

# GEOLOGICKÉ PODMÍNKY UKLÁDÁNÍ VYHOŘELÝCH PALIVOVÝCH ČLÁNKŮ JADERNÝCH ELEKTRÁREN

## Experimentální výzkum interakce hydrotermálního roztoku obsahujícího Cs s koutským granitem

### Experimental investigation of interaction of Cs-containing hydrothermal solution with the Kouty granite

MILAN DRÁBEK - IVAN VAVŘÍN

(23-12 Ledeč nad Sázavou)

*Melechov Massif, Waste rock interaction, HLW disposal*

V rámci výzkumu tzv. vzdálených interakcí byla na studijní lokalitě úložiště vysoce aktivních odpadů „melechovský masiv“, experimentálně studována reakce koutského muskovit-biotitického granitu s hydrotermálními roztoky obsahujícími Cs. Experimentální výsledky ukázaly intenzívní reakce mezi roztokem a horninu vedoucí ke vzniku pollucitu a metasomatickému zatlačování živců.

Zabezpečení úložiště vysoce aktivních odpadů proti úniku radionuklidů do biosféry bude zajišťovat multibarirový zabezpečovací systém kombinující inženýrskou a geologickou (přírodní) barieru. Interakce hornin geologické bariery s radionuklidy patří mezi tzv. vzdálené interakce „far-field“.

Při případné migraci geologických fluidů s radionuklidami horninovým masivem, bude docházet k interakci těchto roztoků s horninami tvořícími geologickou barieru úložiště. Charakter reakcí bude dán chemickým složením roztoků, fázovým složením okolních hornin a pT-podmínkami. Pro ocenění bezpečnosti geologické bariéry je nutno předpovědět a pokud možno kvantitativně vyjádřit interakce mezi horninou a geologickými fluidy obsahujícími radionuklid. K tomu je možno přistoupit jednak modelováním pomocí termodynamických dat, jednak experimentálním výzkumem. Oba přístupy se vzájemně doplňují. Příkla-

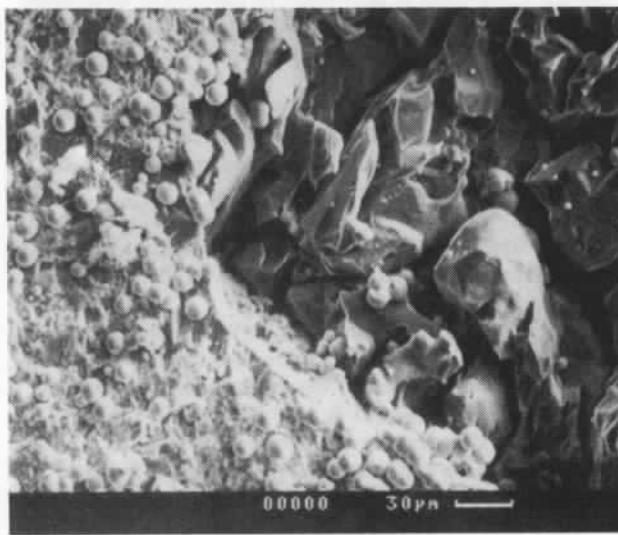
dem experimentálních výzkumů jsou práce McCarthyho et al. (1979), Bastona et al. (1994) a Vandergraaf et al. (1982).

Proto při testování různých výzkumných metod vhodných pro ocenění bezpečnosti úložiště vysoce aktivního odpadu, byla také na výzkumné lokalitě „melechovský masiv“ v rámci studia tzv. vzdálených interakcí, zkoumána interakce hydrotermálních roztoků obsahujících Cs s koutským granitem.

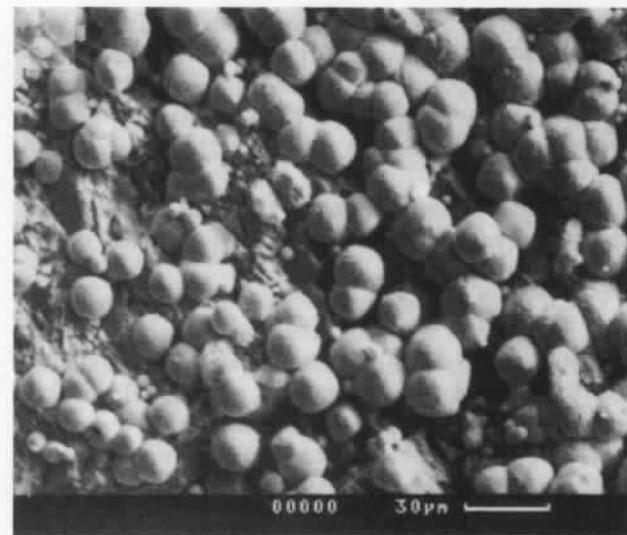
Pro experimentální výzkum byly použity krychličky o objemu cca 1 cm<sup>3</sup>, zhotovené z čerstvého granitu z lomu Březinka. Mineralogické složení a chemismus použitého muskoviticko-biotitického granitu jsou uvedeny v práci Mlčocha et al. (1995).

