

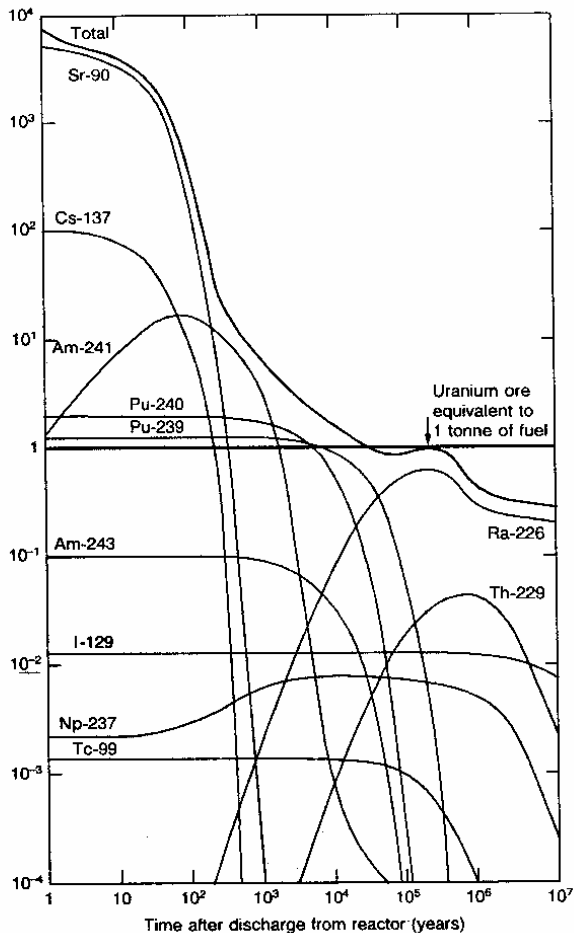


# Izotópmigrációs vizsgálatok az IKI-ben

1. Bevezetés: Nagyaktivitású radioaktív hulladékok – elhelyezés
2. Hazai helyzet – Bodai Aleurolit
3. Intézeti mérések – előzmények (1999 – 2003)
4. Folytatás I. - EU FP6 keretben – FUNMIG (2004 – 2008)
5. Folytatás II. EU FP7 keretben – ReCosy (2009 - )

# 1. Nagyaktivitású radioaktív hulladékok – kiégett fűtőelemek

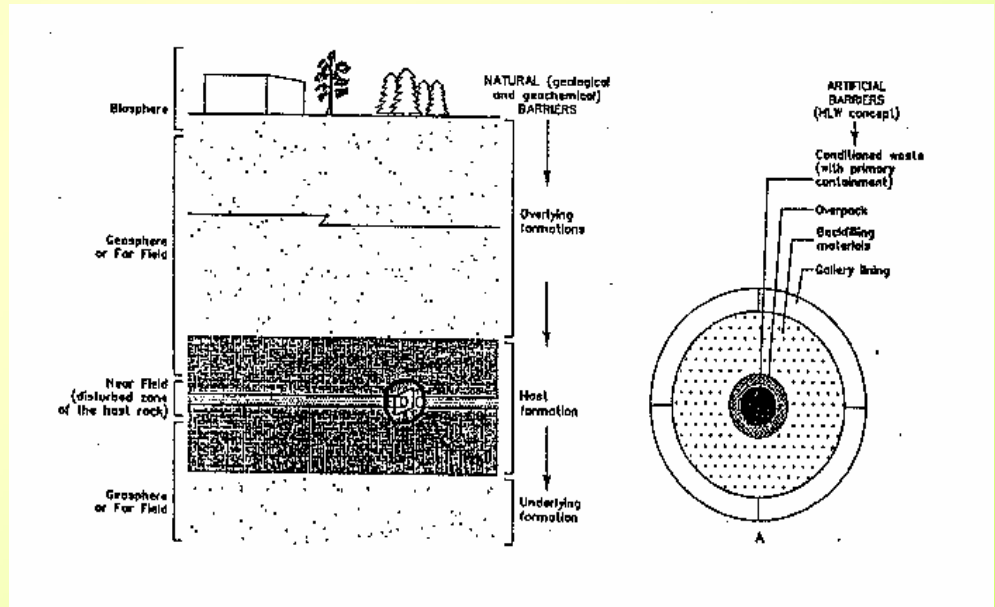
Jellemző izotópok: fissionés & aktinidák



