



Nagyaktivitású nukleáris hulladékok végleges elhelyezése – izotópmigráció

Lázár Károly

Az előadás vázlatja:

- 1) Általános bevezetés
- 2) Vizsgálatok az IKI-ben Bodai Aleurolit mintákon
- 3) Részvétel kapcsolódó EU-s projektben (FUNMIG)
- 4) Most folyó EU-s projekt (ReCosy)

Összefoglalás - kitekintés

1.1. Bevezetés – (általánosságok)

- A nagyaktivitású nukleáris hulladékok létrejötte a hidegháború megindulásával eldőlt – *(a „polgári” energiatermelő reaktorok későbbiek - 1954)*
most már csak a mennyiségen lehet változtatni – és a tároló „üzemidején”
(- milyen izotópok, 10^5 év \Leftrightarrow az írás kb. 5000 éves...)
- Két opció: reprocesszálás és transzmutáció
- Egyébként: lassan kialakuló döntések a végleges elhelyezésről –
egyelőre általában „átmeneti” tárolás (KKÁT)

1.2. Atomerőművek – ^{235}U

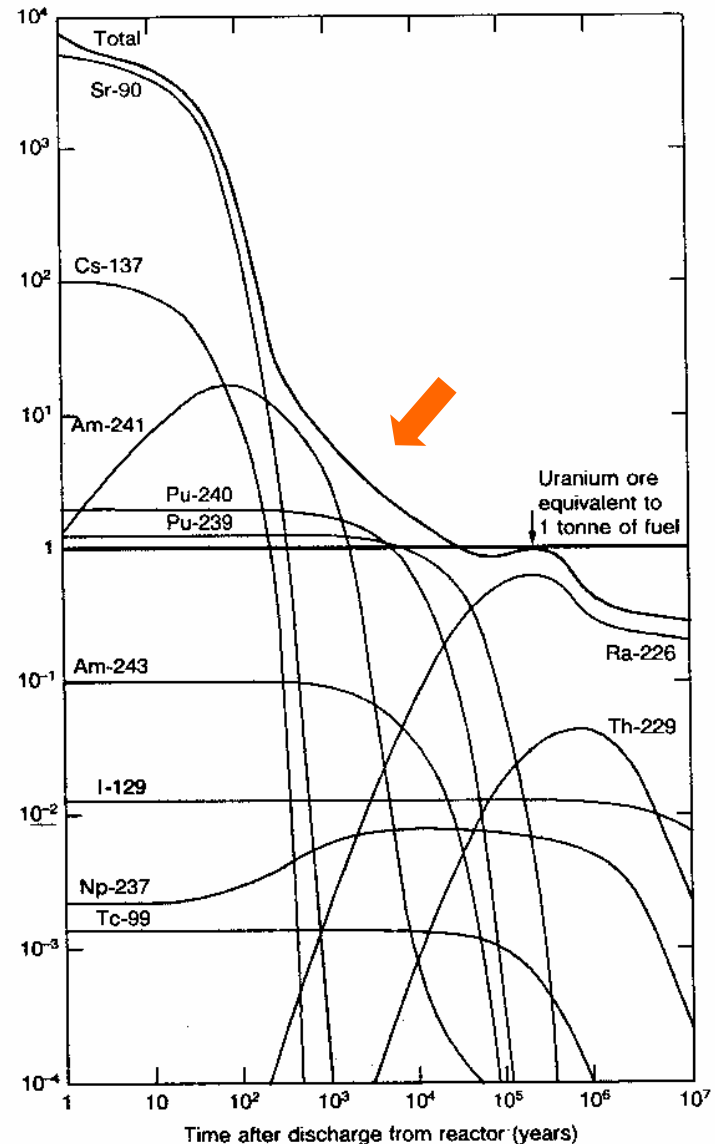
A keletkező hosszú felezési idejű izotópok:

- Hasadási termékek és
- neutronelnyeléssel keletkező instabil magok

A transzuránok
(Am, Pu)
eltávolításával a

$\tau_{1/2} \sim 10^3 - 10^5$ év szakasz
is meredeken csökken

Optimális esetben is
legalább ≈ 1000 év



1.3. Továbbfeldolgozás

Akár

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

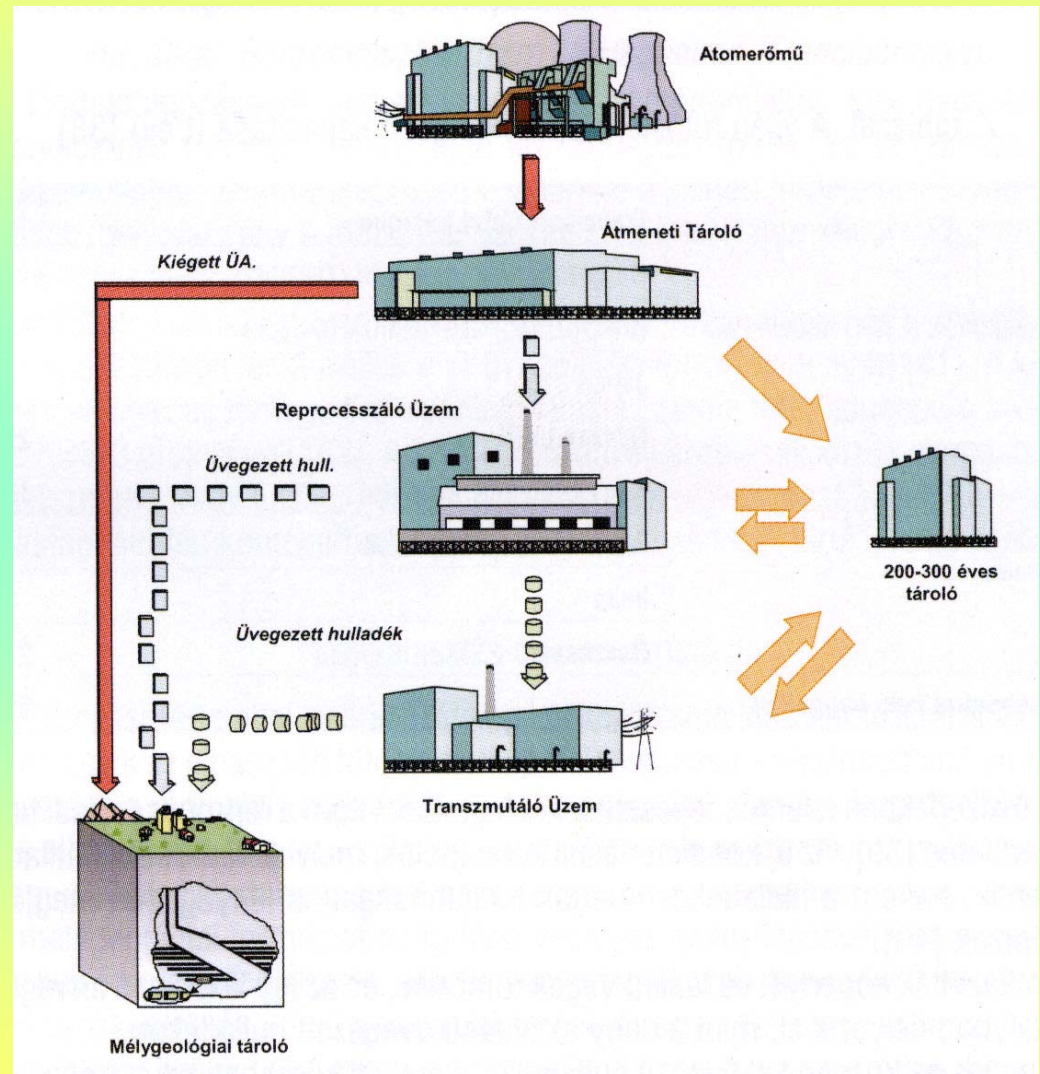
**mindenképpen van
nagyaktivitású hulladék**

