Migrace uranu a dalších stopových prvků v bedřichovském vodárenském tunelu v Jizerských horách

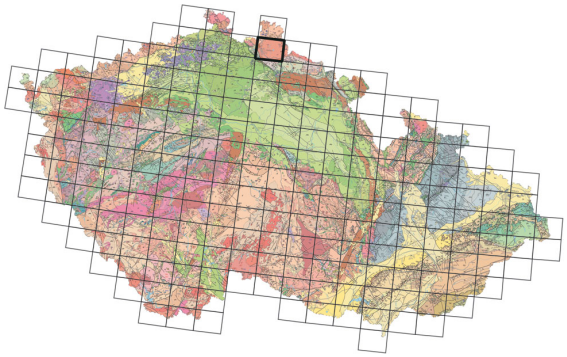
Migration of uranium and associated trace elements in the Bedřichov water-supply tunnel in the Jizerské hory Mts.

Josef Klomínský

Česká geologická služba, Klárov 3, 118 21 Praha 1;
josef.klominsky@geology.cz

Please cite this article as: Klomínský, J. (2017): Migration of uranium and associated trace elements in the Bedřichov water-supply tunnel in the Jizerské hory Mts. – Geoscience Research Reports, 50, 299–303. (in Czech)

Key words: *Krkonoše-Jizera Composite Massif, Jizera Granite, Bedřichov water-supply tunnel, hydrochemistry of groundwater, uranium migration, schröckingerite*



(03-14 Liberec)

Summary: The Bedřichov water-supply tunnel in the Krkonoše-Jizera Composite Massif is important due to its unusual length (6 km) and the technical attributes of the method of construction (a combination of the tunnel boring method – TBM – and drill and blast technology). The tunnel walls are particularly appropriate for the long-term monitoring of the rock environment (Fig. 1). Trace element parameters in groundwater allow modelling of the evolution of both far-field and excavation-damaged zones (EDZ) for follow-up studies of underground radioactive waste repositories. The migration process of uranium, one of the major radionuclide carriers, was tested by analysing groundwater trace elements and measuring the flow rates of groundwater springs in the Bedřichov water-supply tunnel (section A). Surface water percolating through Jizera Granite in the Krkonoše-Jizera Composite Massif, along fractures up to a depth of 150 m in the tunnel, becomes enriched with a number of mobile chemical elements and compounds generated by granite oxidation. Ca-HCO_3SO_4 type groundwater in the Bedřichov tunnel is characterized by average mineralization of 117.51 mg/l with pH about 7.5 and temperature between 5 to 7 °C (Němeček 1982, Klomínský et al. 2008).

The samples were taken from six different groundwater spring sites (Fig. 2) – three dripping ones (V1, V2-1, and V3), three with continual fluxes (V4-1, V5, V6) and from one central drain collecting all outflows from the tunnel in section A (V8). Inflow to the groundwater sample sites was measured in ml/s. A sample from the Josefův Důl water reservoir was used for estimation of the uranium and associated trace element content in the 22 600 000 m^3 of the dam water. All samples were analysed for 72 chemical elements (Hokr et al. 2010). Results over detection limits are shown in Table 1.