Lehetőségek:

- (átmeneti tárolás) közvetlen mélységi elhelyezés
- reprocessálás => mélységi elhelyezés
- transzmutáció => mélységi elhelyezés

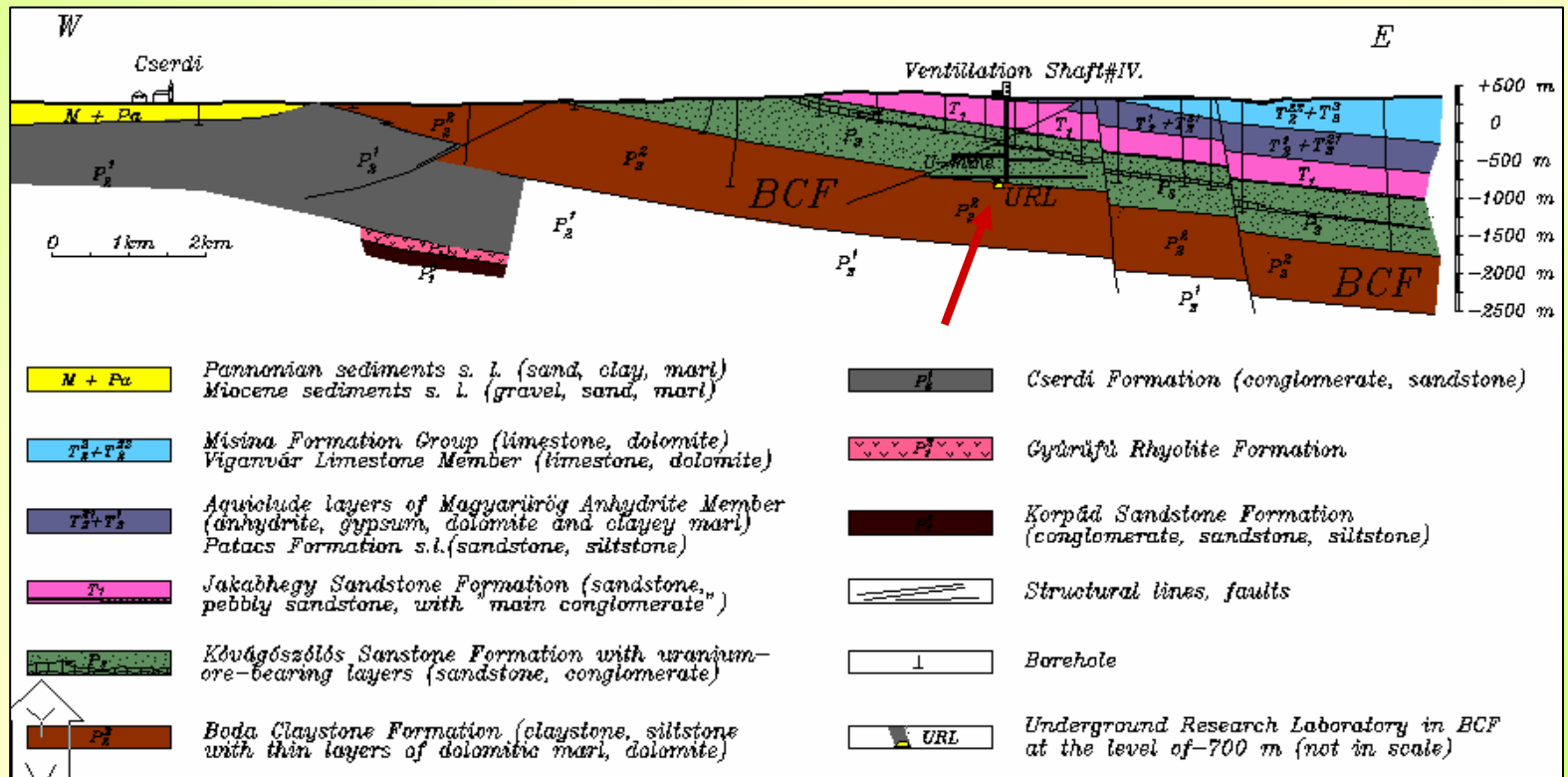
Műszaki és természetes „gátak”



## 2. Hazai helyzet – Bodai Aleurolit

Bodai Agyagkő Formáció: Perm időszak (150 M év), max. hőm: 150 °C, lúgos közeg  
=> réteg-, és tektoszilikátok (illit, montmorillonit, stb.)