Változattól függően

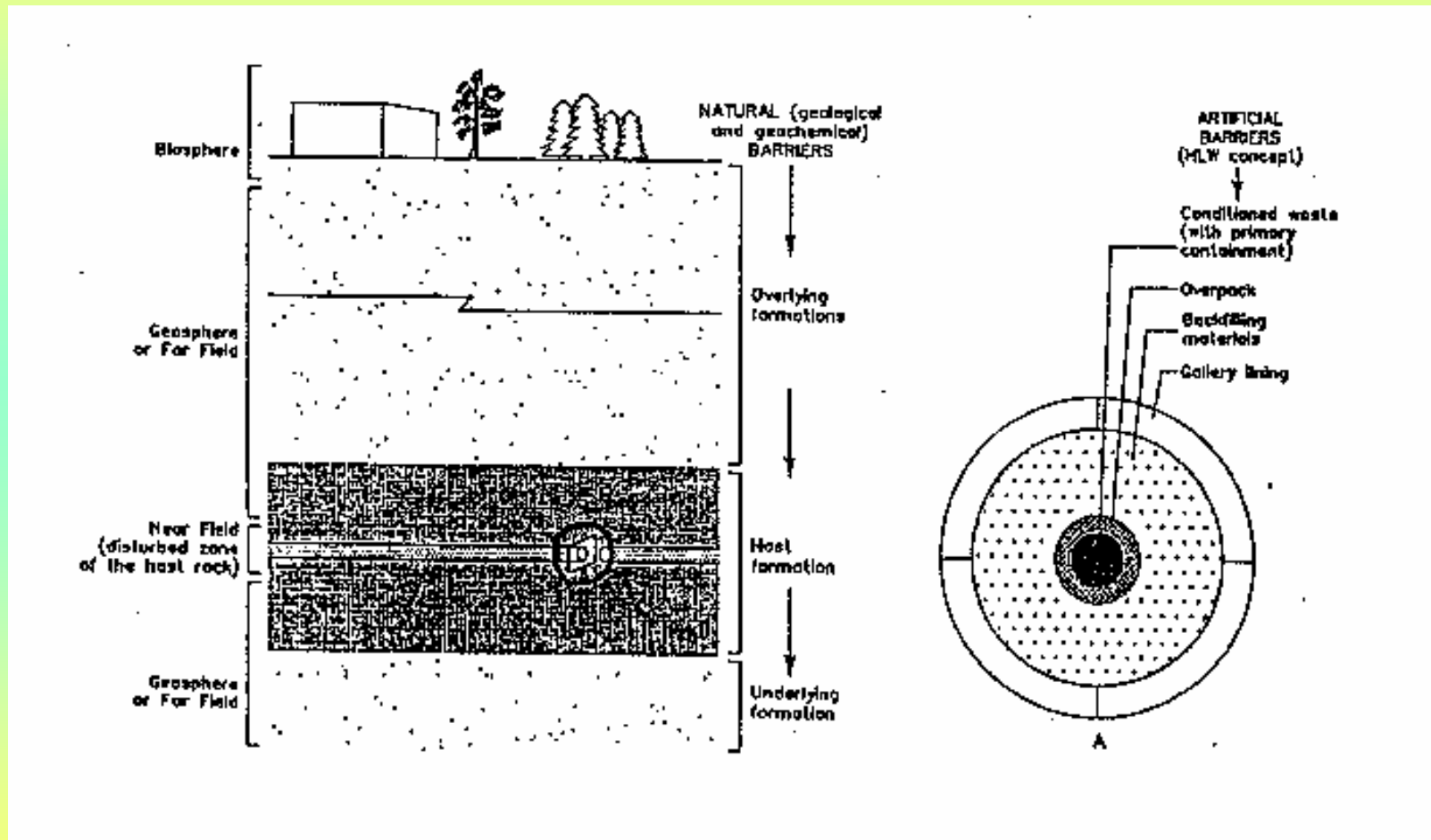
- $10^3 \leftrightarrow 10^6$ év felezési idő
- ill. energiatartalom a hulladékban

Ormai Péter:

*Nemzetközi és hazai törekvések a radioaktív
hulladékok biztonságos kezelésére és
elhelyezésére – RHK KHT 2003*

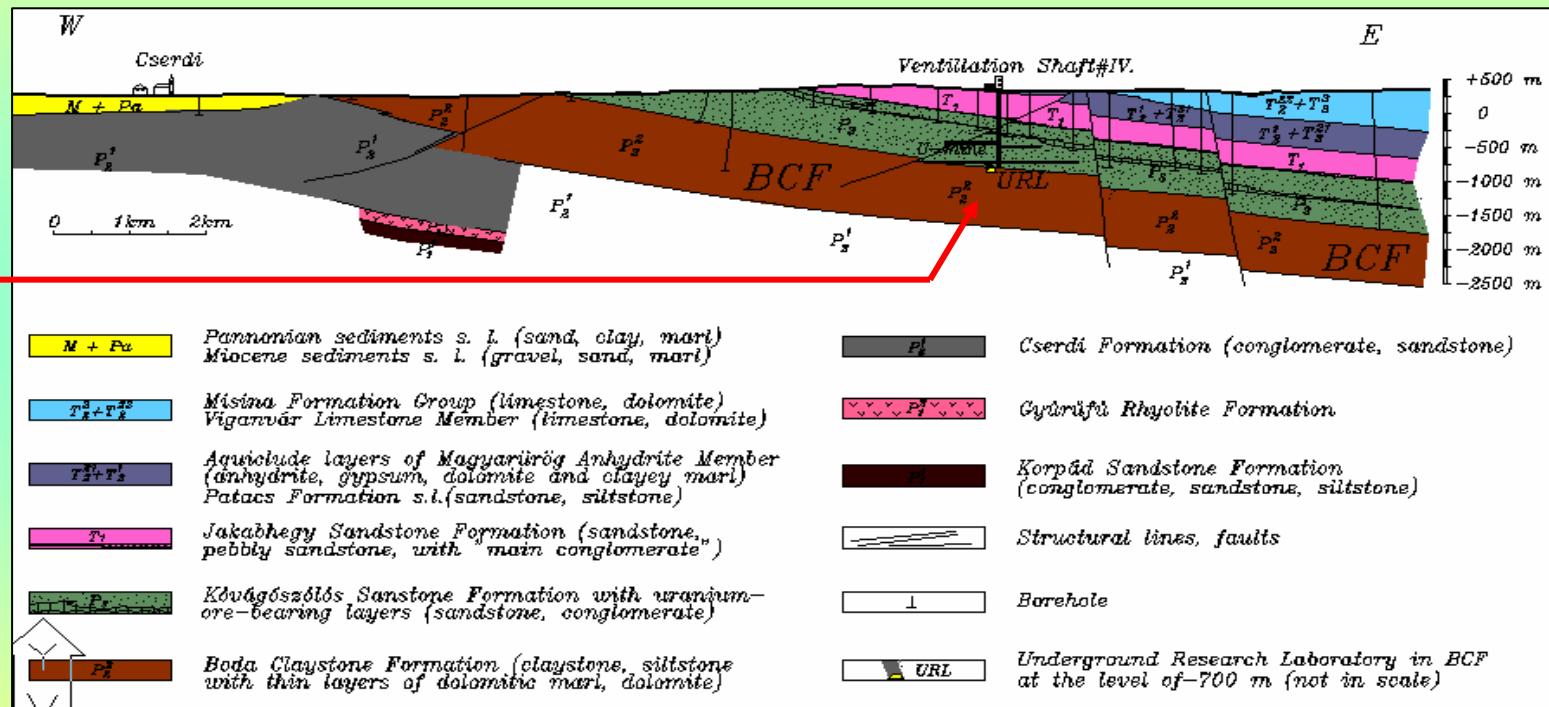


1.4. A geológiai elhelyezés - sematikusan



2.1. Izotóp Intézet és izotópmigráció

1990-es évek: Mecseki uránbánya bezárása
 ~ 1994 – 1997 részvétel az „alfa projekt”-ben



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

2.2. Történeti háttér (alfa-projekt)

~1990-től hivatalos koncepció: az energia termelője gondoskodik a nagyaktivitású hulladék végleges elhelyezéséről => alfa projekt (PAV Rt)

URL: Mélységi Kutatólaboratórium (- 1050 m , 50 °C)



Implementation of a hydraulical test at the borehole Gamma-2 (performed by Golder)

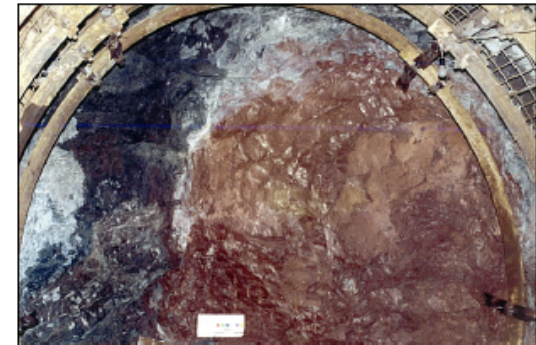
Az angol jelentés 62 oldal: kőzet, ásvány, hidraulika, stb. vizsg. izotópszorpció és -migrációs mérések a projekt keretében (4 old.)



