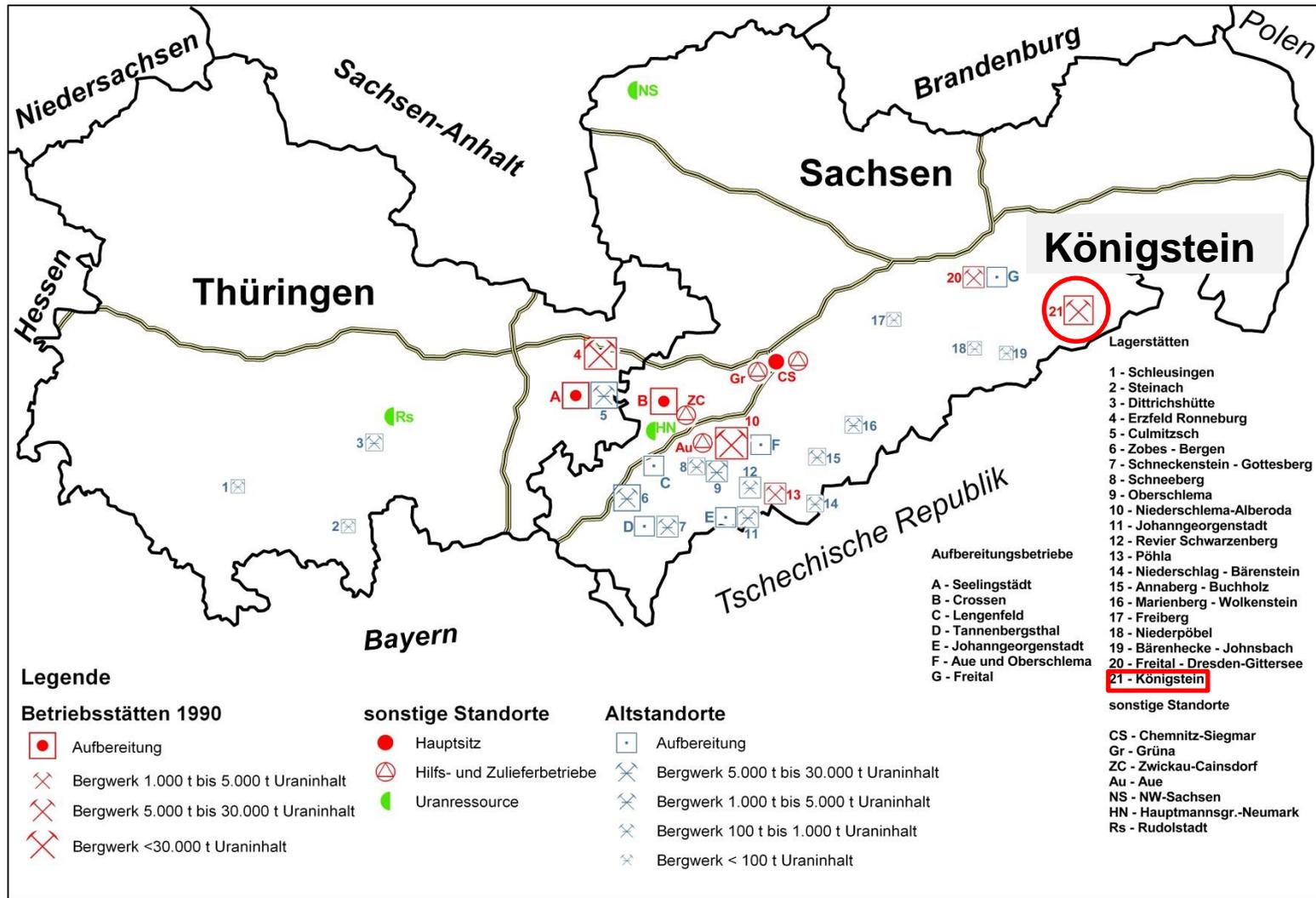
## Usage of microorganism to clean up uranium polluted mine waters?

