Izotópok migrációja kőzetekben

Lázár Károly, MTA Izotópkutató Intézet

Pontosítás: *radioizotópok* migrációja,
kapcsolatban a nagyaktivitású radioaktív hulladékok,
pl. kiégett atomerőművi fűtőelemek végleges elhelyezésével

Téma indoklása:
- egyrészt környezetvédelem - másrészt az izotópmigráció vizes közegben játszódik le

Az előadás vázlata:
1) Általános bevezető
2) Vizsgálatok a Bodai Aleurolit Formációból származó mintákon,
3) Nemzetközi együttműködés – összehasonlítás más agyagos kőzetekkel, („kitekintés”)

Atomerőművek - ^{235}U

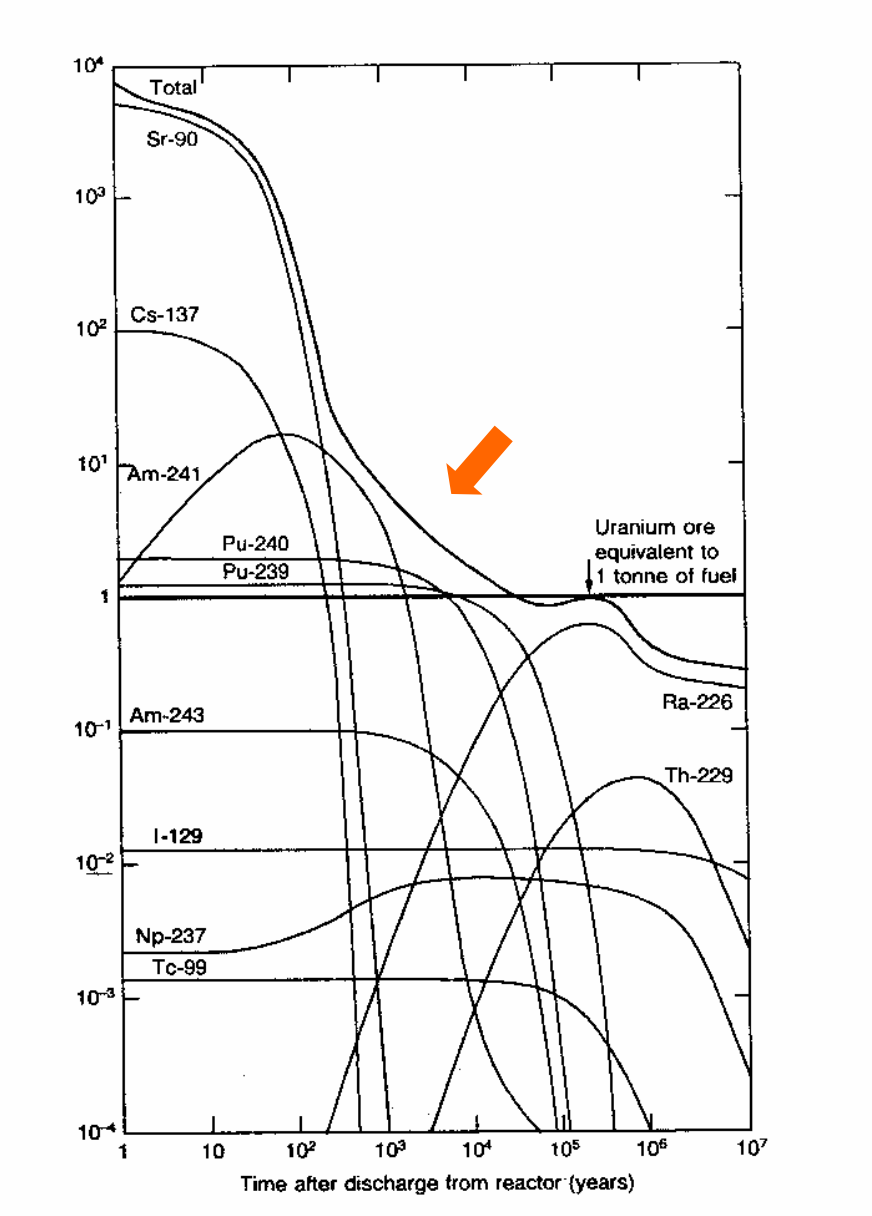
Nagyaktivitású hulladékok hosszú felezési idejű izotópjai:

- Hasadási termékek: pl. ^{99}Tc, ^{129}I
- Neutronbefogással keletkező transzuránok: $^{239,240}Pu$, ^{243}Am, ^{237}Np

➡ Reprocesszálás, v. ú.n. transzmutáció esetén :

a transzuránok (Am, Pu) eltávolításával a $\tau_{1/2} \sim 10^3 - 10^5$ év szakasz is meredeken csökken,

de sugárzó hulladék mindenképpen marad:
~ min. x 1000 év.



Ábrán szemléltetve:

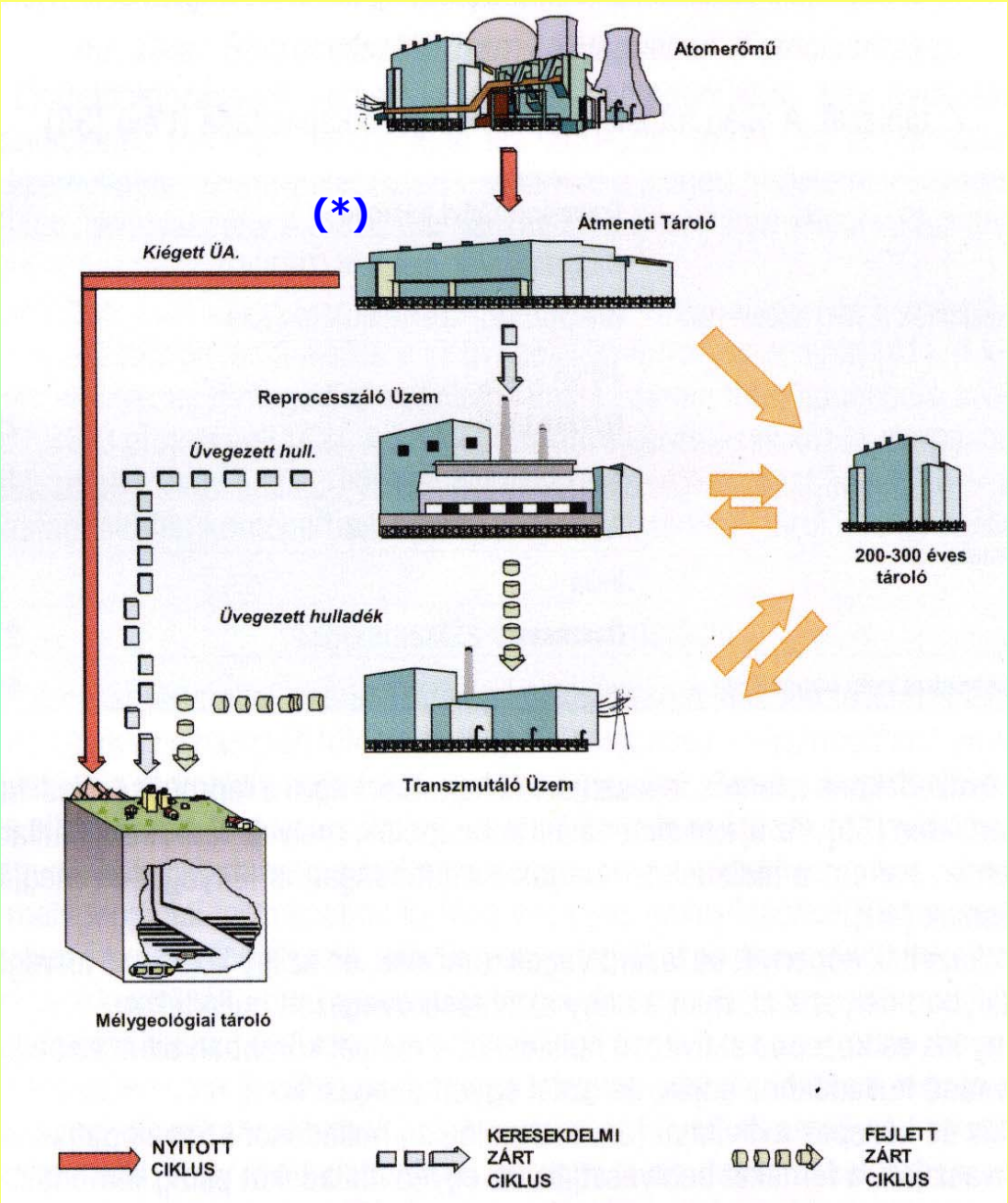
Akár
- „hagyományos” ^{235}U,
- újabb (reprocesszált),
- v. transzmutált fűtőanyag:

  mindenképpen van nagyaktivitásu hulladék

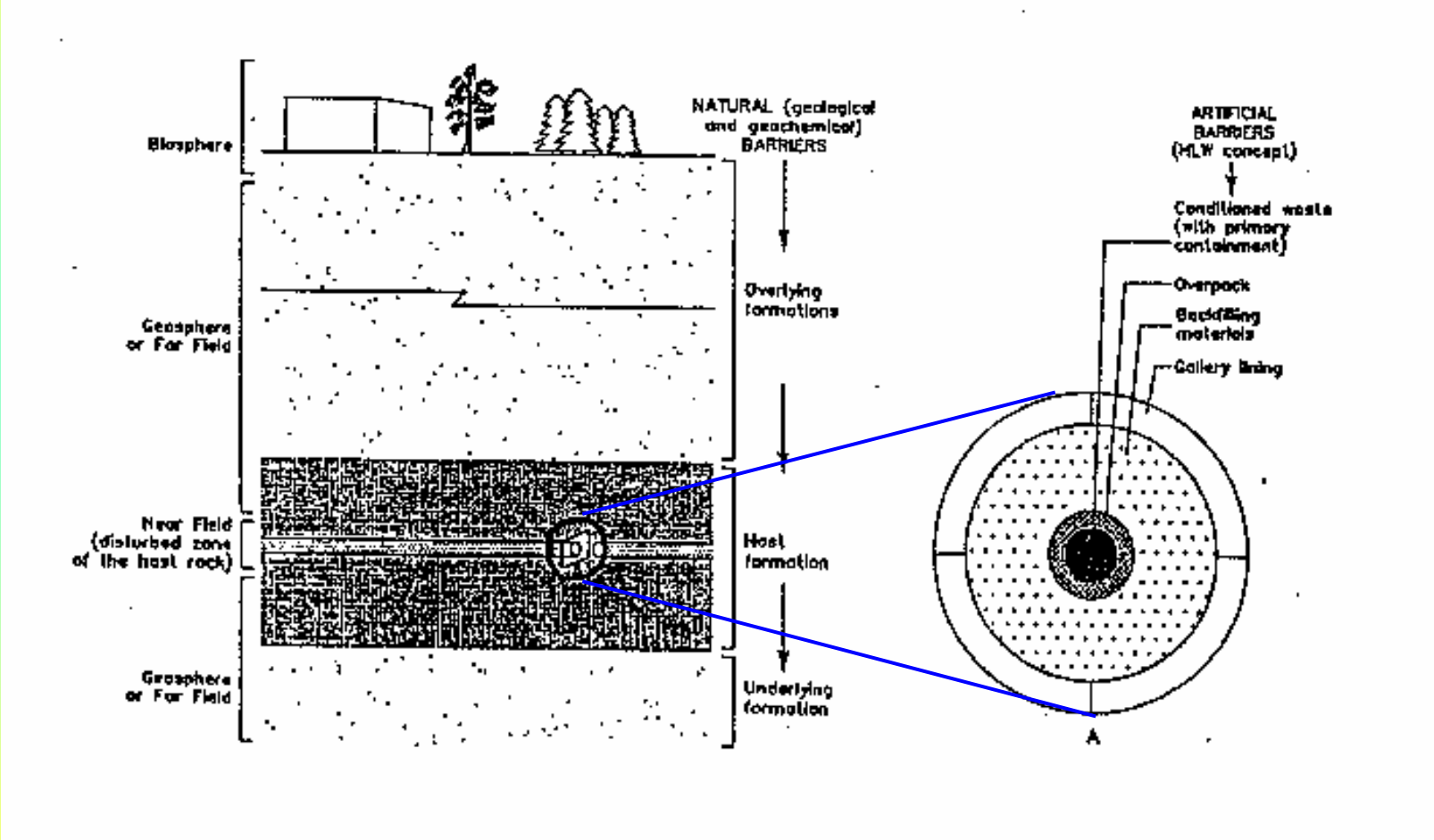
Változattól függően
- $10^3 \leftrightarrow 10^6$ év felezési idők
- ill. energiatartalom a „hulladék”-ban

(*) jelenleg: első fázis szerint (Kiégett Kazetták Átmeneti Tárolója)

© ***Ormai Péter:***
Nemzetközi és hazai törekvések a radioaktiv hulladékok biztonságos kezelésére és elhelyezésére – RHK KHT 2003