„URL” - mélységi laboratórium (– 1050 m), vizsgálatok 1995 – 1999 között



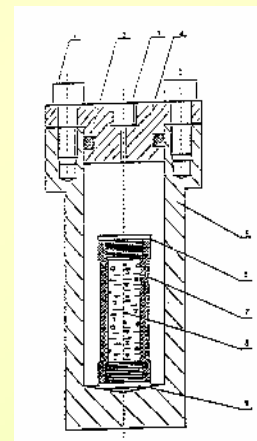
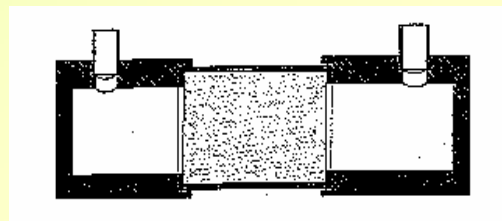
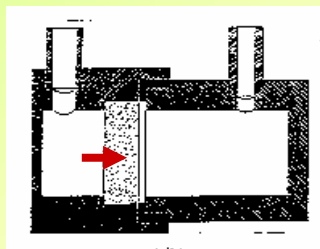
**Geological cross section of the East-West direction in the Western-Mecsek Anticline**

### 3. Intézeti vizsgálatok (1999 – 2003)

Szorpció és migráció – kationok:  $^{60}\text{Co}$ ,  
 $^{85}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , anion:  $^{125}\text{I}$

( Paksi megbízással : PAV => Mecsekérc => IKI )

Diffúziós mérőcellák:  
u.n. áttöréses mérések



„In situ:”  
100 bar  
50 °C

$$\frac{C'(t)}{C_0} = \frac{AD_e}{V'L} t - \frac{\alpha AL}{6V'}$$

A I<sup>-</sup> anion diffúziója legalább egy nagyságrenddel nagyobb, mint a kationoké,  $D_{\text{eff}} \sim 3\text{-}5 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ ,

(1)  $\approx$  öndiffúziós állandó elektrolitokban, (2)  $\approx$  néhány m /  $10^5$  év

Közlemények:

1. P. Mell, et. al, Sorption of Cs, Sr, Co and I..., J. Radioanal. Nucl. Chemistry, 268, (2006) 405 – 410.
2. P. Mell, et. al, Diffusion of Sr, Cs and I into argillaceous rock..., J. Radioanal. Nucl. Chem., 268 (2006) 411 - 417

Újabb hazai projektek gyakorlatilag szünetelnek: KKÁT 50 évre

RHK közhasznú non-profit Zrt prognózis: mélységi (~ 200-300m) labor 2025 körül

## 4.1. A vizsgálatok folytatása Európai Unió keretben (FP6 – FUNMIG, 2004 – 2008)

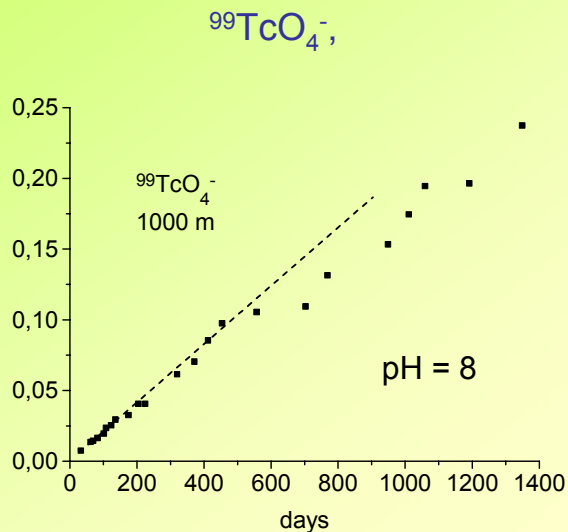
Lehetőség az EU-ban tekintetbe vett különböző agyagos kőzetek összehasonlítására

	age (Ma)	depth (m)	clay content (%)	organic matter (%)	max. temp. (°C)	porosity / water (%)
Boom	30-36	200	30-60	1-5	16	~ 40
Boda	250	1000	30-40	~0	~ 150	1- 3
COx	155	500	40	0.8-1.2	40	5 – 10
Opa	180	500	39-63	0.5-1.0	85	3 -5