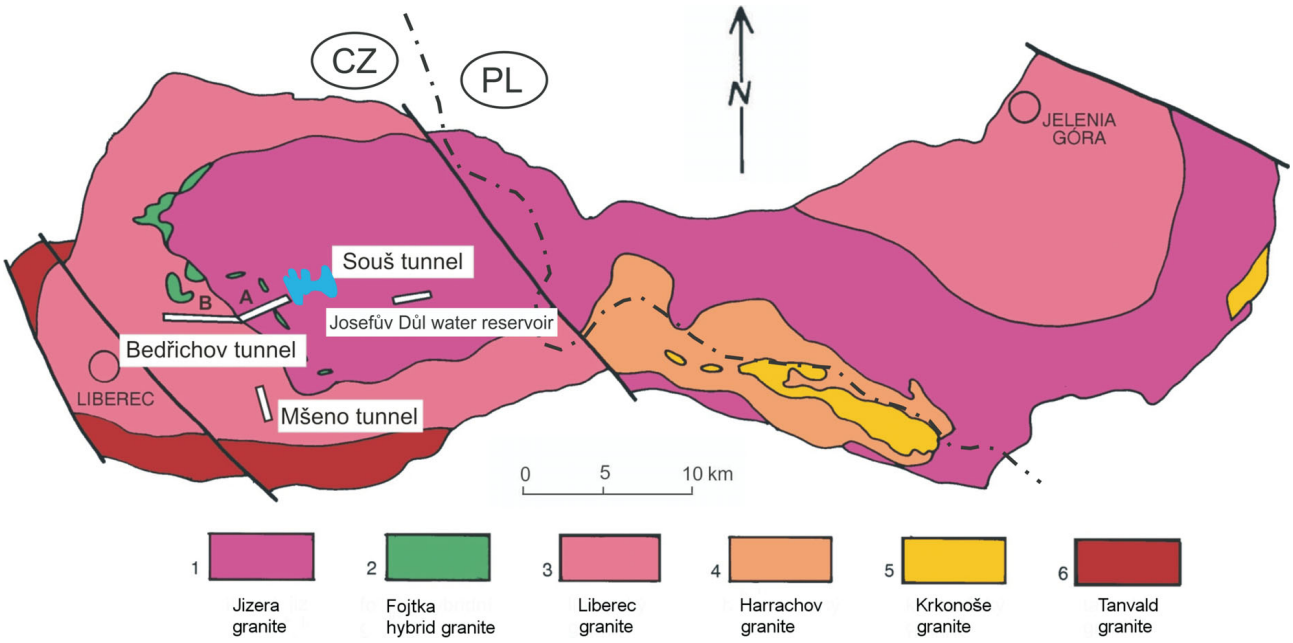
Higher uranium concentrations have been registered in water springs from the central part of the tunnel (V2 and V3), where the overlying granite thickness is the highest (Fig. 3). The longer retention period results in a higher mineral saturation. Balvín et al. (2012) estimated the transit time of the groundwater inflow in the Bedřichov water-supply tunnel, according to the ^{2}H and ^{18}O isotopes method, at 24.9 to 30.9 months.

Occurrences of uranyl-sulphate-carbonate (schröckingerite) on the Bedřichov tunnel walls correspond with places with intense evaporation, e.g. in places with abundant microfractures in the EDZ (Excavation Damage Zone) tunnel section A constructed by classic mining drill and blast technology (Fig. 4). The total amount of uranium released from the Jizera Granite during 30 years of operation of the Bedřichov tunnel (section A) is estimated to be about 40 kilograms, including 2.5 kg of uranium bonded in schröckingerite on the tunnel walls.

The migration of uranium from the Jizera Granite in and out of the Bedřichov water-supply tunnel (section A) represents a continuous groundwater leaching process over the life of the tunnel. The existence of the similar environment over whole area of the Krkonoše-Jizera Composite Massif is indicated by the trace element content in water from the Josefův Důl water reservoir (Table 1).

Vodárenské tunely – soušský, mšenský a bedřichovský – v Jizerských horách patří mezi unikátní geologické profily podzemí krkonošsko-jizerského kompozitního masivu (obr. 1). Bedřichovský vodárenský tunel tvoří úsek A a B pro vodovodní potrubí z přehrady Josefův Důl do úpravny pitné vody v Bedřichově (délka tunelu A 2500 m) a pro upravenou vodu do vodojemu na okraji Liberce (délka tunelu B 4050 m). Tunel A v délce 883 m od portálu vodárny v Bedřichově je proveden nedestruktivní technologií TBM, dalších 1646 m destruktivní (střílenou) ražbou (Klomínský –

DOI 10.3140/zpravy.geol.2017.29



Obr. 1. Geologická mapa krkonošsko-jizerského kompozitního masivu a vodárenských tunelů.
Fig. 1. Geological map of the Krkonoše-Jizera Composite Massif and the water-supply tunnels.