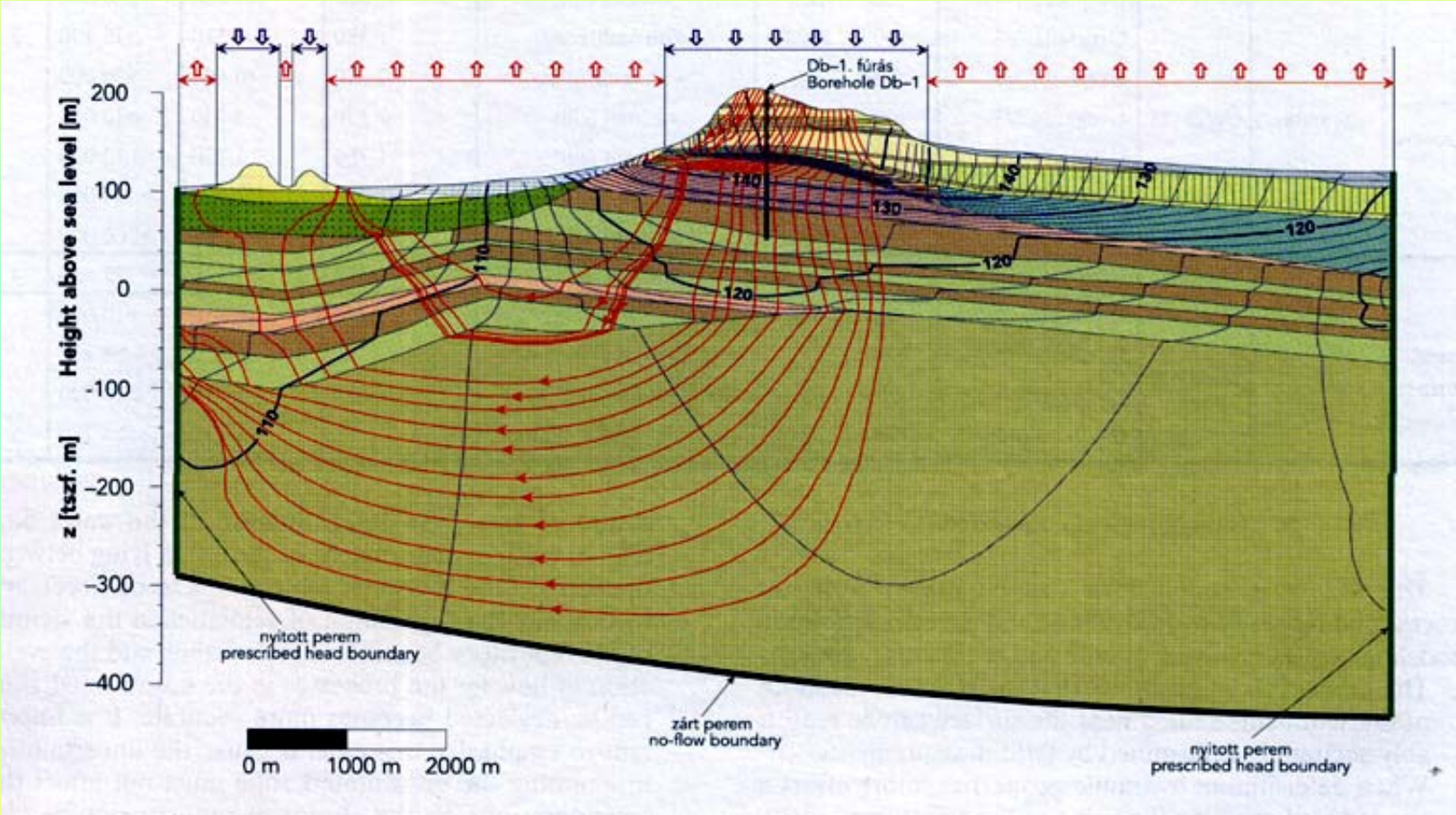


Munkahipotézis: nagyaktivitású hulladékok elhelyezése geológiai formációban



Nagyaktivitású hulladékok formációkban – „állandó folyamatok”

Hidrológia: $^{18}O/^{16}O$ izotóparányból: a víz „életkora” tipikus értékek (Diósberény:) néhány ezer év



De: áramlásmentes esetben is ***van*** pl. (ön)diffúzió: $x = (D\,t)^{1/2}$

Nagyaktivitású hulladékok – a fontos lejátszódó folyamatok

Különböző oxidációs fokú és töltésű ionos specieszek áramlanak ill. (de)- szorbeálódnak,

pl. Np (IV, V, VI): $Np^{(V)}O_2^{+} \rightarrow Np^{(VI)}O_2^{2+}$, $NpO_2(OH)_2$, $NpO_2(OH)_3^{-} \rightarrow Np^{(V)}O_2(OH) \rightarrow Np^{(IV)}(OH)_4$

1) U.i. „átmeneti” folyamatok

~ többszáz (!) év

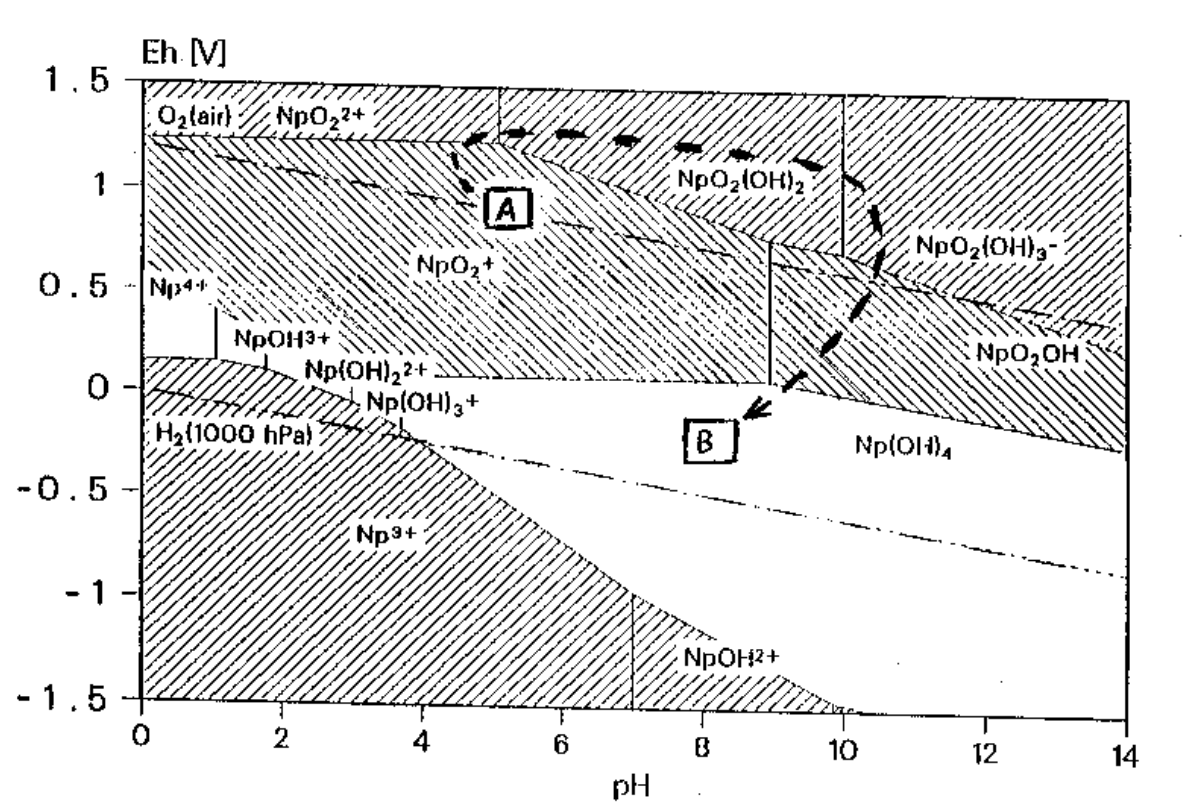
- hőmérséklet-emelkedés: hidrotermális folyamatok
- nagy sugárdózis – gyökök stb.
- tok-korrózió (Cu, Pb stb.)
- pH változás 5 (levegő) → → 11 (beton) → 8 (kőzet)
- oxidációs potenciál változás (ox. → red.)