U. Gerber, E. Krawczyk-Bärsch, T. Arnold, T. Stumpf,  
E. Kothe<sup>1</sup>

<sup>1</sup> FSU Jena, Institute of Microbiology, Microbial Communication

2. Projektstatusgespräch zu BMBF-geförderten Forschungs- und Entwicklungsvorhaben auf dem Gebiet der „Nuklearen Sicherheits- und Entsorgungsforschung sowie Strahlenforschung“

# Mining in eastern Germany



[http://de.academic.ru/pictures/dewiki/119/wismut\\_karte.jpg](http://de.academic.ru/pictures/dewiki/119/wismut_karte.jpg)

# The uranium mine Königstein (Saxony)

- Since 1967 mining of uranium, area of 6 km<sup>2</sup> in the subsurface
- Inventory of uranium: 30.000 t
  - low content in the sand stone
  - leaching with sulfuric acid
- More than 55 Mill. t rocks came in contact with acid
- Acid leads to mobilization of uranium and other toxic metals
- Since January 2011 controlled flooding (max. 140 m NN)
  - currently half is flooded
- Flooding water:
  - **waste water treatment for the next 100 years**



**underground before flooding**



**waste water treatment**

# Composition of the flooding water in Königstein (Saxony)

	Tap water [mg/L]	Flooding water [mg/L]
Sodium	29	107
Magnesium	11	28
Aluminium	0,004	<b>35 (factor 8000)</b>
Potassium	6	7
Calcium	48	<b>296 (factor 6)</b>
Iron	< DL	<b>60</b>
Sulfate	80	<b>1000 (factor 13)</b>
Uranium	0,0002	<b>15 (factor 75000)</b>

- pH = 2,7 - 3,0
- Temperature = 14,0°C - 14,6°C

## Natural uranium concentrations<sup>1,2</sup>:

Surface water = 0,03-2,1 µg/L

Ground water = < 0,1-40 µg/L

Mineral water = < 0,002-188,8 µg/L

Elbe = 1,6 µg/L (2011)