Woller 2010). Úsek tunelu A je ražen v jizerském granitu a úsek B v libereckém granitu okolo 150–200 m pod povrchem. Tyto horniny patří do skupiny granitů s vysokou tepelnou produkcí (High Heat Production – HHP), vyvolanou zvýšenými obsahy radionuklidů obsažených hlavně v uranu, thoriu a draslíku. V jizerském biotitickém monzogranitu je průměrný obsah 8–10 ppm uranu, 30 ppm thoria a 4,5 % K_2O.

Bedřichovský vodárenský tunel A při kruhovém profilu 3,6 m reprezentuje plochu jeho interiéru cca 25 000 m^2. Tato plocha je zároveň povrchem jizerského granitu poškozeného ražbou tunelu (EDZ). Poškození granitu se projevuje výskytem značného množství často otevřených trhlin a mikrotrhlin vzniklých během ražby tunelu. Zejména v úseku raženém destruktivní (střílenou) ražbou se na stěnách tunelu A hojně vyskytují recentní precipitáty uranonosných sekundárních minerálů (Klomínský et al. 2013).

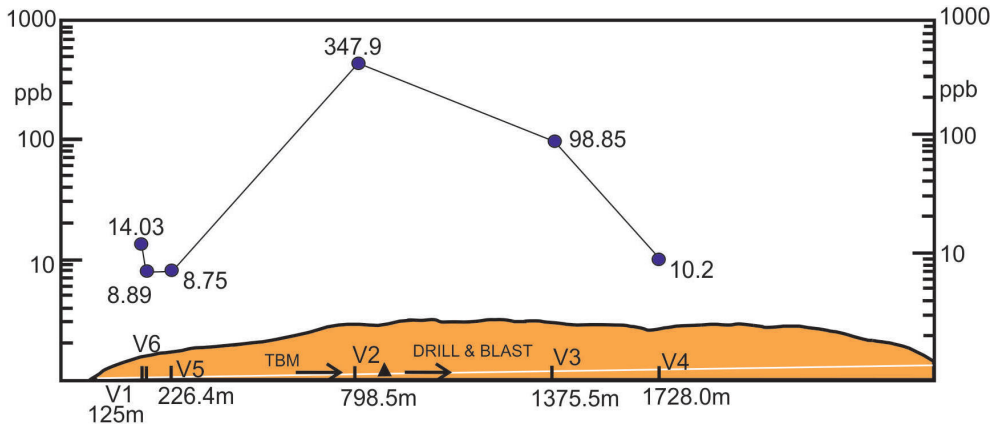
Příklad migrace jednoho z hlavních nositelů radionuklidů – uranu – byl zkoumán v bedřichovském vodárenském tunelu v úseku A pomocí geochemických analýz a měřením vydatnosti pramenů podzemní vody, pronikajících do tunelu. Cestou z povrchu do bedřichovského vodárenského tunelu A tato voda přijímá řadu chemických prvků a sloučenin mobilizovaných během procesu oxidace okolního granitu. Vzhledem k hloubce tunelu jen kolem 100–150 m pod povrchem je tunel v celém profilu nasycen podzemní vodou, prostupující jednak puklinovou sítí vlastního granitu a jednak trhlinami indukovanými jeho ražbou (Klomínský et al. 2005 a 2008). Tato voda se objevuje na stěnách tunelu v podobě jednotlivých pramenů o velmi rozdílné vydatnosti, zejména podél výrazných tektonických struktur vyplněných horninovými a křemen-karbonátovými žílami (obr. 2). Z analýz podzemní vody z různých míst bedřichovského vodárenského tunelu A provedených v roce 1981 (Němeček 1982, Klomínský et al. 2005) vyplývá její nízká průměrná mineralizace 117,51 mg/l. Základní je chemický typ podzemní vody s převahou iontů vápníku, síranů a hydrogen-uhličitanu – Ca-HCO_3SO_4 s přechody do typů s podílem Na nebo SiO_2 (CaNa-HCO_3SO_4, Ca-HCO_3SO_4-SiO_2). Podzemní vody mají pH neutrální, kolem 7,5, a teplotu mezi 5–7 °C.