PURAM

DIGEST

*ON THE RESULTS OF THE SHORT-TERM
CHARACTERISATION PROGRAMME OF THE
BODA CLAYSTONE FORMATION*

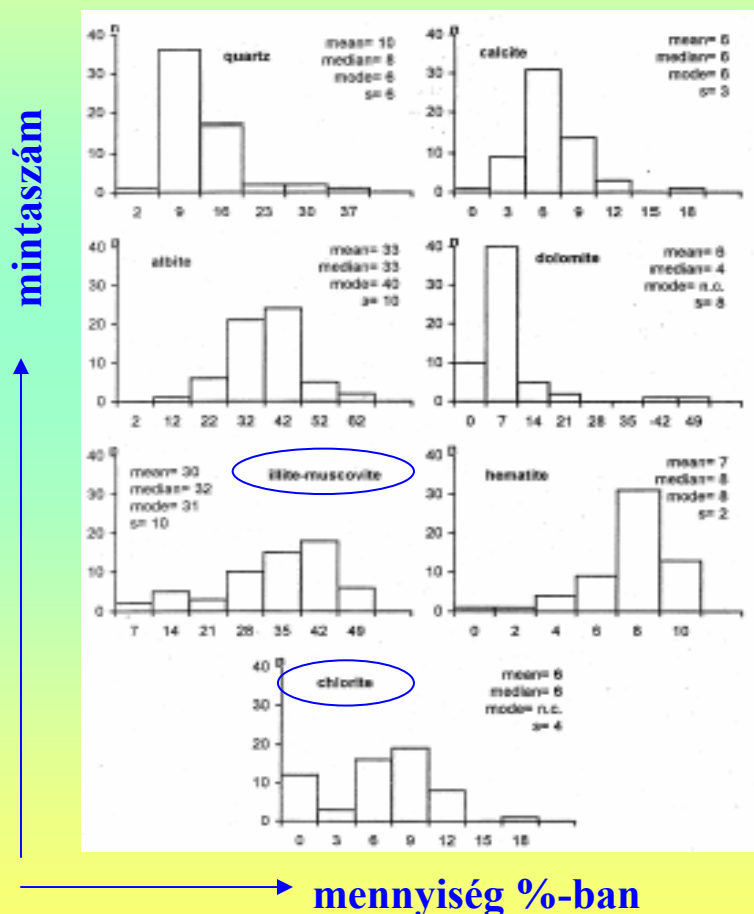


*Edited by
László Kovács*

1999, Pécs - Paks

2.3. Bodai Aleurolit – tulajdonságok

Fő ásványtani összetevők: kvarc, kalcit, albit, dolomit, illit-muszkovit, hematit, klorit
(réteges agyagásványok - szorpció)



- Porozitás: 0,5 - 2,3 %
- Kőzetvíz pH-ja: 7 - 8,5
- Kőzetvíz redoxpotenciálja (Eh): (-0,3 V) – (+0.05 V)
- Kőzetvíz szivárgási sebessége: $< 10^{-8}$ m/s
- Kőzetvíz kora (stabilizotópos módszerrel $^{16}\text{O}/^{18}\text{O}$):
20000-25000 év,
az ebből számolt szivárgási sebesség kb. 1000 m mélyen:
 $1,5 \cdot 10^{-9}$ m/s

=> **Előnyös tulajdonságok**

2.4. Szorpciós vizsgálatok (^{137}Cs , ^{60}Co , ^{85}Sr , ^{125}I)

$$K_d = V_L (I_0 - I_t) / I_t m$$

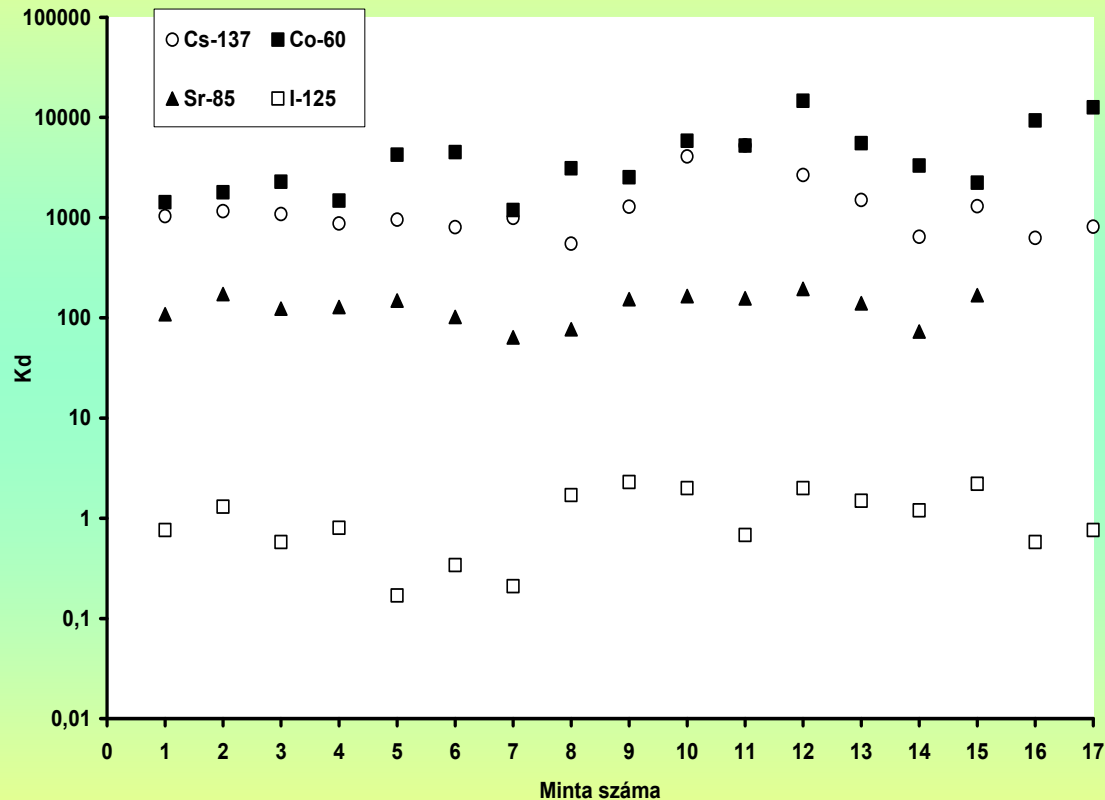
V_L : az oldatminta térfogata, I_0 és I_t : a kiinduláskor, ill. a t idő eltelte után mért beütésszám, m : a kőzetörlemény-minta tömege.
Jellemző folyadék/minta tömegarány: 10:1.

Becsülhető az izotópok áramlással történő migrációjának sebessége:

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

v : terjedési sebesség, K_d : megoszlási hányados (cm^3/g)
 ρ : sűrűség, ε : porozitás.

Mért megoszlási hányadosok (K_d -k)



Kationok szorbeálódnak – viszont a jodid anion alig hat kölcsön a kőzettel

2.5. Diffúziós mérések (1) - „fél végtelen” cella

Kedvező körülmények között (áramlásmentes eset) az izotópok migrációja diffúzióval zajlik.

A diffúzió vizsgálata be-diffundálásos technikával, 70 mm hosszú fúrómag (\varnothing 46-48 mm) mintákon :

$$c_s/c_0 = \alpha \cdot \operatorname{erfc}\{x/2 (D_e/\alpha)^{1/2} t\}$$

$D_a = D_e/\alpha$ (Fick, fél-végtelen eset)

c_0 az izotóp koncentrációja az oldatban, c_s az izotóp koncentrációja a fúrómagban x távolságnál, t idő eltelte után, α az ún. közet-kapacitás faktor, míg D_e az effektív, és D_a a látszólagos diffúziós állandók, erfc pedig a komplementer hibafüggvény ($\operatorname{erfc}=1-\operatorname{erf}$)