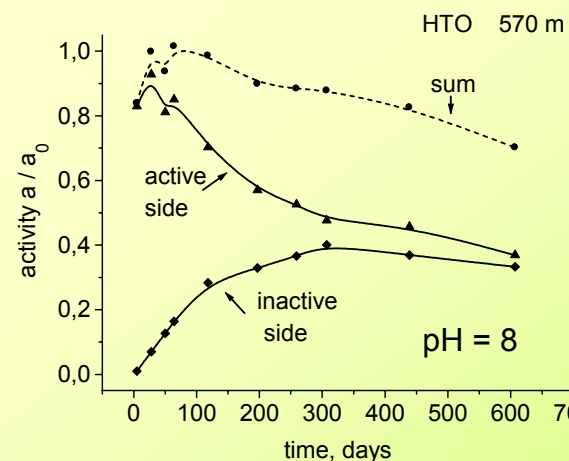
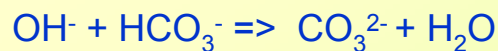
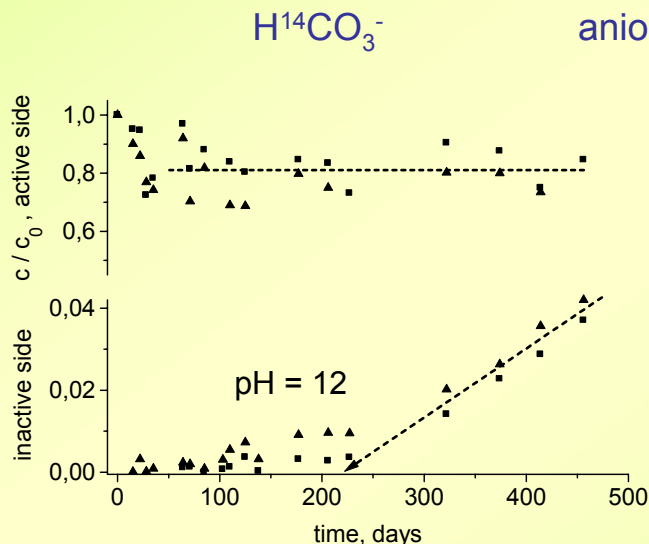
Boom Clay: BE; COx: Callovo-Oxfordian, FR; Opa: Opalinus Clay, CH

## 4.2. Saját vizsgálatok FUNMIG keretben

### Áttörési mérések



$$D_{\text{eff}} \sim 1 \times 10^{-12} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$$