<sup>1</sup> A. Osman, 2014, Dissertation, TU Dresden

<sup>2</sup> S. Brockmann, 2013, Dissertation, TU Dresden

# How could we clean the water efficiently and easier? Could microorganisms help to clean the flooding water?

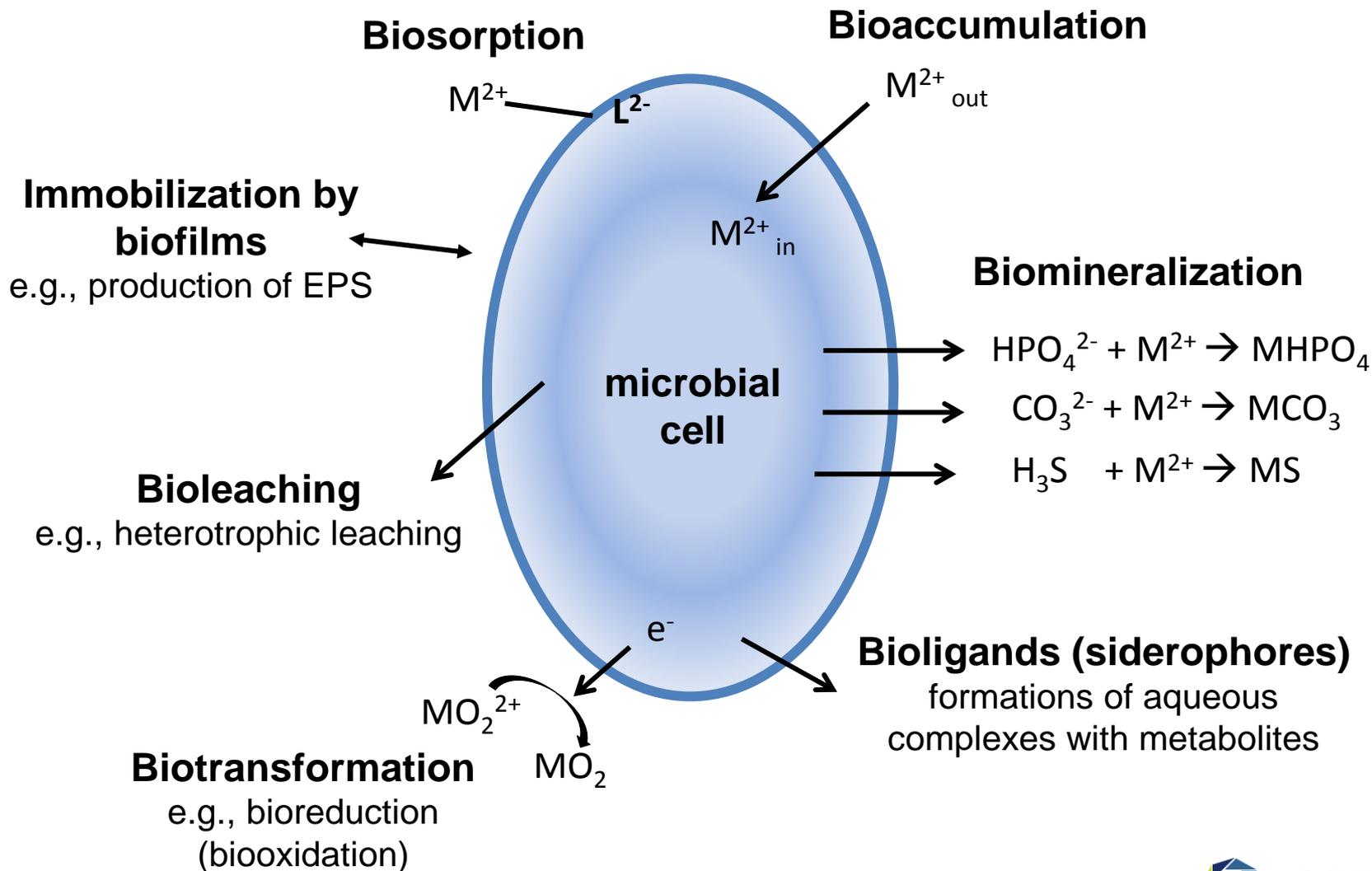
## Bioremediation

- defined as the use of microorganisms to detoxify or remove pollutants  
→ ability of microbes to immobilize metals and to degrade organic contaminants into harmless constituents
- **natural or „green“ solution → cost-effective**
- clean water is essential to agriculture and industry;  
contaminated land → problem of migration → groundwater is a major source of drinking water

## Microorganisms as a solution???

- small size, large surface-to-volume ratio
- very high rate of growth and division
- genome plasticity → bacteria evolve quickly

# Interactions of microorganisms with metals / radionuclides



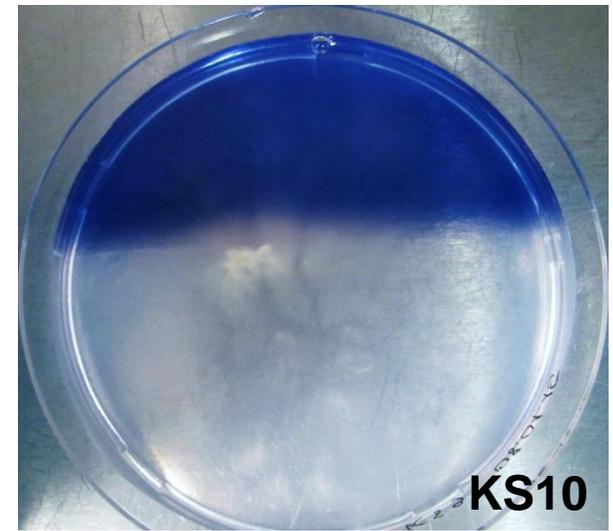
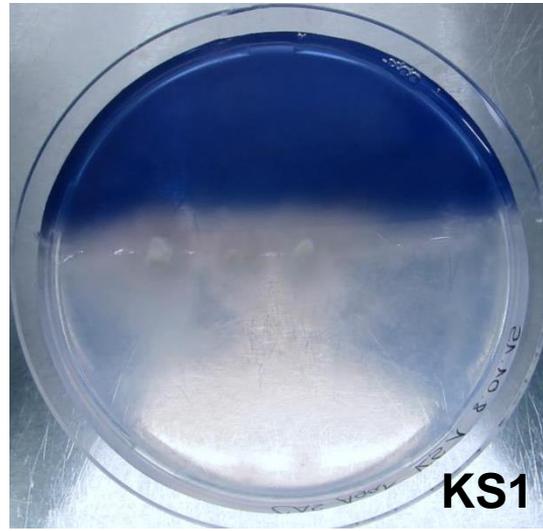
modified from Lloyd *et al.*, 2005