Metodika

V srpnu 2009 byla odebrána série vzorků z podzemních pramenů (V1, V2, V3, V4, V5, V6) vyvěrajících ve stěnách tunelu A (obr. 2), z tunelové drenáže podzemní vody (V8) u jz. portálu bedřichovského tunelu A a vzorek vody z Josefodolské vodní nádrže. Ve všech vzorcích vody byly analyzovány obsahy 72 stopových i hlavních prvků (Hokr et al. 2010). Analýzy podzemní vody byly provedeny v Acme Analytical Laboratires ve Vancouveru v Kanadě následujícími metodami: fluor elektrodou, alkalinita titrací k pH 4,5, anionty pomocí chromatografie a stopové prvky ICP-MS. Výsledky analýz překračující detekční limit analytických metod jsou uvedeny v tab. 1.

Výsledky

Zvýšená variabilita obsahů chemických prvků v závislosti na vydatnosti jednotlivých pramenů podzemní vody v bedřichovském tunelu byla zjištěna u řady prvků, zejména u uranu a fluoru. Zvýšené obsahy vybraných prvků jsou ve vodě z pramenů V2 a V3 nacházejících se ve střední části tunelu, kde mocnost granitového nadloží je největší (obr. 2). U těchto dvou pramenů je cesta i retence podzemní



Obr. 2. Obsahy uranu v podzemních pramenech v bedřichovském vodárenském tunelu v úseku A.
Fig. 2. Uranium content in the groundwater springs in the Bedřichov water-supply tunnel (section A).

Tabulka 1. Chemické složení pramenů podzemní vody (V1–6), celkového výtoku podzemní vody z bedřichovského tunelu, úseku A (V8) a vody z vodní nádrže Josefův Důl
Table 1. Chemical composition of the groundwater springs (V1–6), total groundwater outflow (V8) from the Bedřichov water-supply tunnel (section A) and chemistry of the stream water from the Josefův Důl water reservoir

	Sample numbers	V1	V2-1	V4	V5	V3	V6	V8	JDP
	Distance from SW tunnel A portal	125 m	798.5 m	1728 m	226.4 m	1375.5 m	142 m	SW portal of the tunnel A	Josefův Důl water reservoir
	Outflow (ml/s)	0.005	0.006	0.008	12.93	3.04	11.85	1641	
F	ppb	556	1970	730	610	1500	330	350	100
ALK	$CaCO_3$/l	50	44	38	42	73	32	35	3.3
Cl	ppm	4.0	1.6	1.5	1.3	1.8	3.6	1.6	0.9
SO_4	ppm	15.7	13.5	23.6	17.8	25.1	15.7	15.4	10.6
Al	ppb	3	7	1	25	2	16	44	301
As	ppb	<0.5	19.6	2	0.6	26.8	<0.05	1.1	0.9
B	ppb	10	<5	<5	<5	14	11	9	< 5
Ba	ppb	0.75	0.61	0.55	1.22	0.78	0.71	2.26	10.13
Ca	ppb	21740	20357	19262	23546	23785	16142	14614	3221
Cs	ppb	0.87	2.19	1.06	1.25	1.16	0.93	0.66	0.07
K	ppb	1028	212	811	790	217	949	1429	389
Li	ppb	4.50	13.80	13.70	7.90	20.60	4.90	8.80	1.50
Mg	ppb	3064	1186	2063	2174	246	2274	1653	790
Mn	ppb	0.21	0.36	0.06	0.14	0.14	0.06	0.32	48.46
Mo	ppb	0.7	16.0	0.7	1.1	11.8	0.2	0.7	<0.1
Na	ppb	4562	11696	4325	4149	10637	3938	4213	1994
Rb	ppb	3.72	1.56	2.47	3.60	1.41	3.51	3.32	2.07
S	ppm	5	4	7	5	9	6	6	4
Si	ppb	7275	6798	8017	7200	5990	6684	6832	3831
Sr	ppb	35.14	87.23	35.45	51.60	98.49	31.03	54.31	22.85
Th	ppb	<0.05	<0.05	<0.05	0.06	<0.05	<0.05	<0.05	0.17
U	ppb	14.03	347.90	10.20	8.75	95.85	8.89	16.71	0.41
W	ppb	0.04	4.93	0.20	0.09	6.66	0.04	0.48	<0.02
Zn	ppb	0.9	2.1	0.6	2.7	5.8	<0.5	1.9	4.3