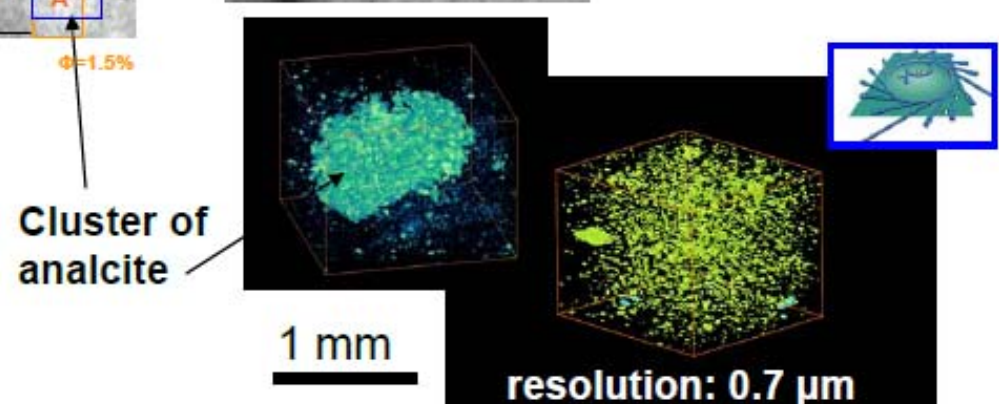
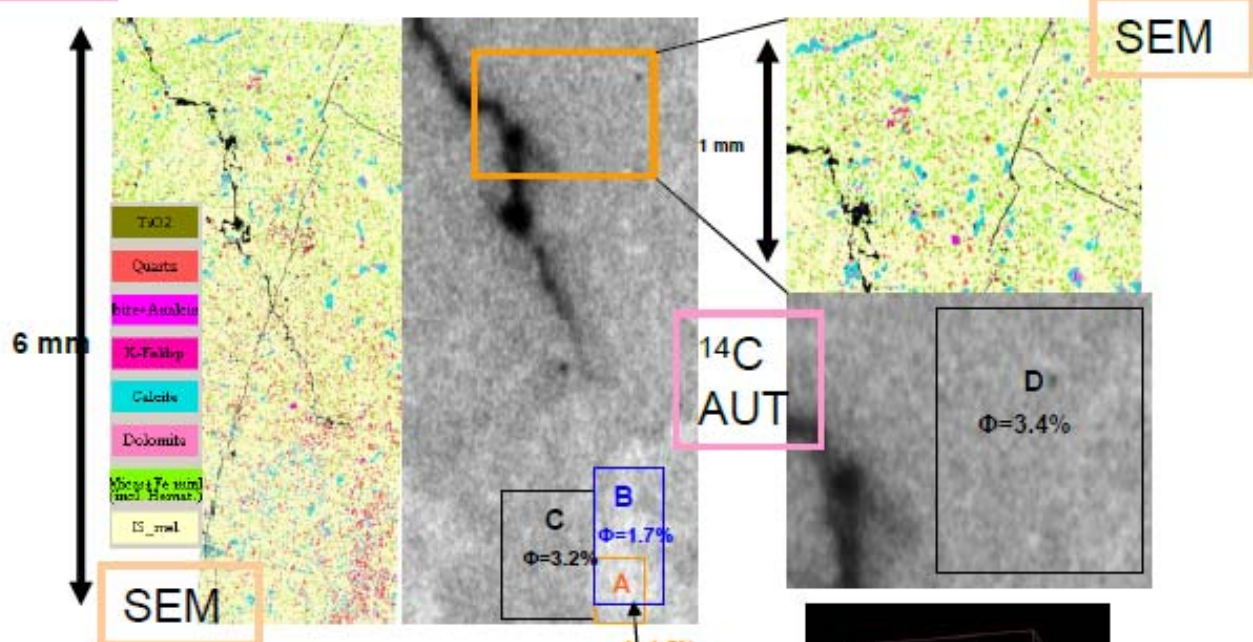
$$D_{\text{eff}} \sim 1.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$$

Összefoglaló közlemény: K. Lázár et al, Proc. 4th Annual Workshop, FUNMIG IP, Wissenschaftliche Berichte FZKA 7461, Karlsruhe 2009, p. 199 – 204.

=> Következő dia: BAF vizsgálatok a FUNMIG partnerek részéről



# BODA clay imagery





# 5.1. Folytatás II. - EU FP7 ReCosy (2009 – jelenleg - 2013)

## ReCosy: Redox Controlled Systems

Redox folyamatok hatása a hosszú felezési idejű izotópok migrációjára

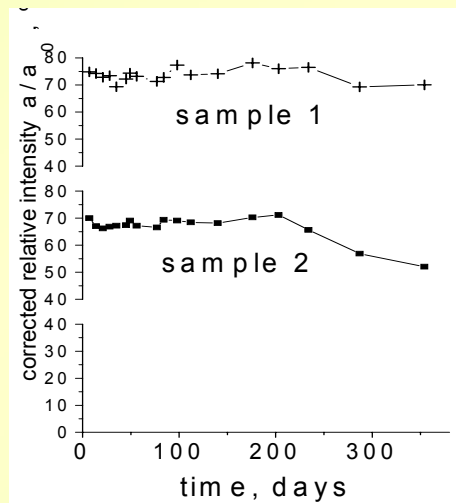
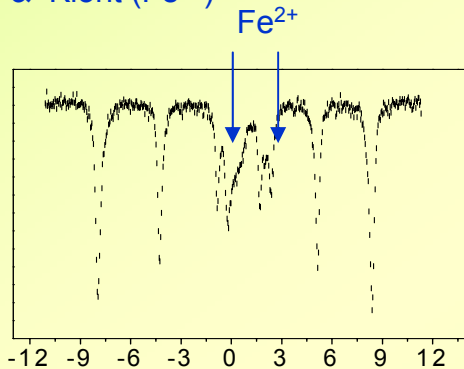
fissziós izotópok (pl.  $^{79}\text{SeO}_3^{2-} \leftrightarrow \text{Se}(0)$ ;  $^{99}\text{TcO}_4^- \leftrightarrow \text{TcO}_2$ ), és aktinidák (pl.  $\text{UO}_2^{2-} \leftrightarrow \text{UO}_2$ ,  $^{237}\text{NpO}_2^+ \leftrightarrow \text{NpO}(\text{OH})_2$ )