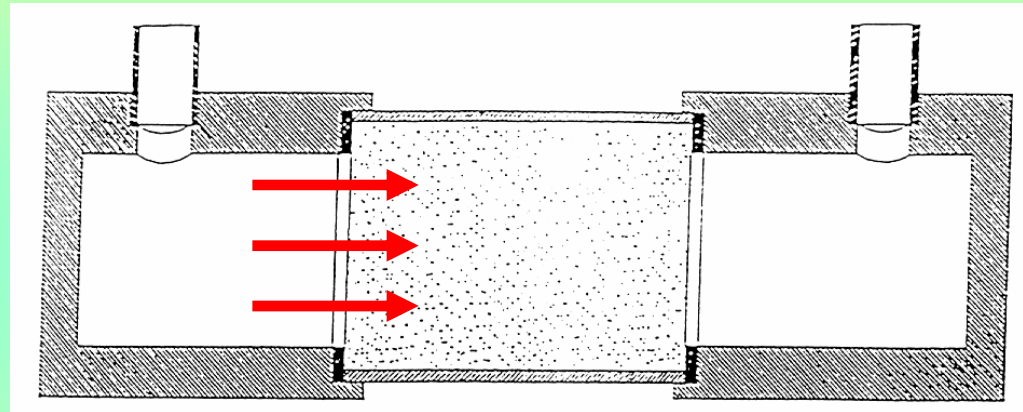
D_e és α meghatározása nemlineáris regresszióval történt

2011. május 5 - IKI

Nukleáris Újságíró Akadémia

Mérések tömör, szilárd (fúrómag) mintákon

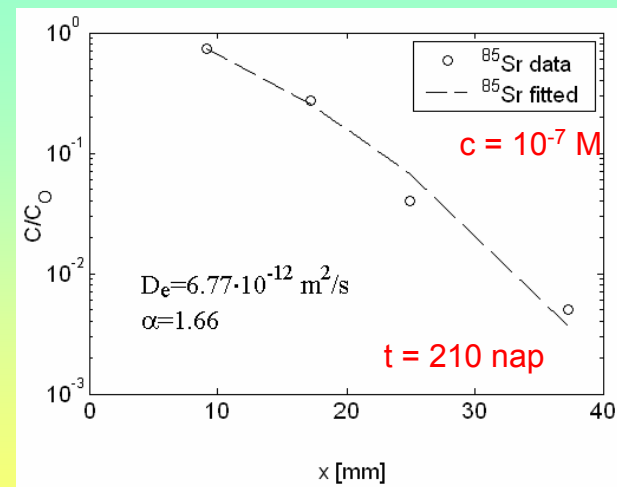
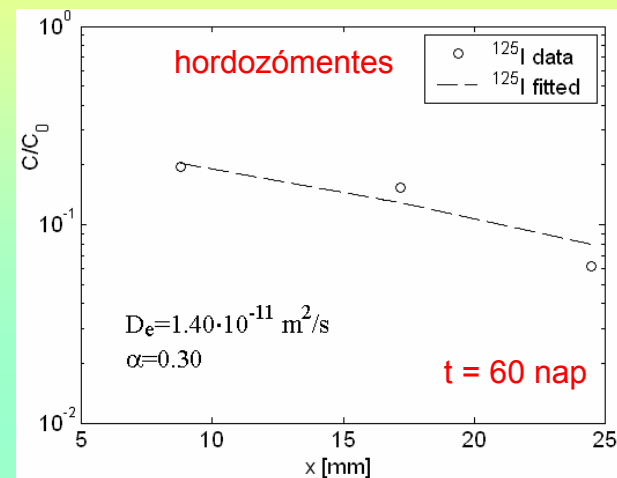
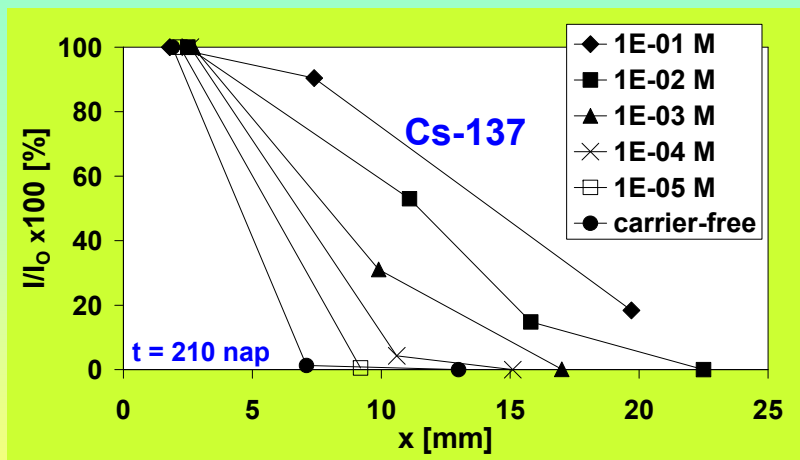
Diffúziós cella a be-diffundálásos mérésekhez



2.6. Eredmények (1) „fél-végtelen” (I-125, Sr-85, Co-60)

- $10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ D_e és D_a értékek a I-125 esetében
- $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ D_e és D_a értékek a Sr-85 esetében
- A Sr-85 esetében nem tapasztalható koncentráció-függő diffúzió
- A Co-60 esetében aktivitás csak a legelső közetszeletben volt mérhető

Koncentráció-függő diffúziósebesség a Cs-137 esetében tapasztalható (összhangban szakirodalmi adatokkal)

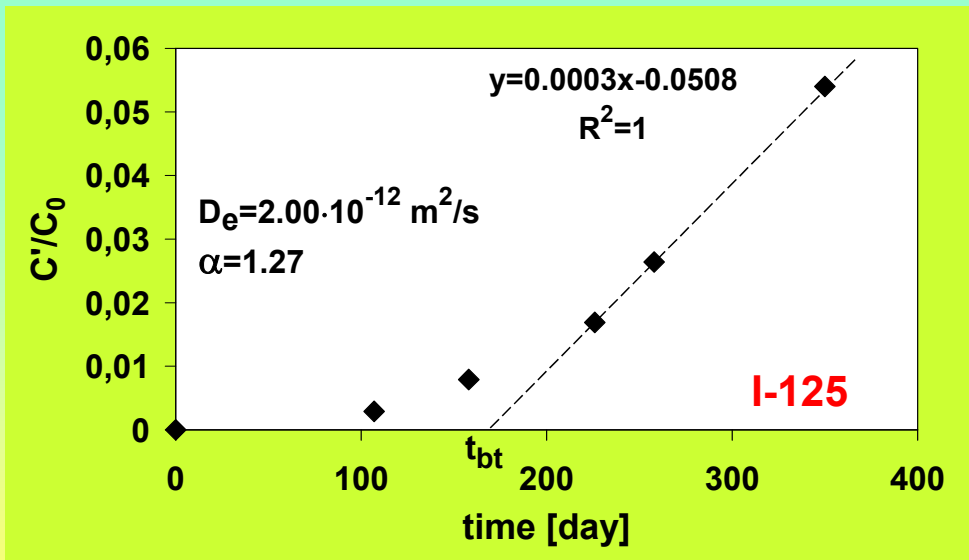


2.7. Diffúzió (2) „áttörési” mérések

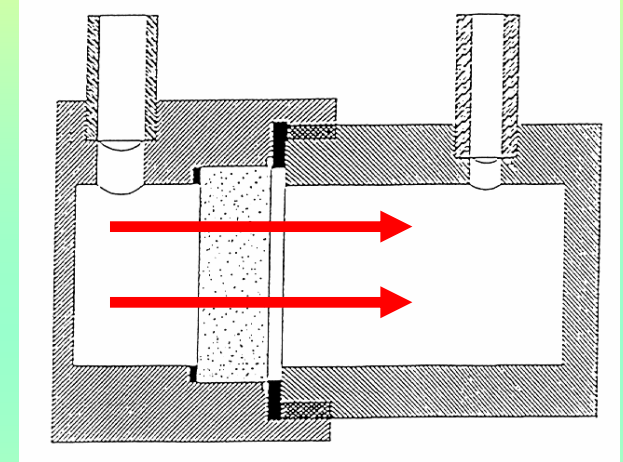
Izotóp-áttörés esetén a transzport egyenlet (Fick) megoldása a steady-state állapotra:

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

C_0 koncentráció az eredetileg aktív térrészben, $C'(t)$ koncentráció az eredetileg inaktív térrészben az idő (t) függvényében, „ A ” a fúrómag minta keresztmetszete, V' az eredetileg inaktív térrész térfogata, L a fúrómag hossza. ($V' = 90 \text{ cm}^3$, $L = 10 \text{ cm}$)



Diffúziós cella



- Áttörés kb. 170 nap után,
- A steady-state szakaszból $10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ D_e és D_a értékek határozhatók meg