2) „Állandó” folyamatok

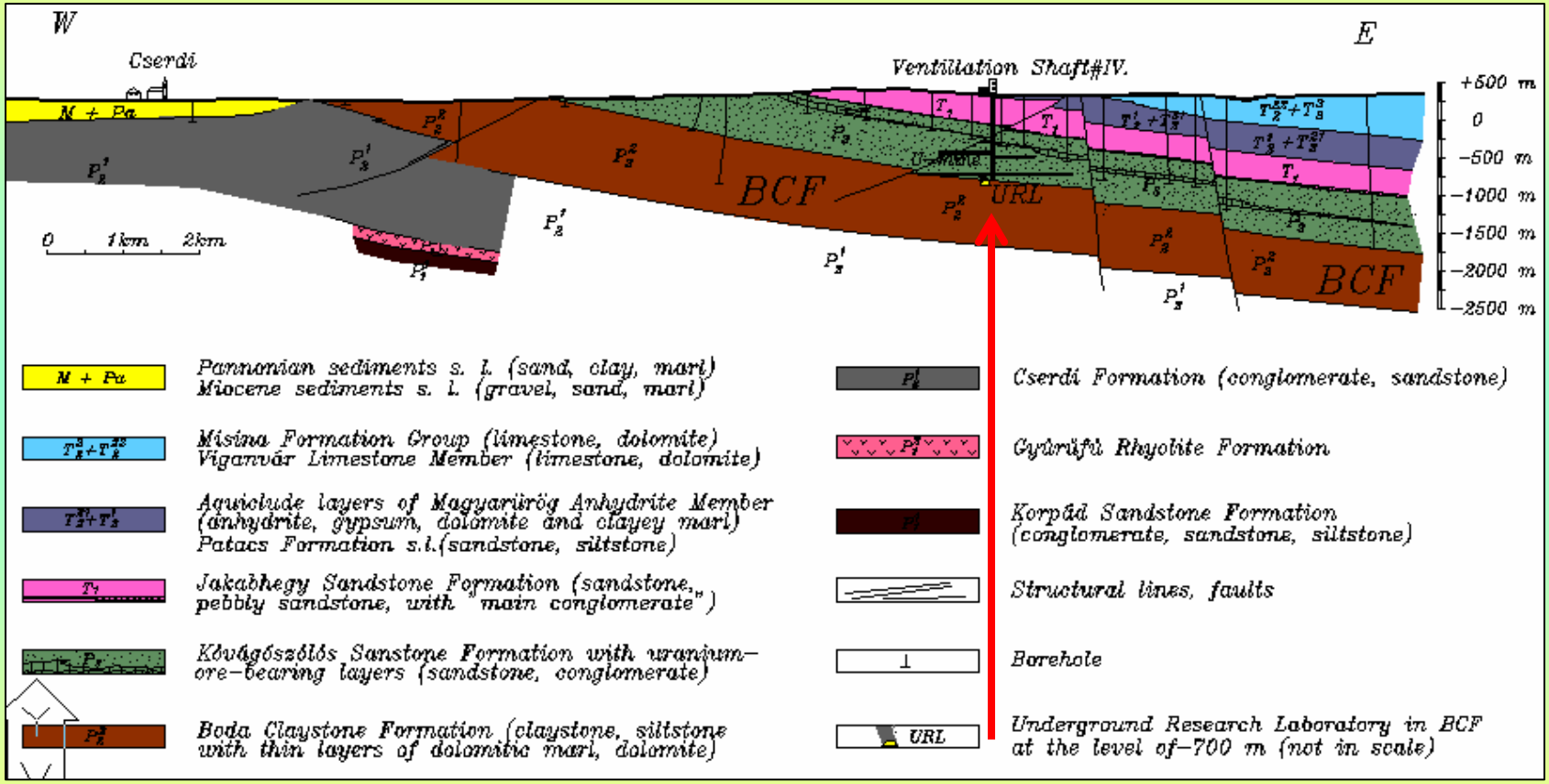
- hidrológiai áramlások
- diffúzió

3) Egyéb:

- komplexképződés (huminsavak)
- mikoorganizmusok, baktériumok



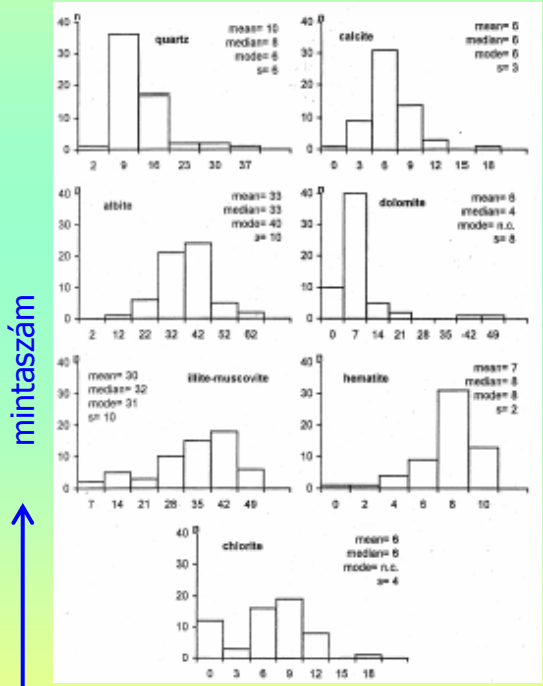
2. Bodai Aleurolit Formáció mintáinak vizsgálata az Izotópkutató Intézetben



Geological cross section of the Eastern-Western direction in the Western-Mecsek Anticline

Kőzetösszetétel, porozitás

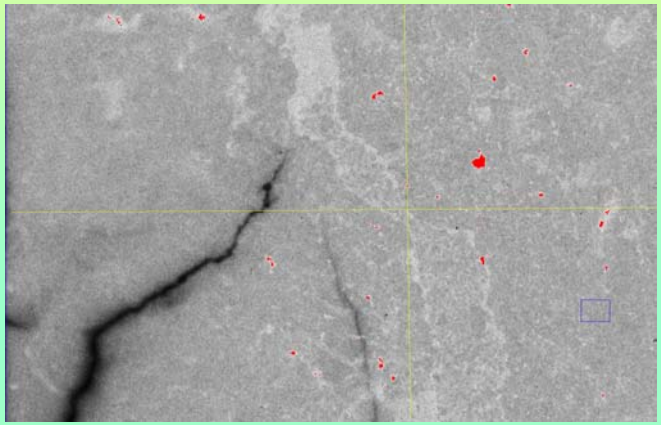
Fő összetevők: kvarc, kalcit, albit, dolomit, illit-muszkovit, hematit, klorit

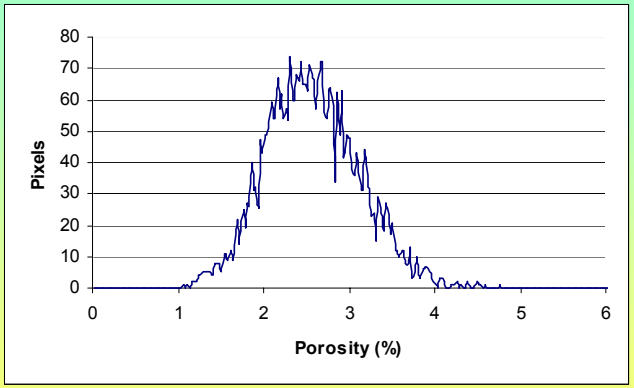


Porozitás:

Autoradiográfia, feloldás 20 mikron

---------- 1 cm





Izotópmigráció konvencionális leírás

A kőzet pórusaiban szivárgó/áramló vizes közegben a szorpció visszatartja az ionokat, ezek vándorlása a közegénél lassúbb:

$$v_{izotóp}/v_{kőzetvíz} = 1 / \{1 + K_d\ \rho\ [(1-\varepsilon)/\varepsilon]\} \qquad (1)$$

v: terjedési sebesség, K_d megoszlási hányados, ρ: sűrűség, ε: porozitás.

$$K_d = V_L\ (I_0 - I_t) / I_t\ m \qquad (2)$$

V_L az oldatminta térfogata. I_0 és I_t a kiinduláskor, ill. a t idő eltelte után mért beütésszám, m a minta tömege. Szokásos folyadék/minta tömegarány 5:1, v. 10:1.

Szorpciós K_d méréseket végeztünk , ^{85}Sr, ^{60}Co, ^{137}Cs és ^{125}I izotópokkal,

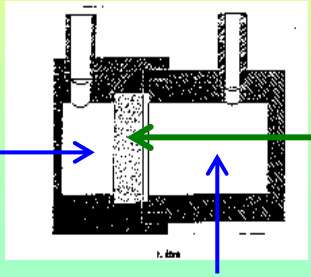
K_d a kationokra 100 és 1000 közötti érték, mig a I^--ra 0 körüli érték adódott.

Probléma:

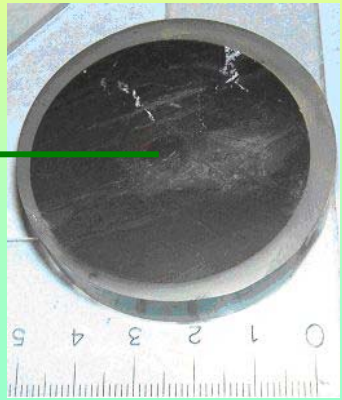
(1) ha $v_{kőzetvíz} = 0$, - nincs értelmezve, (2) nem szorbeálódó anionok milyen sebességgel terjednek ?