Bodai agyagkő: rétegszilikátok:  $\text{Fe}^{2+} / \text{Fe}^{3+}$

Van-e redox folyamatoknak szerepe az U migrációjában: áttörési mérések uranil acetáttal ( $\text{UO}_2^{2+}$ )

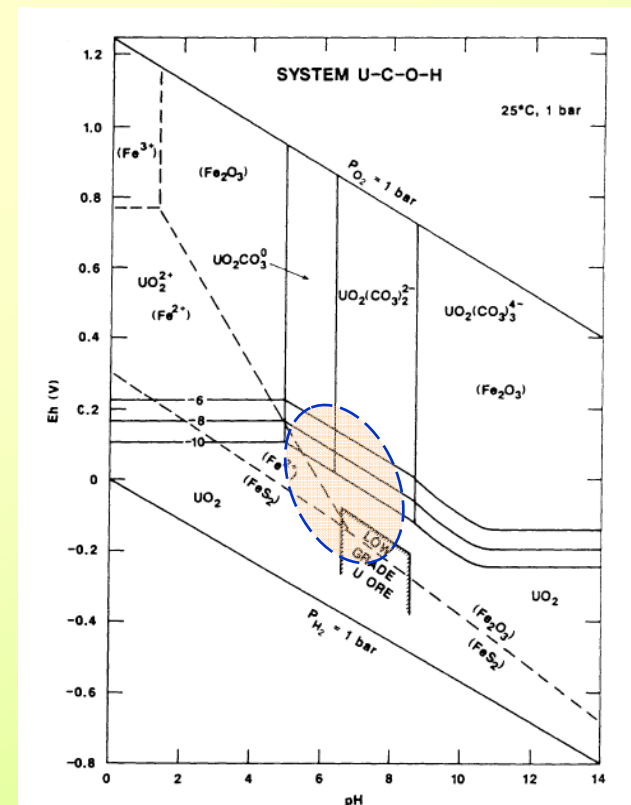
## Mössbauer-spektrum:

Hematit  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  ( $\text{Fe}^{3+}$ )  
& Klorit ( $\text{Fe}^{2+}$ )