2.8. Diffúzió (3) – mélygeológiai elhelyezést szimuláló körülmények

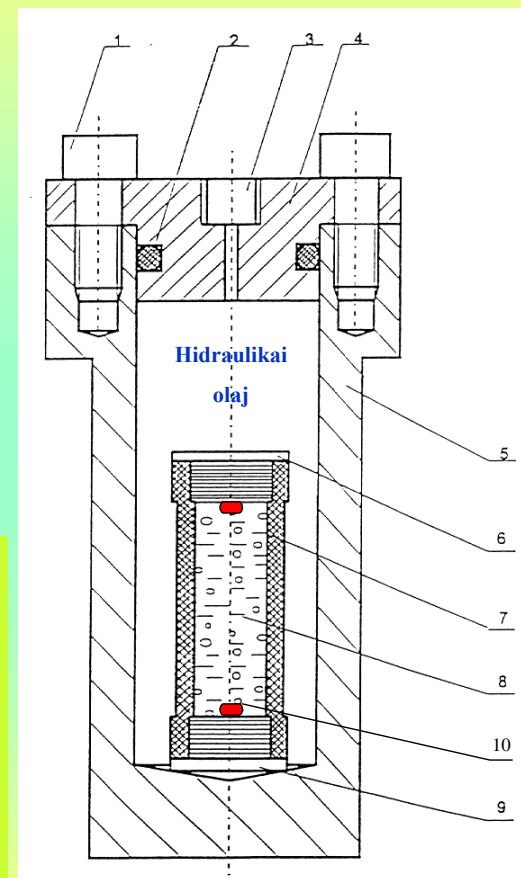
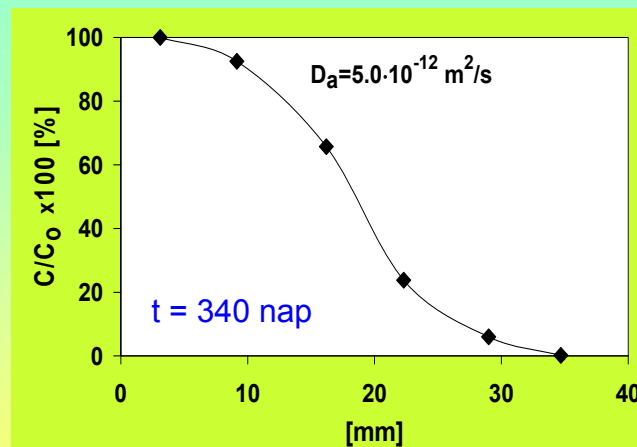
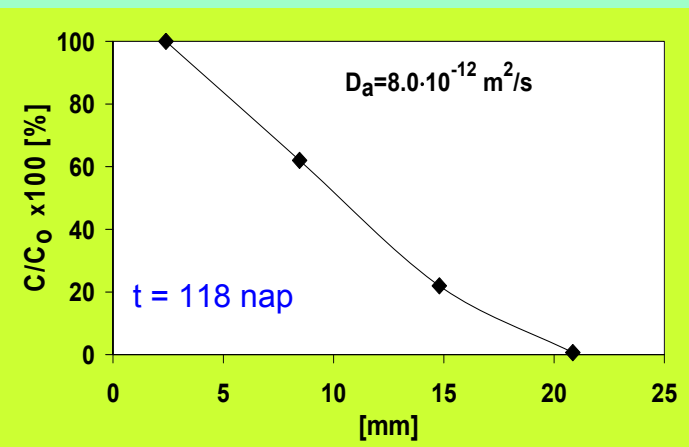
Mélygeológiai körülmények: (~1000 m)

100 bar nyomás és 50 °C hőmérséklet

(pontforrásból kiinduló, félgömb diffúzió)

$$C = s(4\pi D_a t)^{-3/2} \exp(-R^2/4D_a t)$$

C a jód koncentrációja, s pedig a jód mennyisége R távolságnál, t idő eltelte után



$D_a \sim 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$

2.9. Diffúziós mérések összefoglalása

- Jodid alapján – áramlásmentes esetben, anionos (nem kölcsönható) komponensek

A 10^{-12} m²/s diffúziós állandóval becsülhető migrációs x úthossz ($t=10^5$ évre vetítve)

$$x \sim 2 \cdot (D \cdot t)^{1/2} \quad x \sim 3,5 \text{ m}$$

„Közvetett bizonyítás”:

Erős elektrolitokban (tömény vizes oldatokban) mérhető öndiffúziós állandó (D_s) néhányszor 10^{-9} m²/s

Bruggemann egyenlet: $D_e = (\varepsilon^{1,5}) \cdot D_s$ (ε : porozitás - esetünkben 1- 2 %)

Az eredmény így is a néhányszor 10^{-11} m²/s - hasonló nagyságrend adódik

A 10^{-11} m²/s (10 m migráció 10^5 év alatt) a gyakorlat számára egy felső becsült határértéknek tekinthető (hidrológiai áramlásmentes esetben)

(Megállapítás az intézeti vizsgálatokból a 2000-es évek elején)

2.10. Kitérő: hazai koncepcióváltások

Koncepció a 2000-es évek elejétől: a termelőtől független hatóság foglalkozzon a nukleáris hulladékok végleges elhelyezésével – RHK Kht – és Nukleáris Pénzügyi Alap.



A Radioaktív Hulladékokat Kezelő Közhasznú Társaság

hetedik közép- és hosszú távú terve

**a Központi Nukleáris Pénzügyi Alapból
finanszírozandó tevékenységekre**

PAKS, 2007. MÁJUS

„URL” feladva – utána nem voltak jelentős források a nagyaktivitású hulladékok elhelyezésével kapcsolatos újabb kutatásokra – „wait and see”
<= doku: „négy éves késés”, 2008 elején egy rövid nekilendülés: egy v. két újabb felszíni fúrás

2010-től újabb koncepciók:

<http://www.rhk.hu/projektjeink/nagy-aktivitasu-hulladekok/a-feladatok-utemezese/>

2020: mélységi kutatólaboratórium (~ 3- 400 m)
2040: elhelyezés megkezdése a mélységi tárolóban)

3.1. Folytatás EU-s keretben – FUNMIG projekt (2005 – 2008)



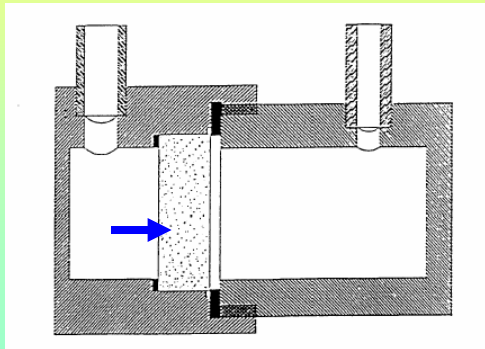
Bodai Aleurolit – összehasonlítás más potenciális agyagos kőzettekkel

	Age (Ma)	Depth (m)	Clay cont. (%)	Porosity / water (%)	Organic matter (%)	Max. temp. (°C)
Boom	30 -36	200	30-60	10-20	1-5	16
Boda	250-260	1000	30-40	1.5 - 3	~ 0	150
COx	155	500	40	6-8	0.8-1.2	40
Opa	180	500	40-60	3-5	0.5-1.0	85

59 részt vevő www.funmig.com

© Achim Albrecht - FUNMIG

3.2 FUNMIG - saját mérések (más anionos komponensek)



Áttörési mérések:

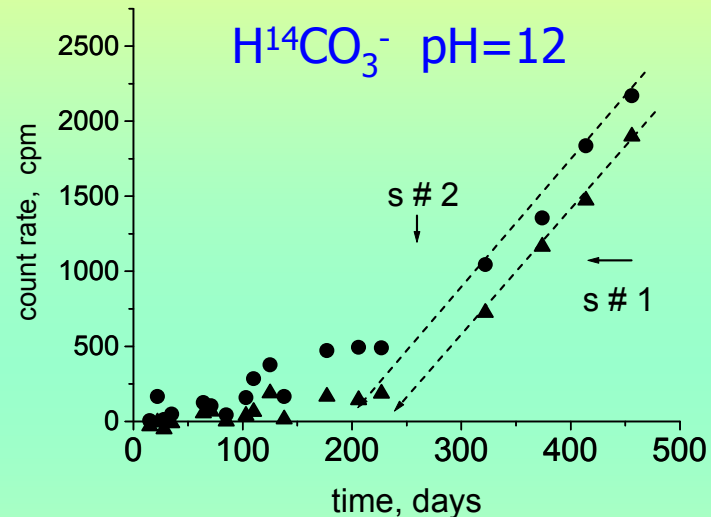
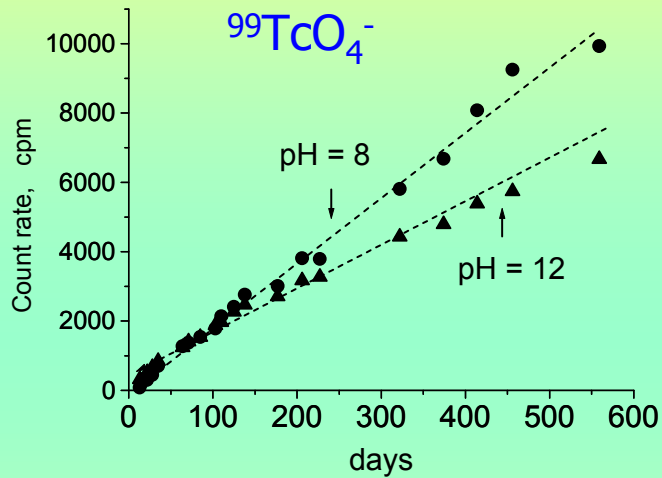
1. \sim gradientsmentes ($\Delta p = 0$, $\Delta c \sim 0$ [10^{-4} m/l])
nincs áramlás, a rendszer *nyugalomban* van
2. *nem szorbeálódó* anionok, $^{99}\text{TcO}_4^-$, $\text{H}^{14}\text{CO}_3^-$,
trícium

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

C: activity concentrations
A: cross section, L: thickness,
V: volume of solution,
t: time elapsed,
 D_e : apparent diffusion constant



3.3 Eredmények, jellemző adatok:



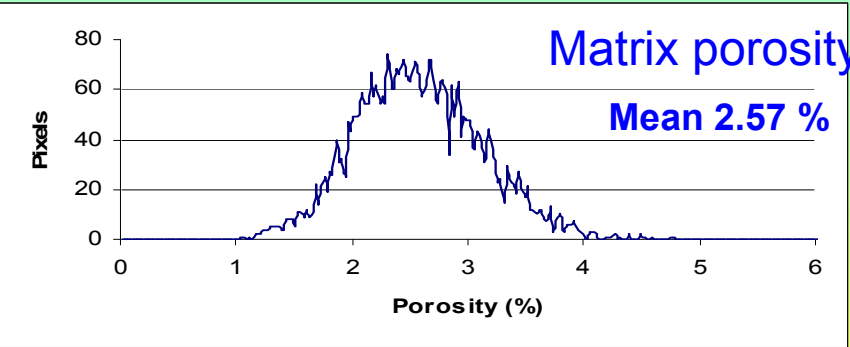
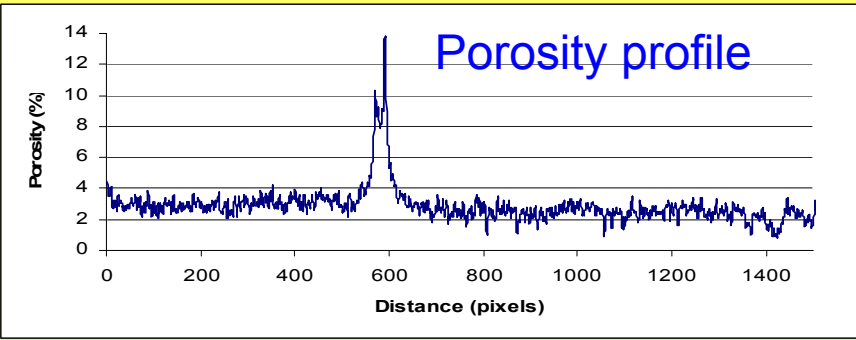
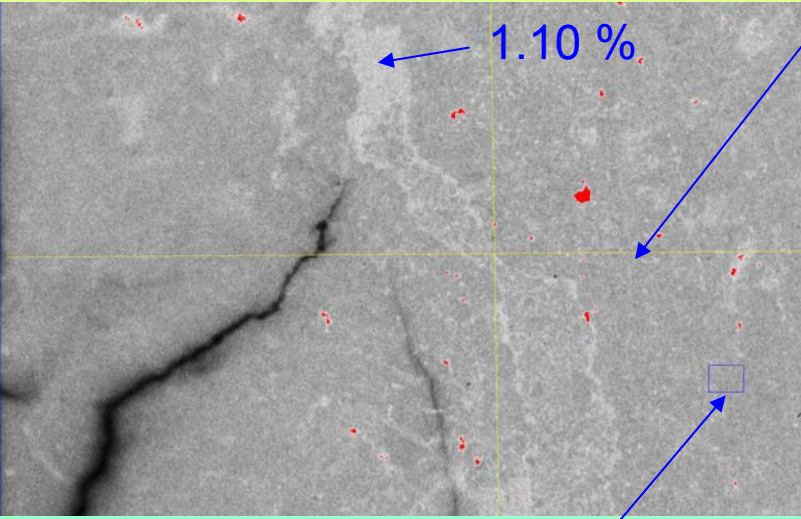
Jellemző D_{eff} értékek: $0.4 - 1.0 \times 10^{-11} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$

Hasonló értékek mint a jodid anionnál :

($x \sim \sqrt{(Dt)}$: $\sim 10 \text{ m} / 10^5 \text{ év}$,)

BODA SAMPLE - J.C. Parneix ERM

Autoradiography (resolution 20 μm)
1cm

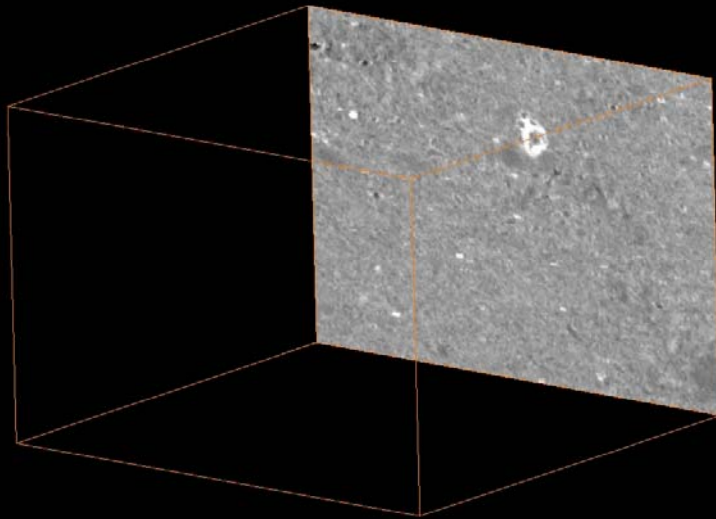


	Mineral composition	
	<i>This work</i>	<i>Árkai et al. (2000)?</i>
(XRD, AA, CEC, Calcimetry)		
Illite – mica	37% (32-42)	33%
Chlorite	3 % (0-5)	2%
Smectite	5 % (0-10)	2%
Analcime	25 % (19-30)	23%
Albite	7 % (4-10)	12%
Quartz	8 % (5-11)	11 %
Calcite	6 % (5-7)	9%
Dol – Ankerite	2 % (1-3)	1% (Dol)
Hematite	6 % (1-7)	8%
Titanium oxide	0.5 % (0-0.7)	-
Apatite	0.5 % (0-1)	-



BODA SAMPLE

X-ray tomography: ESRF synchrotron
resolution (0.7 μm)