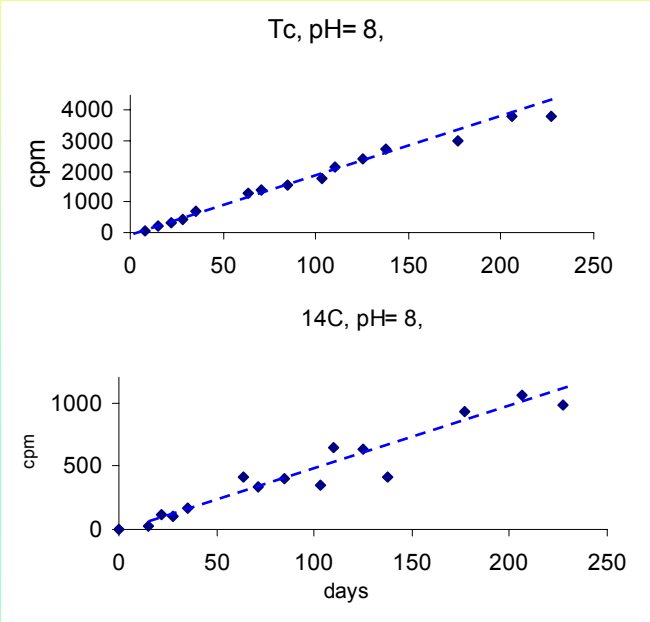
Diffúziós állandók közvetlen mérésekből

$^{99}TcO_4^-$
10^{-5} m/L,
vagy $H^{14}CO_3^-$



kőzetvíz





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

$D_{eff} \sim D_{látszólagos} (\varepsilon)^{1/2}$

$D_{látszólagos}$: ~ 10^{-11} m^2/s

~ erős elektrolitok öndiffúziós állandója vizes oldatokban

D_{eff}: ~ 10^{-12} m^2/s

ez első (egydimenziós) közelítésben:
$x \sim (Dt)^{1/2}$: néhányszor 10 m / 10^5 év

Kisérletek a Bodai Aleurolit Formáció fúrómagjain

Szorpciós mérések: ^{60}Co, ^{85}Sr, ^{137}Cs
Diffúziós mérések: • in situ (100 bar 50 °C
(^{125}I, ^{85}Sr) • tömbi (fél-végtelen, 1 bar)
• áttörési (1 bar)

Autoradiográfia

Nemzetközi együttműködés – (EU FP6 Funmig)

Albrecht / ANDRA

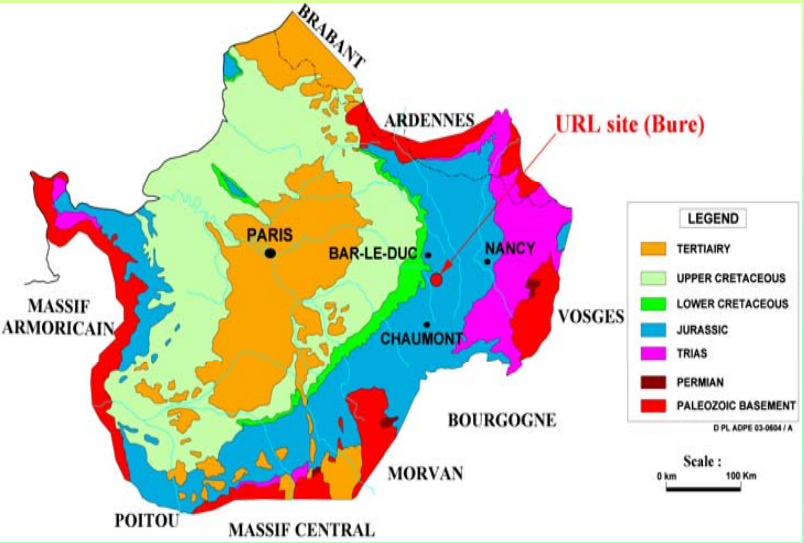
Jelenleg vizsgált agyagos típusú kőzetek:

	age (Ma)	depth	clay content (%)	organic matter (%)	maximum temperature (°C)
Boom	30-36	200	30-60	1-5	16
Boda	250-260	1000	30-40	~0	150
COx	155	500	40	0.8-1.2	40
Opa	180	500	39-63	0.5-1.0	85

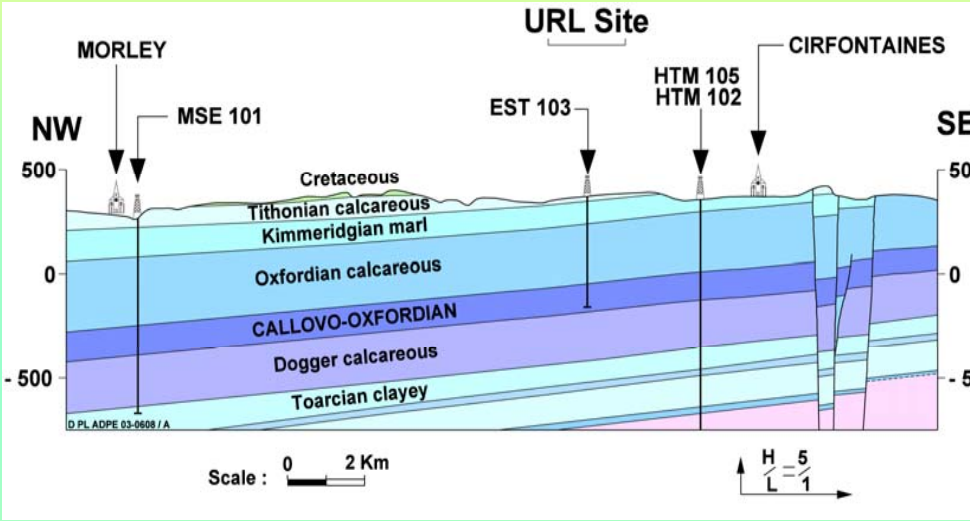
Meuse /Haute (URL) site

Andra/Plas

Location in Paris Basin



Geological cross section



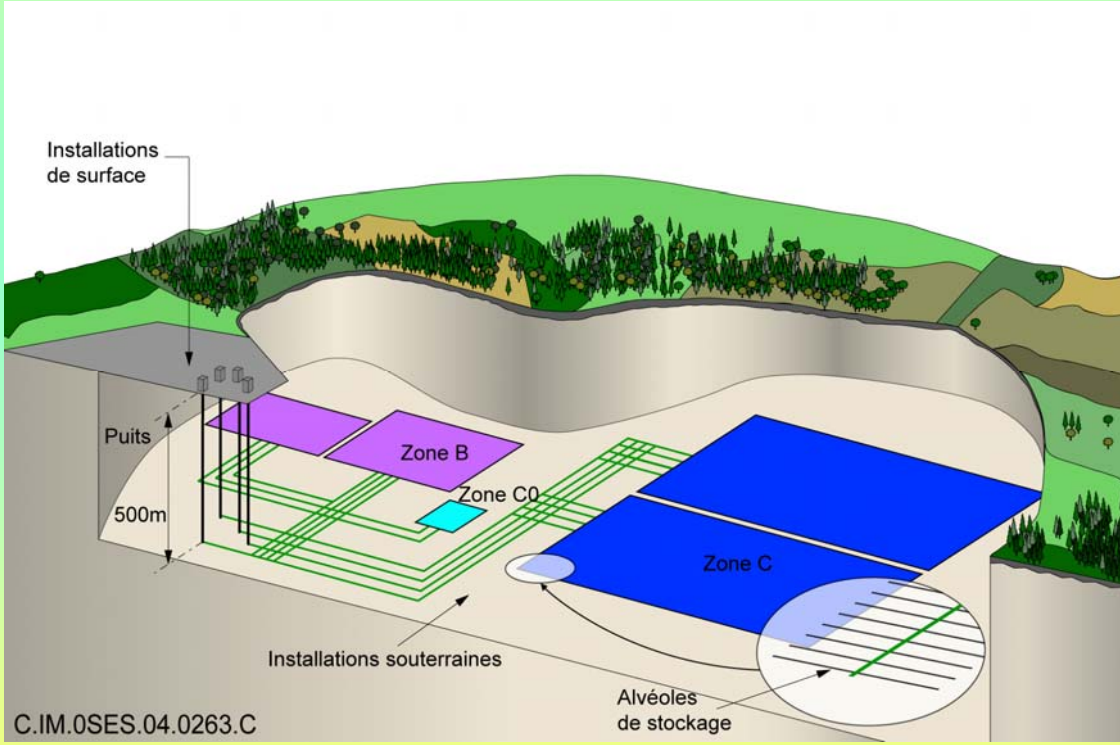
- Strata with a simple, regular geometry and no fault on a large area
- Callovo-Oxfordian formation as host rock : clay formation, ~ 400 m depth and 130 m thickness at URL
- Two main surrounding formations, Dogger and Oxfordian carbonates