Granitové krychličky byly zahřívány 504 hod. se 6 ml CsOH v ocelovém autoklávku s teflonovou vystýlkou o objemu 10 ml.

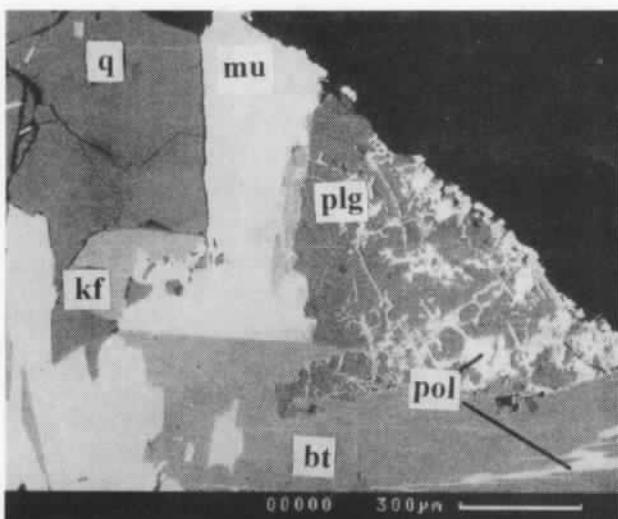
Experimentální podmínky byly zvoleny v rámci parametrů které lze podle literárních údajů v úložišti vysoce aktivního radioaktivního odpadu očekávat. Cs bylo vybráno pro výzkum jako snadno loužitelný prvek, jehož vyluhování a následnou migraci do okolí úložiště lze předpokládat v případě proniknutí vody do úložiště (Relyea et al. 1979, Chapman et al. 1982). Ve vyhořelém palivu je Cs



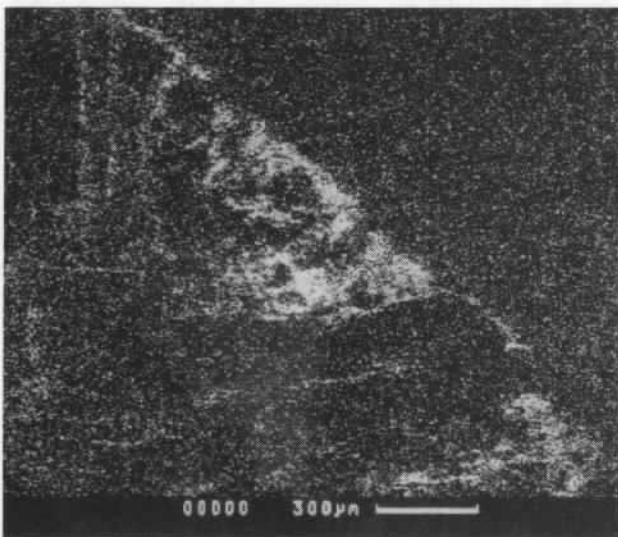
Obr. 1. Silně korodovaný povrch zrna křemene a světle šedý plagioklas s novotvořeným pollucitem. CamScan, BSE



Obr. 2. Kulovité agregáty novotvořeného pollucitu na povrchu plagioklasu. CamScan, BSE



Obr. 3. Příčný řez alterovaným vzorkem granitu se zřetelným metasomatickým zatlačováním plagioklasu žilkovitými agregáty pollucitu. Pollucit také proniká do vzorku podél štěpných trhlinek biotitu a muskovitu. CamScan, BSE  
bt – biotit, mu – muskovit, q – křemen, kf – draselný živec, plg – plagioklas, pol – pollucit



Obr. 4. Dto obr. 3, RTG obraz distribuce Cs

vázané na oxid, proto bylo jako hydrotermální médium použito vodného roztoku CsOH. Podle řady autorů (Chapman 1980, Chapman et al. 1988, NAGRA 1985) může teplota v okolí úložiště značně převýšit 100 °C. Z kinetických důvodů byly proto experimenty provedeny při 150 °C.