# Isolation of microorganisms from the flooding water in Königstein (Saxony)

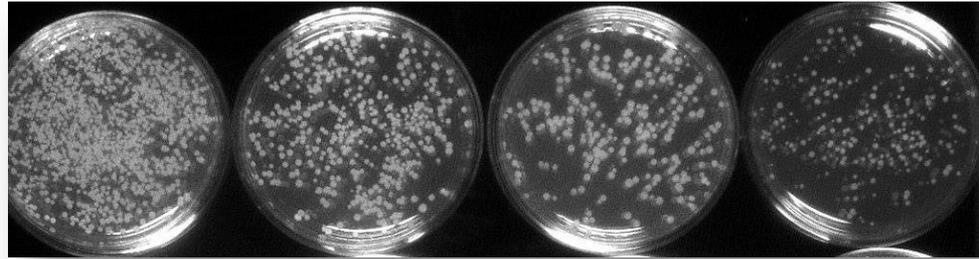
- **culture dependent method:**  
isolation with SDA medium (dextrose agar)  
→ nine different microorganisms were isolated
- 16S rDNA and 18S rDNA analysis → sequencing for identification of the different isolates

**CAS agar:** test for production of siderophores  
→ disappearing of the blue color

- KS1 and KS10 are the only 2 of the isolates



# Uranium tolerance of the isolated microorganisms



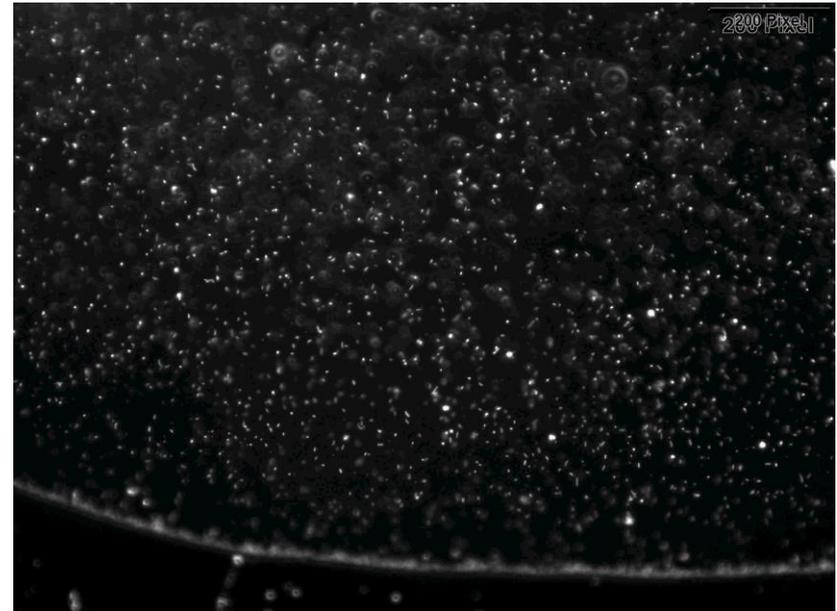
Isolate	MIC [U mM]
KS1	1
KS2	6
KS3	2
KS4	6
<b>KS5</b>	<b>6</b>
KS7	5
KS8	5
KS9	6
KS10	0,05
<b>DSM 10134</b>	<b>1</b>

$U_{\text{conc}}$  = within the solid agar plates

- isolate KS5 → yeast cell (*Rhodospiridium toruloides*) displays a higher uranium tolerance compared to the ordered DSM 10134 → **adaption to the environmental conditions**
- **most isolates show a high tolerance**

# Microorganisms occurring in the flooding water of Königstein (Saxony)

- *Bodo saltans* (representative of flagellates) → detection in subsurface biofilms prior to the flooding of the uranium mine by biodiversity investigations (Zirnstein *et al.*, 2012)
- *Acidovorax facilis* (gram negative) → as feeder bacterium of *Bodo saltans*