Illusztráció: URL (Underground Research Laboratory)

Installations architecture

Andra/Plas

- **Single-level layout in the middle of the COX stratum**
- **Separation of packages in distinct zones** (ILLW, HLW, Spent Fuel if applicable)
  ⇒ limited interactions, management flexibility
- **Modularity of disposal zones**
  ⇒ gradual construction and module separation for safety
- **Access through four grouped shafts**



Data base on COX properties …

Andra/Plas

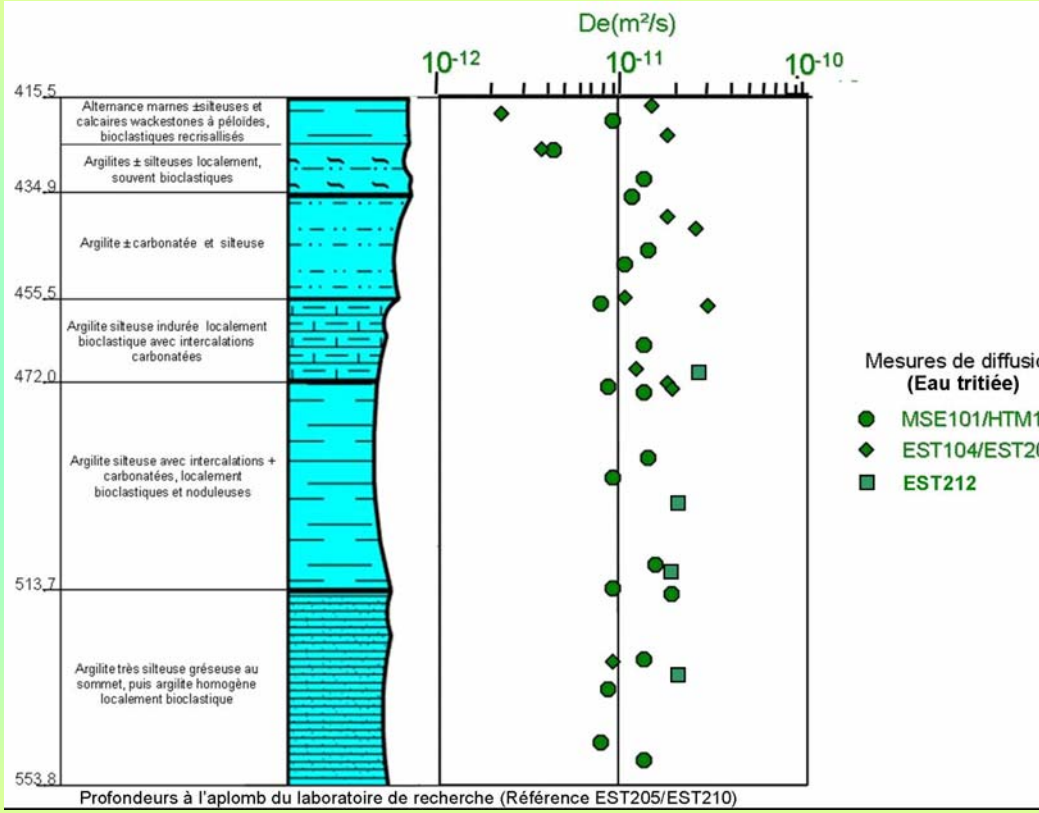
- 27 deep boreholes
- 40 m drift at - 445 m
- 485 m drift at - 490 m
- 130 borehole from the URL drifts
- 1400 sensors linked to SAGD (data base)
- 4 km of core samples of the Callovo-Oxfordian
- 40000 samples (mechanic, hydraulic, pore water chemistry, solute transfer…)
- In situ experiments are on going : DIR (solute transfer), PAC (pore water chemistry) …

↳ A large data base on Callovo-Oxfordian properties is already available

COX properties (6/6)

Andra/Plas

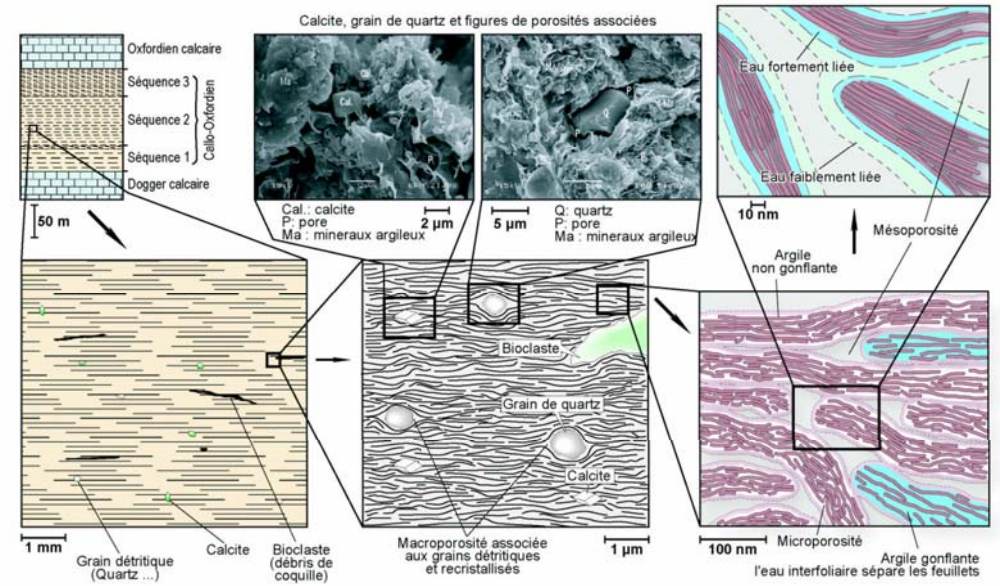
- Homogeneity of diffusion properties over the whole formation
- Low diffusion coefficients with different behaviour for anionic and cationic elements (anionic exclusion)
- Values confirmed by first results of experiments carried out in the URL (DIR) with HTO, ^{36}Cl, ^{125}I, ^{22}Na et ^{134}Cs



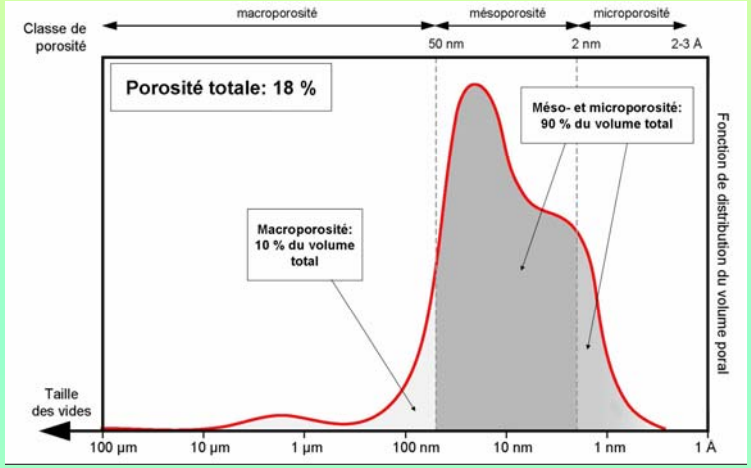
COX properties (4/6)