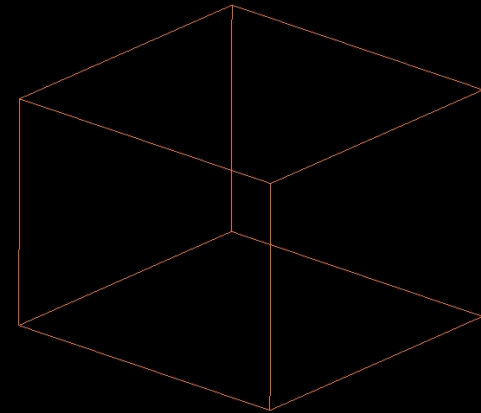


100 μm

100 μm

Porosity : grey
Hematite : yellow

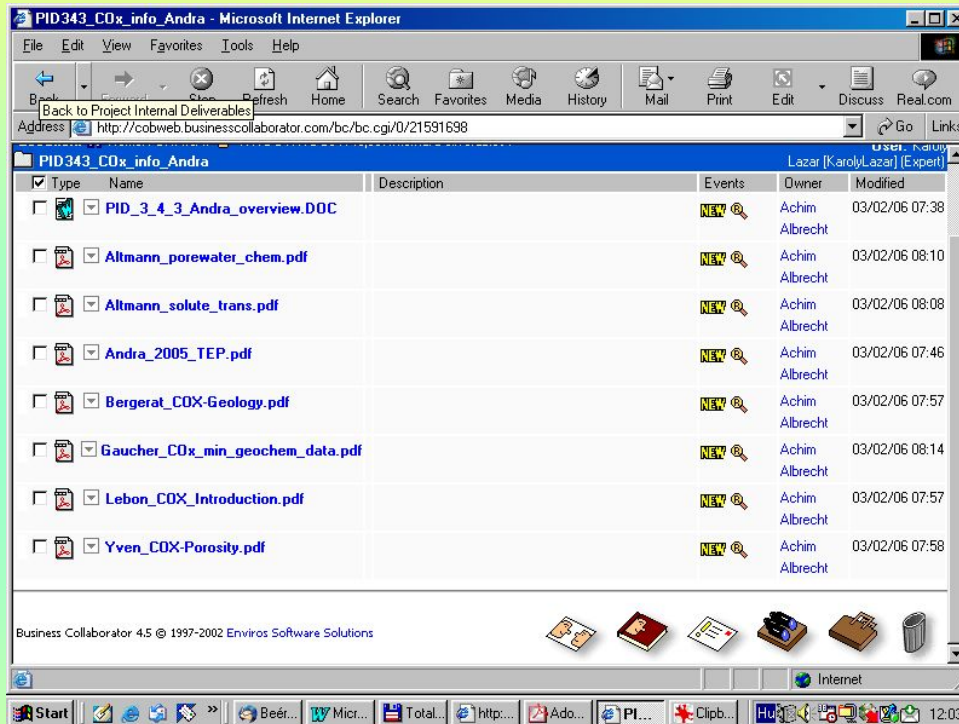
100 μm
Analcite



100 μm

3.5. Nagy mennyiségű információ

volt nyerhető a FUNMIG projekt belső honlapjáról



intranet, pl.:

- éves jelentések, („PID”)
- előadások (.ppt)
- éves workshop proceedings
- (RTDC3) egyéb doku:
pl. COx megvalósíthatósági tanulmány (*)
- 40 ezer minta adatbázisa
- és analóg doku-k a („kristályos”) RTDC4-ből

<http://www.funmig.com> => intranet => RTDC => RTDC3 => Project Internal deliverables => PID 343 (porewater chemistry, model of flow and solute transport.
 (*) 2005 Argile – Safety evaluation of a geological repository .pdf 784 oldal - ANDRA

4.1. Folytatás EU-s keretben (2) – ReCosy (2009-2013)



Redox Controlled Systems – www.recosy.eu

Redox folyamatok hatásainak vizsgálata a hosszú felezési idejű
- és redox változásokra is képes – izotópok migrációjában

Főleg U és transzurán elemek (Pu, Np, Am) de ^{xx}Se , ^{99}Tc , ^{129}I is.

Itt is megvan a Bodai Aleurolit specifikuma:

Az agyagásványokban (rétegszilikátokban illit/montmorillonit, klorit)
többnyire együttesen előfordul Fe^{2+} és Fe^{3+} is:

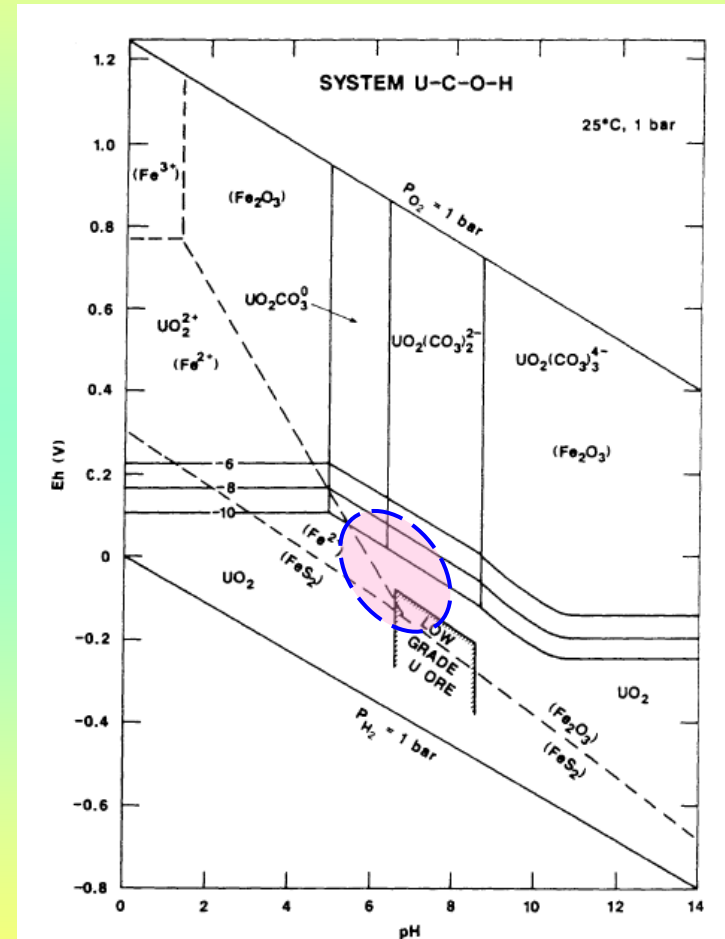
logikus kérdés, hogy lejátszódhat-e pl. egy csatolt páros folyamat:

- 1) $\text{U}^{(\text{VI})}\text{O}_2^{2+} \Leftrightarrow \text{UO}_2$ (uranil ion [oldható] \Leftrightarrow urán-dioxid [szilárd])
- 2) $\text{Fe}^{2+} \Leftrightarrow \text{Fe}^{3+}$ a rétegszilikátokban

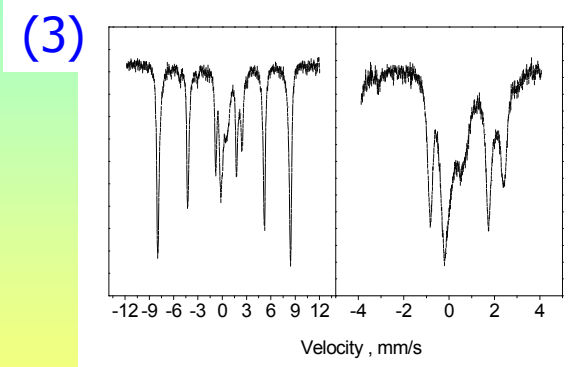
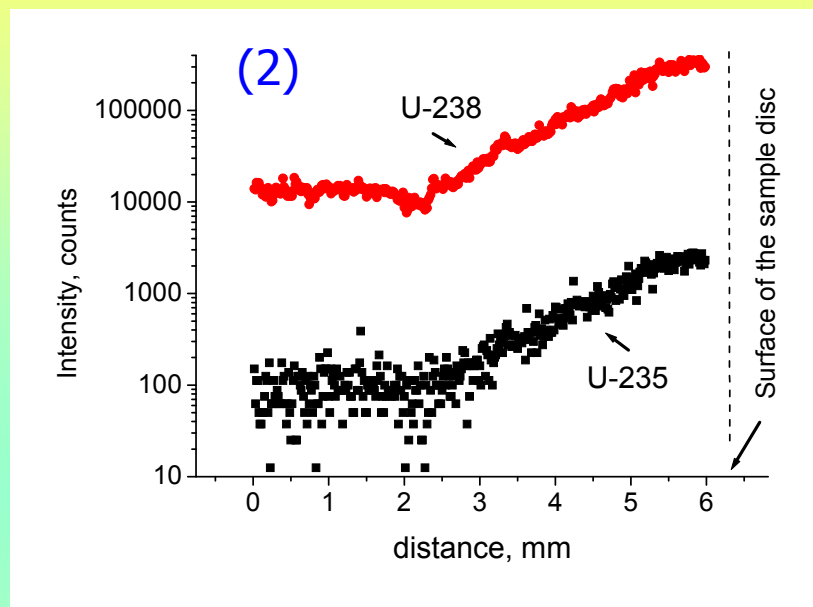
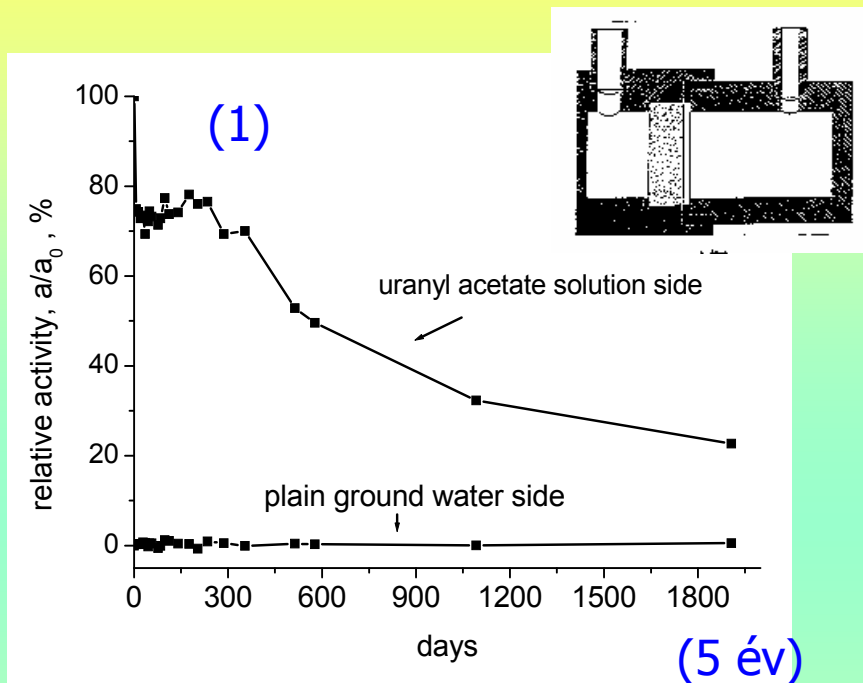
4.2. IKI részvétel a ReCosy projektben a Bodai Aleurolittal

