

INTERAKCE ŠTĚPNÝCH PRODUKTŮ, UVOLNĚNÝCH Z ÚLOŽIŠTĚ RADIOAKTIVNÍHO ODPADU, S GRANITEM

INTERACTIONS OF FISSION PRODUCTS, RELEASED FROM A NUCLEAR WASTE REPOSITORY, WITH GRANITE

Václava Buňatová¹ - Jan Kučera²

Fission products, Sorption, Diffusion, Granite

V rámci komplexního grantu GAČR 205/93/0701 „Geochemické interakce v hlubinných úložištích vysoce aktivního jaderného odpadu“, byla studována sorpce štěpných produktů Cs, Sr, Tc a I na granit a difuze Cs a Sr do horniny. Tyto procesy se považují za nejdůležitější mechanismy, způsobující retenci radionuklidů s dlouhým poločasem rozpadu a umožňující tak výrazný pokles jejich aktivity před pronikem do biosféry.

Metodika

Vzorky granitu, jednak s puklinovou výplní (chlorit + sulfidy, křemen, Fe oxidy, fluorit), jednak neporušené, byly získány z vrtných jader z lokality Dolní Březinka (melechovský masiv). Byl proveden jejich pečlivý mineralogicko-petrologický popis. Vzorky určené pro sorpční experimenty byly namlety a rozstítovány na zrnitostní frakce (63–125, 125–250, 250–400, 400–630, 630–800 μm), současně byly z každého jádra uříznuty kvádříky (10 x 10 x 20 mm). Pro studium difuze byla připraveny vzorky o průměru 46 mm (výška 15–25 mm).

Jako rozpouštědlo pro přípravu radioaktivního roztoku byla použita umělá podzemní voda, jejíž složení bylo určeno na základě průměrného složení podzemních vod v melechovské oblasti. Sledovány byly tyto radionuklidy: ^{134}Cs , ^{85}Sr , ^{99}Tc (metastabilní dceřinný produkt ^{99}Mo), ^{131}I (dceřinný produkt ^{123}Te).

Sorpční experimenty byly provedeny klasicou "batch" metodou (při $\text{pH} = \pm 6,5$) a na jejich základě následně určeny distribuční poměry R_d (ml/g) pro každý prvek (Eriksen et al. 1987, 1989; Torstenfeld et al. 1982; Vandergraaf - Abry 1981). Metodika pro studium difuze byla přejata z prací Allarda et al. (1985) a Ittnera et al. (1988), včetně výpočtu zdánlivých difuzních koeficientů D_a (m^2/s).

Sorpční experimenty

Experimenty sledující interakci cézia s horninovým materiálem ukázaly, že vazba radionuklidu na granit probíhá ve dvou fázích – první, rychlá, odpovídá sorpci na vnější přístupný povrch (proces iontové výměny), zatímco druhá fáze odráží průnik roztoku do mikrotrhlin, řízený difúzí, a vazbu na vnitřní výměnná místa. Toto schéma rovněž umožňuje vysvětlit poměrně vyrovnané hodnoty R_d pro mleté i kusové vzorky (v rozporu s např. Eriksenem et al. 1987): po dlouhé kontaktní době (800 hod) se hodnoty distribučních poměrů vyrovnávají díky procesům řízeným difúzí. Tento předpoklad dokazuje i to, že sorpce Cs nebyla závislá na velikosti zrn dané frakce. Hodnoty R_d jsou uvedeny v tab. 1.

Vzhledem ke stejnému mechanismu sorpce jako pro cézium (iontová výměna) bylo podobné chování zjištěno i pro stroncium. Cs i Sr se nejvíce sorbovaly na vzorky s výplní chloritu a Fe oxidů (viz. č. 1 a č. 3 – viz tab. 1) – tyto fáze mají vysoké hodnoty kationtové výměnné kapacity (CEC) v porovnání s ostatními minerály puklin a základní horninou.

Tabulka 1. Hodnoty R_d (ml/g) pro mleté vzorky (min. a max. hodnoty pro každý typ vzorku) a pro kusové vzorky (pouze max.)

vzorek č.	puklinová výplň	typ vzorku	$R_d(\text{Cs})$ min–max/max (ml/g)	$R_d(\text{Sr})$ min–max/max (ml/g)	$R_d(\text{I})$ min–max/max (ml/g)
1	chlorit+sulfidy	mletý	5,9–8,9	2,9–5,7	0,1–0,7
		kusový	7,7	4,1	1,0
2	křemen	mletý	9,5–12,8	2,3–5,4	0–0,5
		kusový	2,2	1,5	0,7
3	oxidy a hydroxidy Fe	mletý	12,6–19,4	4,6–5,9	0–0,7
		kusový	21,3	4,2	0,5
4	fluorit	mletý	4,7–5,7	2,7–4,3	0–0,5
		kusový	5,3	2,9	0,8
5	neporušený	mletý	2,6–4,8	2,7–5,4	0–0,7
		kusový	4,2	3,1	0,7

Výsledky experimentů potvrdily závěry Beraka (1963, in Andersson - Allard 1983) o vyšší afinitě silikátů vůči Cs v porovnání se Sr – hodnoty $R_d(\text{Cs})$ převýšily $R_d(\text{Sr})$ – viz tab. 1.