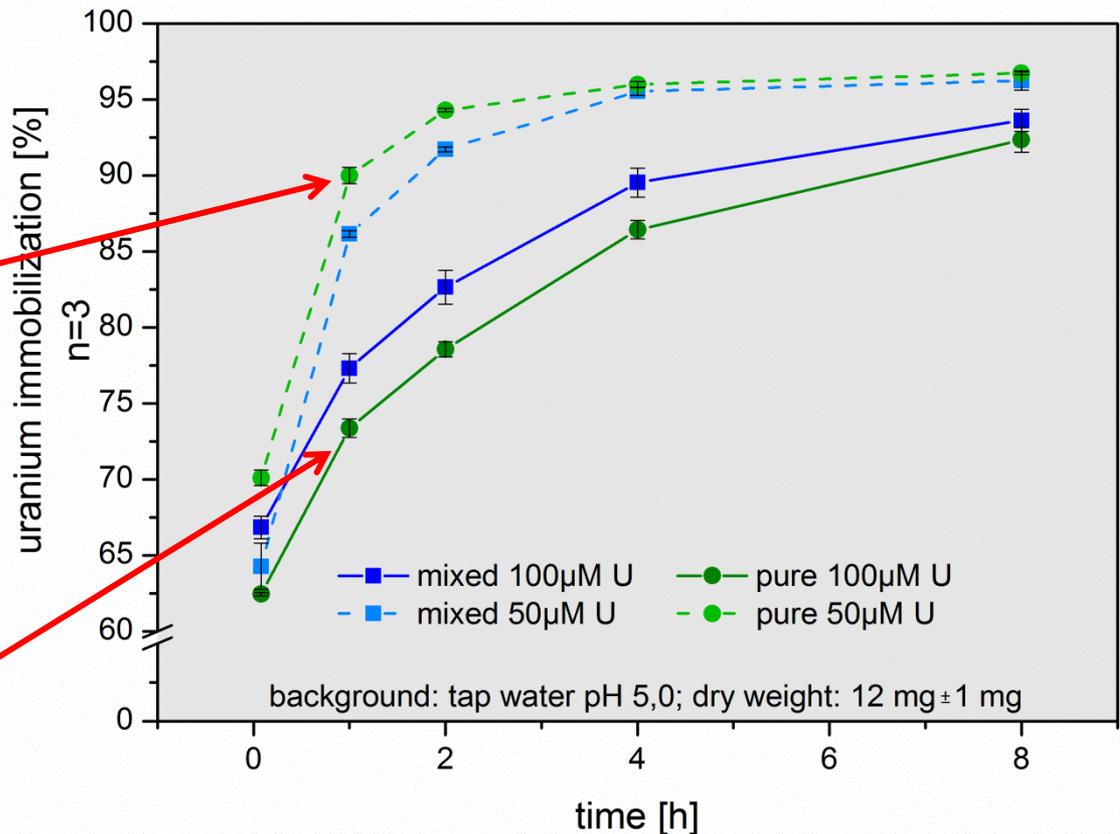
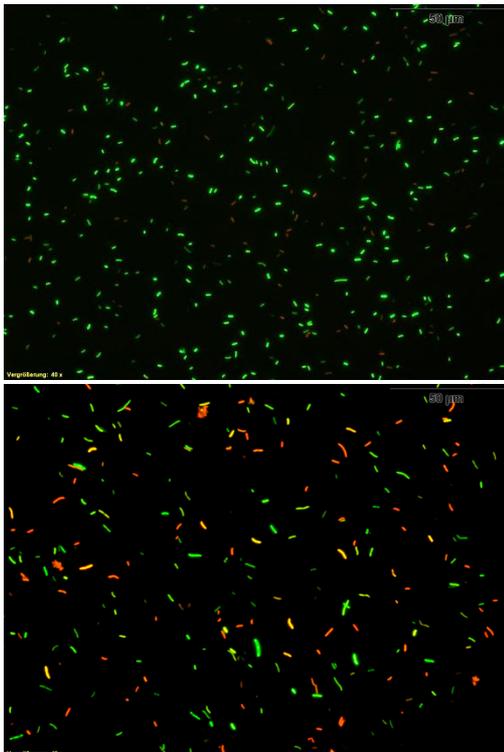