Nincs áttörés egy év alatt

Urán: Eh – Ph, Pourbaix diagram



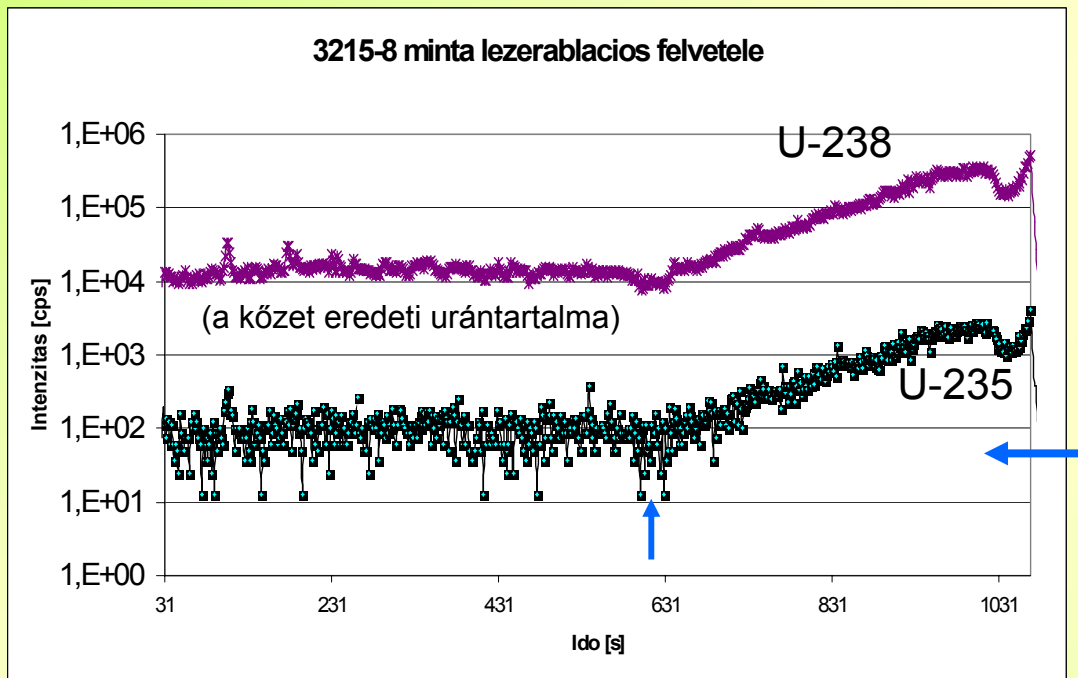


## 5.2. ReCosy - intézeti mérések

### Lézeres ICP – MS

(mérőcella bontás után)

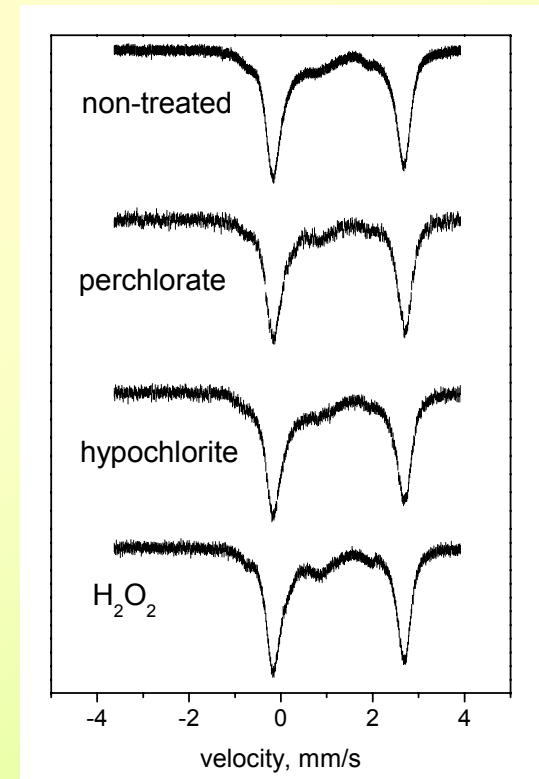
Uráneloszlás a minta felszínére merőlegesen



Az urán az oldatból egy év alatt max. kb. 4 mm távolságra jutott ;  
(az Y-tengely logaritmikus).

$\text{UO}_2^{2+}$  szorpció és  $\text{UO}_2^{2+}$  redukció kombinálódhatott ;  
a következő lépés: felületi ~ 1mm es rétegben  $\text{Fe}^{2+}/\text{Fe}^{3+}$  arány  
mérése (volt-e  $\text{Fe}^{2+} \Rightarrow \text{Fe}^{3+}$  oxidáció)

Oxidálható-e a  $\text{Fe}^{2+}$  a Bodai  
Aleurolit rétegszilikátjában?  
Klorit ( $\text{Fe}^{2+}$ ) Mössbauer spektrumok