Andra/Plas

The different scales of characterization



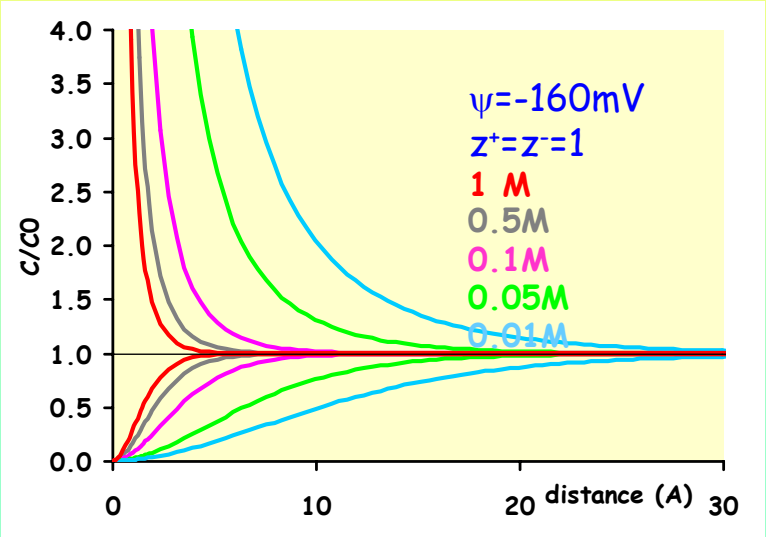
The pore size distribution

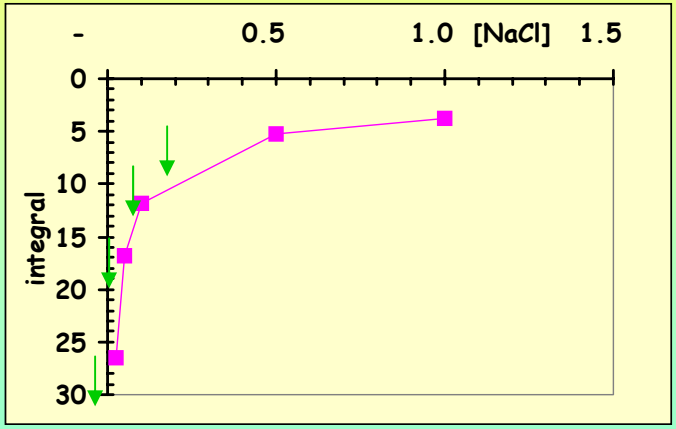


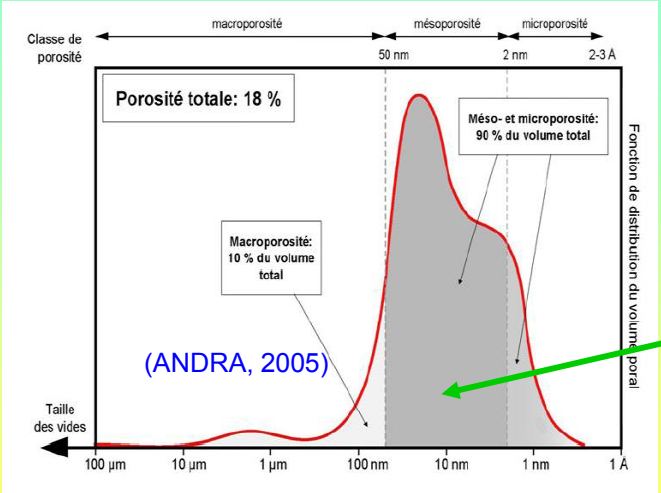
- Total porosity : between 14% (upper part of COX) and 18 %
- Pore size distribution : few nm to 100 nm
- No connectivity of the largest pores (associated to bioclasts or quartz grains)
- Connectivity of the smallest pores (< 10-20 µm) with “electrochemical bottleneck”
- 50% of pore water is considered as bounded water