# Uranium immobilization by *Acidovorax facilis* and *Bodo saltans*

- fast uranium immobilization **within the first 8 h**
- slight difference between the pure and the mixed culture
- uranium immobilization per dry weight:

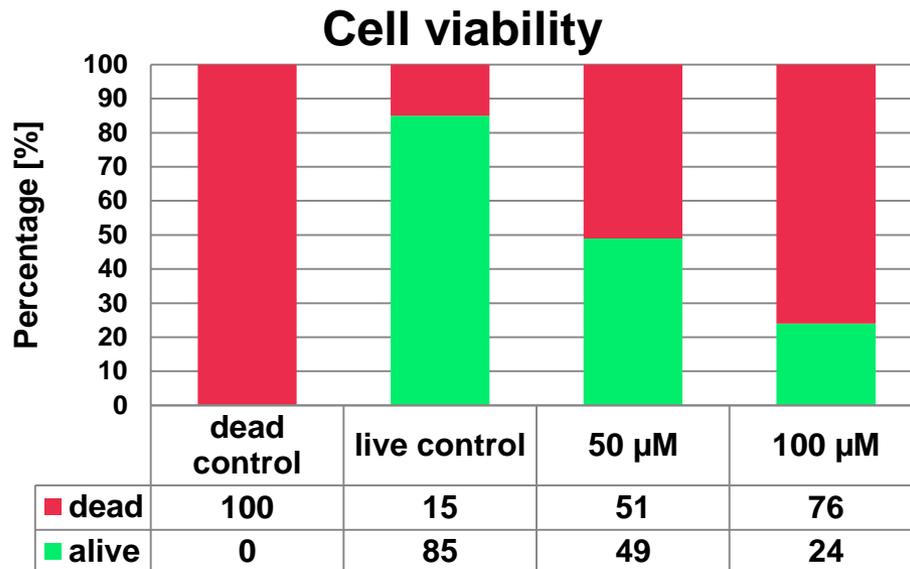
→ 50  $\mu\text{M}$  U: **44 mg / 1g**

→ 100  $\mu\text{M}$  U: **77 mg / 1g**



→ live-dead staining after 48 h

# Effect of uranium on cell viability of *Acidovorax facilis* by flow cytometry (in coop. with M. L. Merroun, University Granada)

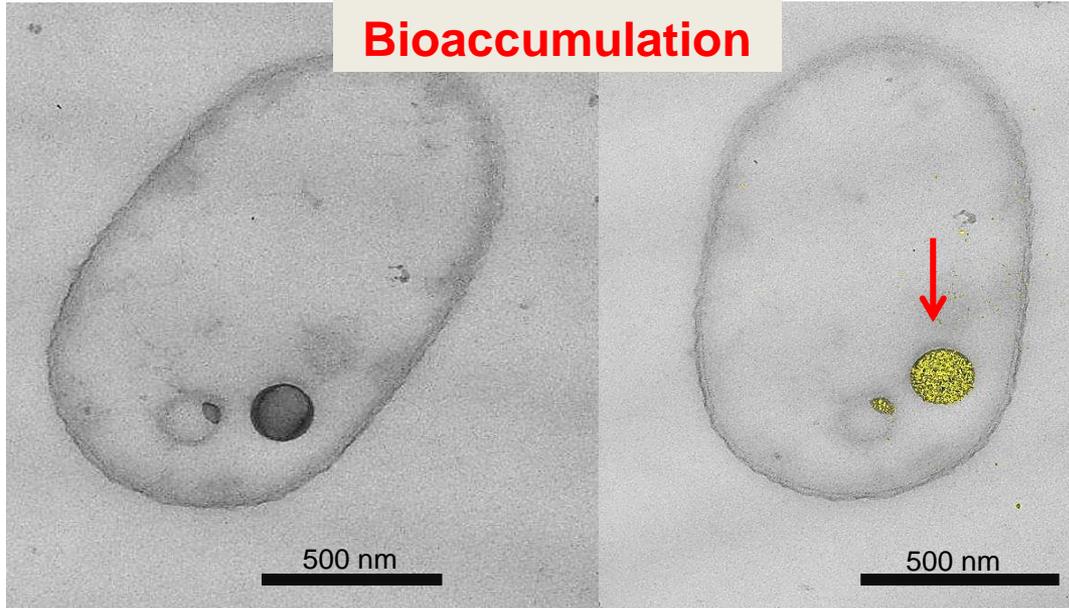


- cells were stained with:  
PI (propidium iodide)  
→ dead cells  
FDA (fluorescein diacetate)  
→ living cells
- background: diluted NB
- incubation time: 24 h