1. A „szokásos” áttörési diffúziós cella (most uránacetát oldattal)
2. Uráneloszlás mérés a minta keresztmetszetében 4 év után lézerablációs ICP-MS berendezéssel
3. Mössbauer-spektroszkópia a $\text{Fe}^{2+} / \text{Fe}^{3+}$ arány meghatározására az agyagásványokban

*D.G. Brookins,
Eh-pH Diagrams for Geochemistry, Springer (1988)*



4.3. Eredmény - urán és vas redox a Bodai Aleurolitban



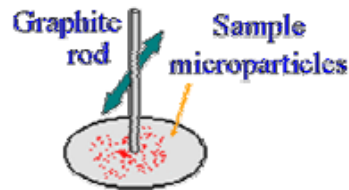
- (1) Az uranyl ionok egy része eltűnik az oldatból
- (2) Az urán valóban megkötődik a mintában
- (3) Közben nincs $\text{Fe}^{2+} \Rightarrow \text{Fe}^{3+}$ folyamat

\Rightarrow Erős urán szorpció van, de nem a feltételezett csatolt redox folyamat miatt

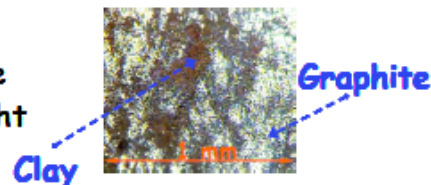
4.4. ReCosy együttműködés – Bodai mintákkal

Voltammetry of MicroParticles (VMP)

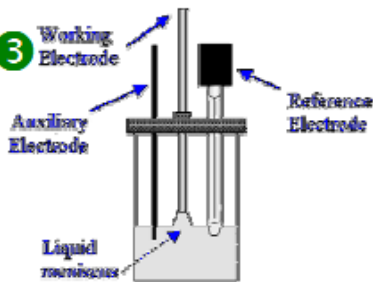
- 1 Mechanical immobilization of the clay microparticles on the section of a paraffin-impregnated graphite rod



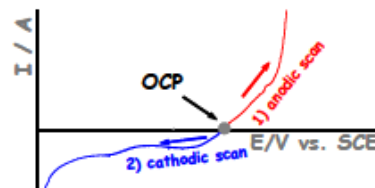
- 2 Active surface area of the graphite rod under the light microscope



- 3 Use of the graphite rod as the working electrode. In the electrochemical cell the formation of a meniscus around the electrode ensures the reproducibility of the active surface area and limits the capacitive background current



- 4 Voltammograms have been recorded under nitrogen atmosphere starting from open circuit potential ($E_i=0$)



4

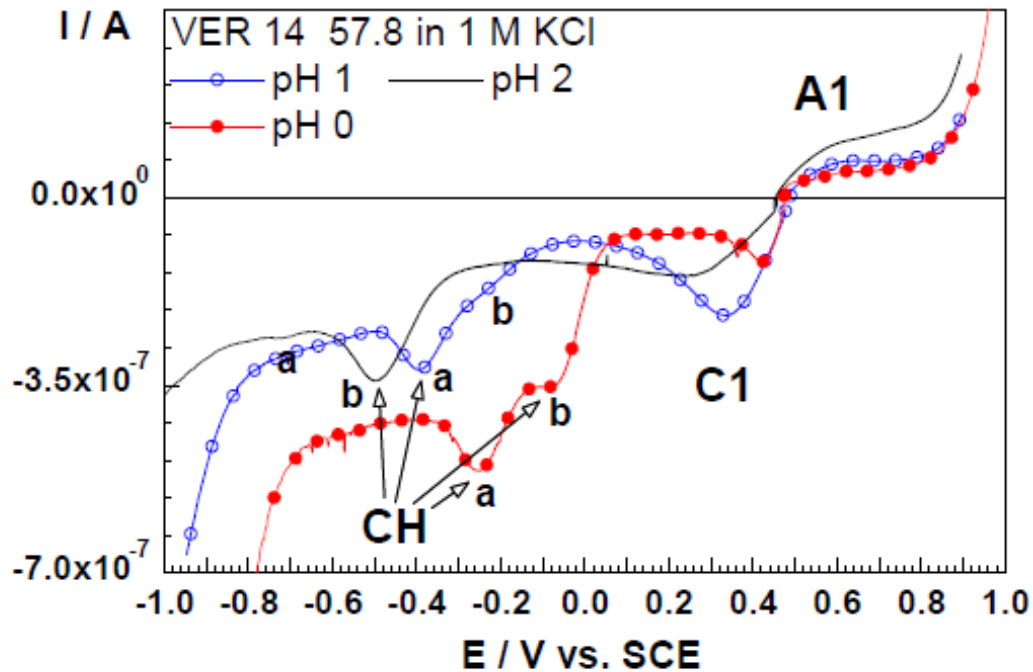
M. Perdicakis
Nancy, FR:

Néhány mg-nyi
közetszemcse
felhasználásával
az ásványok
 $\text{Fe}^{2+} \leftrightarrow \text{Fe}^{3+}$ redox
folyamatai
vizsgálhatók:

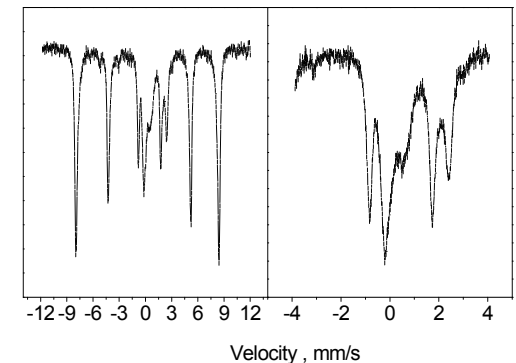
Jól korrelálható a
Mössbauer
spektroszkópiával

4.5. VMP – egy példa

in 1 M KCl at pH 0, 1 and 2



Label	VER 57.8
Depth* (m)	57.8
Determination method	Mössbauer
Fe ²⁺ chlorite or other clay minerals	14.1
Fe ³⁺ (a) } chlorite or illite-	12.9
Fe ³⁺ (b) muscovite	8.5
Fe ³⁺ hematite	63.6



=> Attól függően, hogy milyen ásványban vannak a Fe³⁺ ionok, más-más potenciálon redukálódnak.

Összefoglalás – kitekintés - általánosítás:

- Nagyon sok aspektussal igen részletekbe menően foglalkoznak, nemzetközi együttműködésekben is
- technikai megvalósításig el lehet jutni (pl. ANDRA / COx)
 - ennek ellenére még bizonyos kivárás van (másodlagos feldolgozás (Pu) & transzmutáció),
- Bodai Aleurolit alkalmazhatóságáról is elég sokat lehet már tudni.. ($D \sim 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s} \Rightarrow x \sim \sqrt{\overline{Dt}} < 10 \text{ m} (10^5 \text{ év})$)
(De: nem esett szó a komplex biztonsági értékelésről)