Po ukončení experimentu byl zkoumán povrch a řezy vzorkem alterovaného granitu na SEM CamScan s EDS systémem fy Link.

Výsledky provedených experimentů ukazují na intenzívni reakce mezi minerály zkoumaného granitu s hydrotermálním roztokem. Silnou alteraci povrchu jednotlivých minerálů dobře dokumentuje obr. 1, zobrazující silně korodovaný povrch křemene. Cs obsažené v hydrotermálním roztoku reagovalo s uvolněnými prvky za vzniku sekundárního pollucitu, který tvoří kulovité útvary především na povrchu plagioklasu (obr. 2).

Roztoky obsahující Cs pronikly hluboko (0,6 mm) do

vzorku podél intergranulárních, drobných prasklin a štěpných trhlin ve slídách, za současného metasomatického zatlačování stěn. Nejintenzivněji tento proces probíhal v zrnech plagioklasu, kde pollucit tvoří nepravidelné žilkovité metasomatické útvary (obr. 3 a 4). Draselný živec je postižen výrazně méně.

Difuze Cs do jednotlivých minerálních fází a zastupování draslíku Cs, například ve slídách, nebylo dosud sledováno. Orientační experimenty se separovaným biotitem, zahříváným při 110 °C s 0,5 M roztokem CsOH ukázaly, že Cs nevstoupilo do struktury biotitu přestože Cs může v trioktaedrických slídách zastupovat K, jak to ukazují výzkumy Drábka et al. (1995).

Z dosud provedených orientačních experimentů je zřejmé, že pozorované procesy jsou analogické metasomatickým procesům popisovaným v pegmatitech (Černý 1979). Dále lze konstatovat, že hydrotermální roztoky s Cs reagují s granity obdobně jako s bazaltem kde též vzniká pollucit na úkor labradoritu (McCarthy 1979).

Výsledky těchto experimentů lze zobecnit do značné míry na všechny granitoidní horniny. Další experimenty jsou nutné pro kvantifikaci tohoto procesu.

#### Literatura

- Baston, G. M. N. - Berry, J. A. - Brownsword, M. - Cowper, M. M. - Heath, T. G. - Tweed, C. J. (1994): The sorption of uranium and technetium on bentonite, tuff and granodiorite. In: T. Murakami - R. C. Ewing (eds.): Sci. Basis for Nuclear Waste Management, 8, Kyoto, Japan, 989–996.
- Černý, P. (1979): Pollucite and its alteration in geological occurrences and in deep-burial radioactive waste disposal. – Sci. Basis for Nuclear Waste Management, 231–236.
- Drábek, M. - Rieder, M. - Weiss, Z. (1995): Hydrothermal synthesis of Cs-Fe trioctahedral micas. – Geologica Carpathica Clays, 4, 87.
- Chapman, N. A. (1980): Mineralogical and geochemical constraints on maximum admissible repository temperatures, in Undeground disposal of radioactive wastes, vol. 2, IAEA, Vienna, 209–222.
- Chapman, N. A. - McKinley, I. G. - Hill, M. D. (1988): The geological disposal of nuclear waste. – John Wiley & Sons, Chichester, 280 pp.
- Chapman, N. A. - McKinley, I. G. - Savage, D. - West, J. M. (1982): Mechanism of dissolution of radioactive waste storage glasses and caesium migration from a granite repository. In: S. V. Top (ed.): Sci. Basis for Nuclear Waste Management, vol. 6, North Holland, 347–354.
- McCarthy, G. J. - Komarneni, S. - Scheetz, B. E. - White, W. (1979): Hydrothermal reactivity of simulated nuclear waste forms and water-catalysed waste-rock interactions. – Sci. Basis for Nuclear Waste Management, 329–340.
- Mlčoch, B. - Novotný, P. - Schulmannová, B. - Breit, K. (1995): Stručná petrologická a petrochemická charakteristika základních typů granitů melechovského masívu. – MS Čes. geol. úst. Praha.
- Relyea, J. F. - Rai, D. - Serene, R. J. (1979): Interaction of waste radionuclides with geomedia: Program approach and progress. – Sci. Basis for Nuclear Waste Management, 379–394.
- Vandergraaf, T. T. - Abry, D. R. M. - Davis, K. E. (1982): The use of autoradiography in determining the distribution of radionuclides in the thin sections of plutonic rocks from the Canadian Shield., Chem. Geol., 36, 139–154.
- NAGRA (1985): Project Gewähr 1985, 8, NAGRA NGB-85-09, NAGRA Baden, Switzerland.