→ cells tolerate a  $U_{\text{conc}}$  of 50 µM  
→  $U_{\text{conc}}$  of 100 µM is cytotoxic to the cells

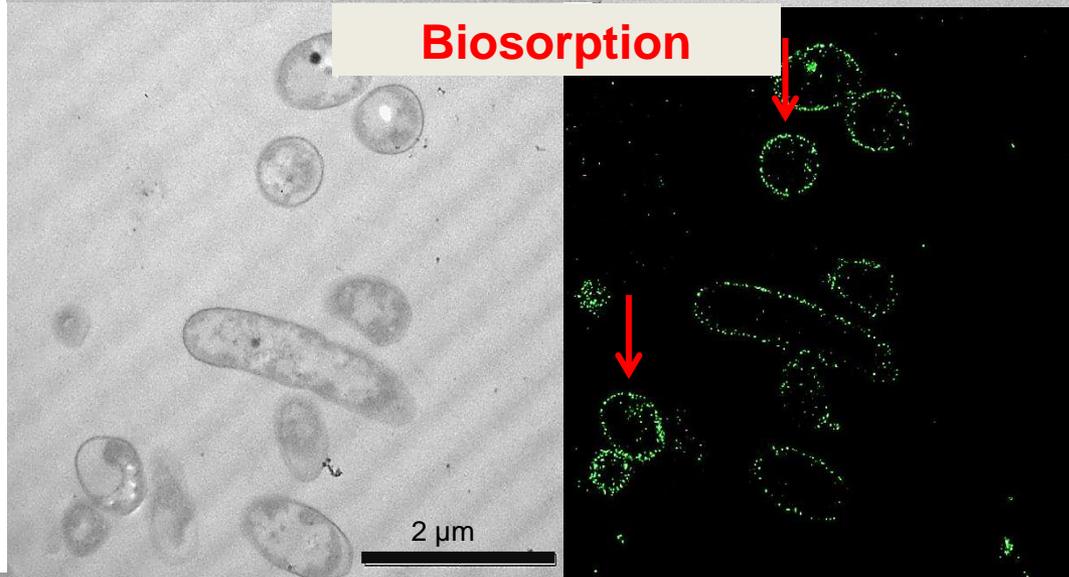
# Localization of the immobilized uranium by *Acidovorax facilis*

## Transmission Electron Microscopy and element mapping of U



→ uptake of uranium in the polyphosphate granules  
→ formation of uranyl-phosphate complexes

Initial  $U_{\text{conc}} = 100 \mu\text{M}$



→ sorption on cell membrane

# Solution - Waste water processing by microorganisms

- Use of microorganism, which naturally occur in the flooding water
- Microorganism immobilize the uranium by:  
**Biosorption** and **Bioaccumulation** within hours
- Compared to the processes of the waste water treatment in Königstein  
→ **less chemicals, time, and effort**
- Separation of microorganisms which bound uranium

## Outlook

- Understanding of the mechanisms of the interactions between microorganisms and uranium
  - **molecular biological mechanisms** (real-time PCR → gene expression analysis, proteomics → protein analysis)
  - **metabolic mechanisms** (calorimetry → growth rates)
  - **immobilization mechanisms** (TRLFS → speciation of the immobilized uranium)

# Thank you for your attention



**Prof. Dr. Mohamed L. Merroun and his group members, University Granada**



The research leading to these results has received funding from **Verbundprojekt Strahlung und Umwelt III: „Transfer von Radionukliden in aquatischen Ökosystemen“ (TransAqua)** under the grant n° 02NUK030F.

## Acknowledgement:

Isabel Zirnstein, Corinna Gagell,  
Karsten Heim and Sabrina Gurlit for ICP-OES/MS  
Wismut GmbH (Dr. Jenk and colleagues)