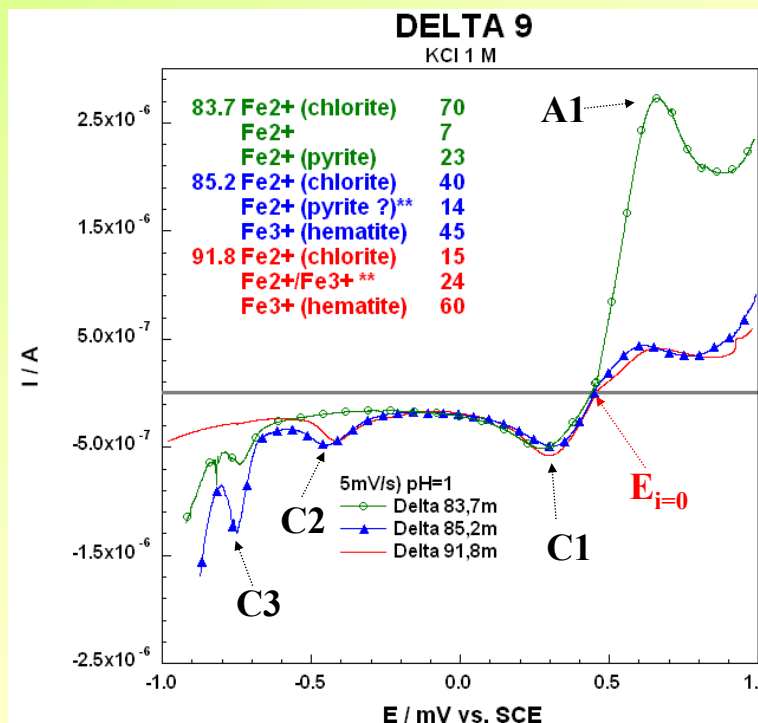


Gyakorlatilag nem – azaz lehet,  
hogy az  $\text{UO}_2^{2+}$  sem oxidál

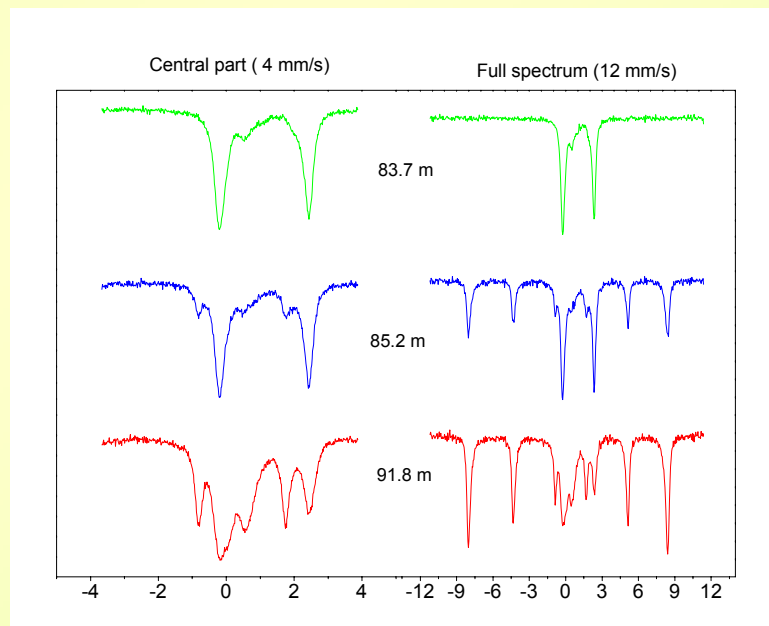
## 5.3 További BAF vizsgálatok - ReCosy partnerekkel együtt

Valóban lejátszódnak-e redox folyamatok a Bodai Agyagkő formáció ásványain?

Voltammetra („on microparticles” – néhány tized mg ásványon) és Mössbauer-spektroszkópia kombinálása



$E_{i=0}$  0.45 V vs. SCE ,  $\approx$  Fe<sup>2+</sup>/Fe<sup>3+</sup> az oldatban



K. Lázár et. al: Hyperfine Interactions, 190 (2009) 129 – 133.

# Összefoglalás

---

A nagyaktivitású hulladékok elhelyezésével kapcsolatos izotópmigrációs vizsgálatok egy példát mutattak arra, hogyan lehet megbízásos kutatásokat úgy kibővíteni, hogy idővel

- Európai Uniós kutatásokba is beépülhessenek,
- létrejöjjenek tudományos eredmények is (közlemények, ill. PhD),
- és *(nem utolsó sorban:)* **önfinanszírozók** is lehetnek.

*(ReCosy: 57 % EU, kb. ~ 30 % BONUS-HU, ~ 13 % különbözet: MTA önrész).*

---

## **Részt vevők:**

KI-ből, Lázár Károly, Megyeri János, Széles Éva<sup>1</sup>, Mácsik Zsuzsa<sup>1</sup>, Mell Péter<sup>2</sup>, Riess László<sup>3</sup>

Mecsekérc: Máthé Zoltán (minták - közettani és ásványtani jellemzés)

<sup>1</sup> ReCosy projektben; <sup>2</sup> 2004-ig, (PhD folyamatban), <sup>3</sup> 2005-ig

## **Köszönetnyilvánítás**

FUNMIG: Jean-Claude Parneix (ERM, Poitiers – Franciaország)

ReCosy: Michel Perdicakis ( Lab. Chim. Phys. LCPME, Nancy - Franciaország)