Jod je v roztoku při pH 6–8 přítomen v aniontové formě (I^- , IO_3^-). Vzhledem k převaze kationtových výměnných míst na geologickém materiálu byla sorpce jodu malá (R_d ml/g). Podobně sorpce technecia ve formě záporně nabitého TcO_4^- , který dominuje v oxidačních podmínkách při pH 0–14, je prakticky zanedbatelná.

Difuzní experimenty

Experimenty sledovaly difuzi ^{134}Cs a ^{85}Sr do granitu. Trendy migrace obou radionuklidů do horniny jsou podobné. Hodnoty zdánlivých difuzních koeficientů D_a pro Cs a Sr se pohybovaly v intervalech (2.7×10^{-11} – 3.8×10^{-10}) m^2/s , resp. (2.1×10^{-11} – 2.72×10^{-8}) m^2/s . Radionuklidy pronikají do horniny trhlinami, vyplněnými minerály s vyšší CEC (chlorit), nebo mikrotrhlinami, které vznikly jednak opakovanými procesy mineralizace, jednak přípravou vzorku (řezání).

Literatura

- Andersson, K. - Allard, B. (1983): Sorption of Radionuclides on Geologic Media – A Literature Survey. I. Fission Products. – SKB Technical Report, TR 83–07, Stockholm.
- Eriksen, T. - Locklund, B. (1987): Radionuclide sorption on granitic drill core material. – SKB Technical Report, TR 87–22, Stockholm.
- Eriksen, T. - Locklund, B. (1989): Radionuclide Sorption on Crushed and Intact Granitic Rock. Volume and Surface Effect. – SKB Technical Report, TR 89–25, Stockholm.
- Ittner, T. - Torstenfeld, B. - Allard, B. (1988): Migration of the Fission Products Strontium, Technetium, Iodine, Cesium, and the Actinides Neptunium, Plutonium, Americium in Granitic Rock. – SKB Technical Report, TR 88–02, Stockholm.
- Torstenfeld, B. - Andersson, K. - Allard, B. (1982): Sorption of Strontium and Cesium on Rocks and Minerals. – Chem. Geology, 36, 123–137.
- Vandergraaf, T. - Abry, D. (1981): Radionuclide Sorption on Drill Core Material from the Canadian Shield. – Nucl. Technol., 57, 399–412.

¹ Ústav geochemie, mineralogie a nerozptýchaných zdrojů,

Přírodovědecká fakulta Univerzity Karlovy, Albertov 6, 128 43 Praha

² Ústav jaderné chemie Akademie věd České republiky, 250 68 Řež u Prahy

REVITALIZACE ÚZEMÍ PO UKONČENÍ TĚŽBY UHLÍ V LOMU CHABAŘOVICE

LAND RECLAMATION AFTER THE CLOSURE OF COAL EXTRACTION IN THE OPEN COAST MINE CHABAŘOVICE

(02-32 Teplice, 02-41 Ústí n. Labem)

Jiří Burda - Zdeněk Hroch

North Bohemia coal basin, Open cast mine, Chabařovice, Land reclamation, Environment

Odborné posouzení revitalizace území po ukončení těžby hnědého uhlí po roce 1996 v lomu Chabařovice bylo zpracováno Českým geologickým ústavem pro potřeby Okresního úřadu Ústí n. Labem na základě vítězství v soutěži o veřejnou zakázku.

Vzhledem k šíři úkolu bylo nutno sestavit řešitelský tým, z jehož složení je patrná řešená problematika.

Vedoucím týmu byl Ing. Zdeněk Hroch, CSc., ČGÚ Praha, a spoluautoři: RNDr. Jiří Burda, ČGÚ Praha – hydrogeologie; RNDr. Eliška Čechová, AZ Consult Ústí n. Labem – inženýrská geologie; Karel Dušek, ČGÚ Praha – geologie, surovinové poměry; Ing. Josef Godány, ČGÚ Praha – báňská geologie, suroviny; Ing. Miloslav Gloser, Vodohospodářské projekty Teplice – hydrologie, vodohospodářské řešení; RNDr. Jan Kněžek, AZ Consult Ústí n. Labem – hydrogeologie; Ing. Jan Kurka, CSc., AZ Consult Ústí n. Labem – geotechnika; Ing. Irena Martinovská, GS Chomutov – suroviny; Ing. Roman Smolík, AZ Consult Ústí n. Labem – geotechnika; Ing. Ivan Svoboda, MINTECH Ústí n. Labem – báňské inženýrství, rekultivace; RNDr. Jan