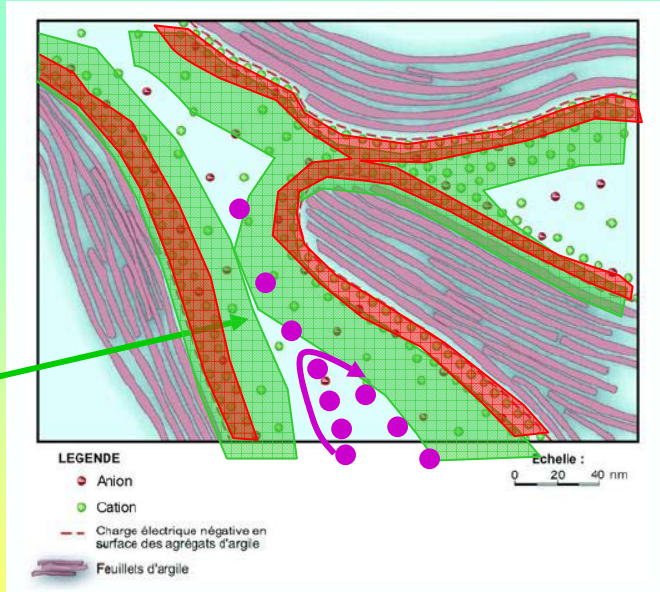
Double layer overlapping effect

Goutelard / CEA

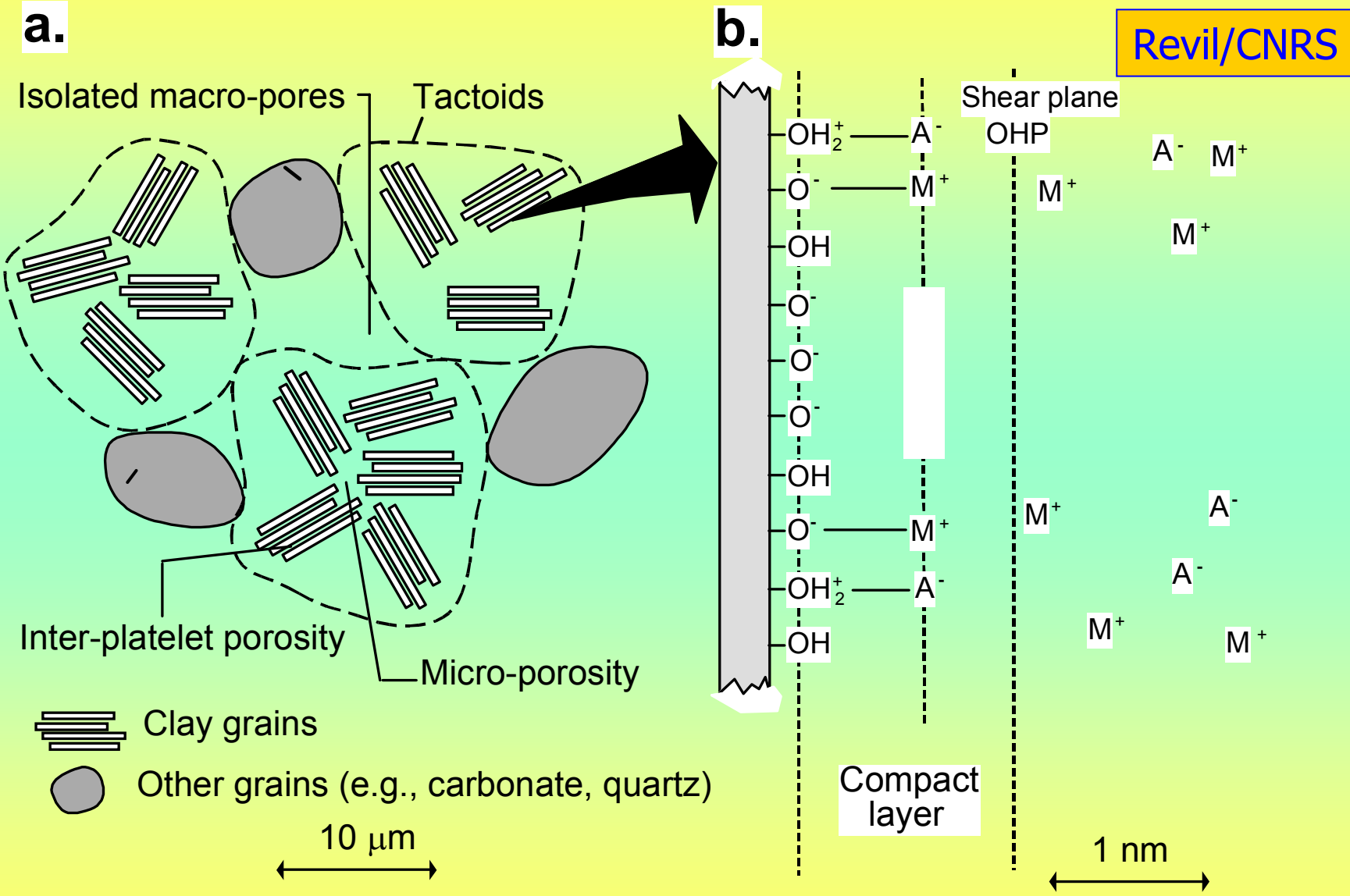








Clay-rich materials : low permeability, high specific surface area



"M"-form of the transport equations

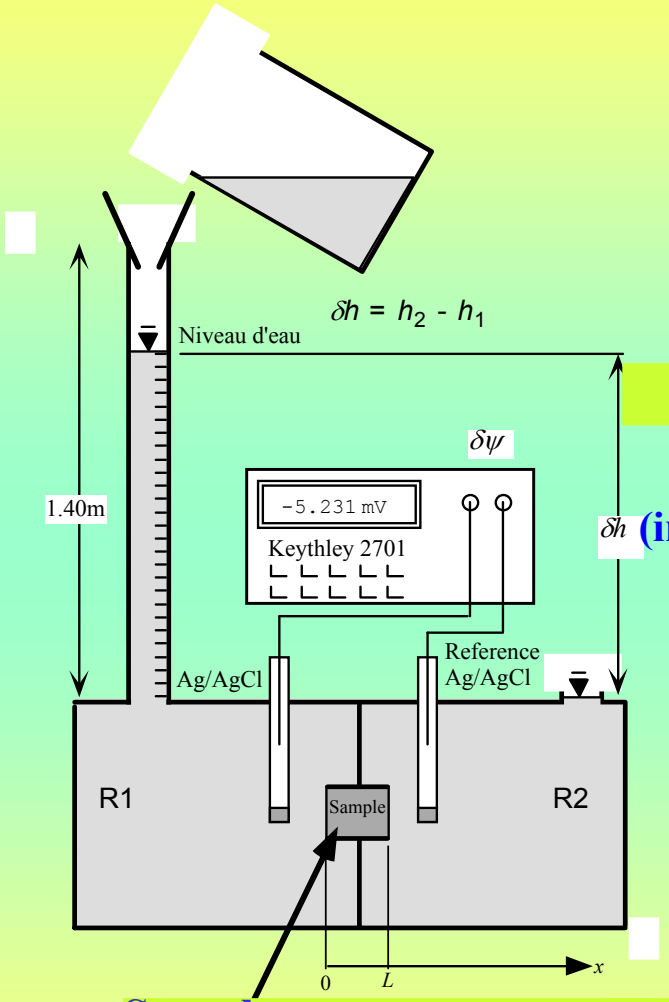
$$\begin{bmatrix} 2\mathbf{J}_d \\ \mathbf{J} \\ \mathbf{U} \\ \mathbf{H} \end{bmatrix} = -\mathbf{M} \begin{bmatrix} \nabla \mu_f \\ \nabla \psi \\ \nabla \bar{p} \\ \nabla T / T_0 \end{bmatrix} \qquad \nabla \cdot \begin{bmatrix} \mathbf{J}_d \\ \mathbf{J} \\ \rho_f \mathbf{U} \\ \mathbf{H} \end{bmatrix} = -\frac{\partial}{\partial t} \begin{bmatrix} C_f \phi \\ \bar{Q}_V \phi \\ \rho_f \phi \\ \rho C_v T \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} (R_{(+)} + R_{(-)})/2 \\ e(R_{(+)} - R_{(-)}) \\ \rho_f F \\ Q_S \end{bmatrix}$$

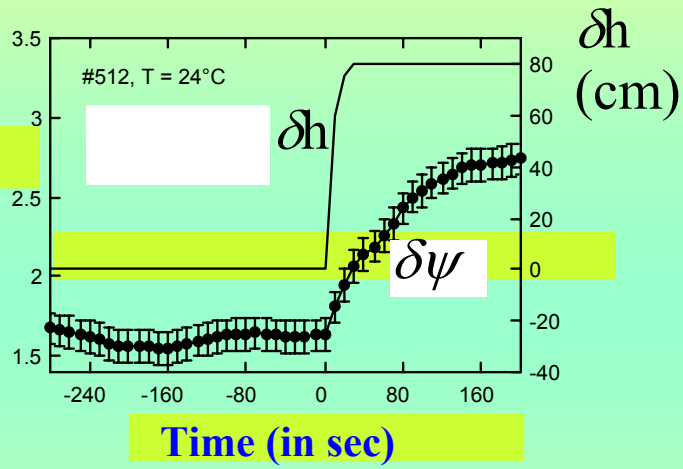
"M"-form	Chimical potential	Electric potential	Fluid pressure	Temperature
Salt flux $\mathbf{J}_d$	**Fick's law**	**Electrophoresis**	**Convective diffusion**	**Soret effect**
Current density $\mathbf{J}$	**Diffusion current**	**Ohm's law**	**Electrofiltration**	**Thermo-electricity**
Darcy velocity $\mathbf{u}$	**Osmosis**	**Electro-osmosis**	**Darcy's law**	**Thermo-osmosis**
Heat flux $\mathbf{H}$	**Dufour effect**	**Peltier effect**	**Convective flux**	**Fourier's law**

2. Determination of hydraulic conductivity of shales

Revil/CNRS

Différence de potentiel électrique mesurée entre deux réservoirs





Diffusion of a pressure wave
Relaxation of the electrical potential

Sample

Összefoglalás - köszönetnyilvánítás

- Áramlásmentes esetben is migrálnak az ionok –
  $D_{eff} \sim 10^{-12}$ m^2 / s (kb. nehány m / 10^5 év)

- Első közelítésben: elektrolitok öndiffúziós sebessége vizes oldatokban

---

Köszönetnyilvánítás

1. Régebbi mérések: alfa-projekt ^{125}I, ^{85}Sr, ^{137}Cs, ^{60}Co
   Megyeri János, Riess László, Mell Péter

2. Újabb mérések: FUNMIG $^{99}TcO_4^-$, $H^{14}CO_3^-$
   Megyeri János, Szarvas Tibor (& Lakosi László)

3. Minták, együttműködés, információ
   Mecsekérc: Máthé Zoltán, Kovács László

és ... köszönöm a figyelmet…