vody pravděpodobně nejdelší a tím i stupeň mineralizace uvedenými prvky největší. Čím podzemní voda migruje pomaleji a na větší vzdálenost, tím se více obohacuje uranem. Balvín et al. (2012) odhadují podle měření koncentrací deuteria ^{2}H a izotopu kyslíku ^{18}O dobu potřebnou k transportu povrchové vody podél puklin v jizerském granitu do bedřichovského vodárenského tunelu na dobu v rozmezí 24,9–30,9 měsíců.

Obr. 3. Pramen podzemní vody V1 v severozápadní stěně bedřichovského vodárenského tunelu (úsek A).
Fig. 3. Groundwater spring V1 in northwestern wall of the Bedřichov water-supply tunnel (section A).

Jizerský granit je v rozsahu zóny narušené destruktivní ražbou tunelu (EDZ) soustavně ochuzován o primární obsah uranu jednak loužením prosakující podzemní vodou a jednak vzdušnou vlhkosti, dosahující v tunelu stabilně hodnot 95–99 %. Tato vlhkost společně s kapilární vodou v novotvořených trhlinách granitu transportuje rozpustné sloučeniny uranu – uranVI jako $(UO_2)^{2+}$ – na stěny tunelu, kde při styku s CO_2 obsaženým ve vzduchu a vodě vzniká novotvořený minerál schröckingerit (ve vodě rozpustný karbonát uranu). Mobilizovaný uran potřebný pro vznik recentního uranyl-sulfát-karbonátu (schröckingeritu) vzniká v prostředí zvýšeného elektrochemického potenciálu rozkladem akcesorických minerálů obsahujících U, např. zjištěného thoritu, uraninitu a metamiktního allanitu (Vrána et al. 2011). Podle Vrány et al. (2012) analyzované produkty přeměny allanitu v jizerském granitu obsahují uran v koncentracích < 0,06–0,18 hmot. % UO_2. Krystalky schröckingeritu společně s povlaky uranem obohaceného kalcitu a bílého opálu pokrývají téměř výhradně stěny tunelu A konstruovaného destruktivním typem ražby do výšky 1 m od jeho podlahy (Klomínský et al. 2005, 2008). Množství tímto způsobem vysráženého uranu na stěny tunelu bylo odhadnuto na nejméně 2,5 kg za dobu existence tunelu (Klomínský et al. 2008, 2013).

Odhad množství vylouženého uranu z jizerského granitu v nadloží bedřichovského vodárenského tunelu může dosahovat až 40 kg (podle obsahu uranu v podzemní vodě drenáže tunelu a množství uranu vykrystalizovaného na jeho stěnách v podobě minerálu schröckingeritu; Klomínský et al. 2013). Příklad migrace uranu z jizerského granitu v krkonošsko-jizerském kompozitním masivu reprezentuje nepřetržitý proces vyluhování a migrace uranu v transportním mediu podzemní vody jak do podzemních prostor bedřichovského vodárenského tunelu, tak i z tohoto tunelu do řečiště Rýnovické Nisy během celého období existence tunelu.

Závěr

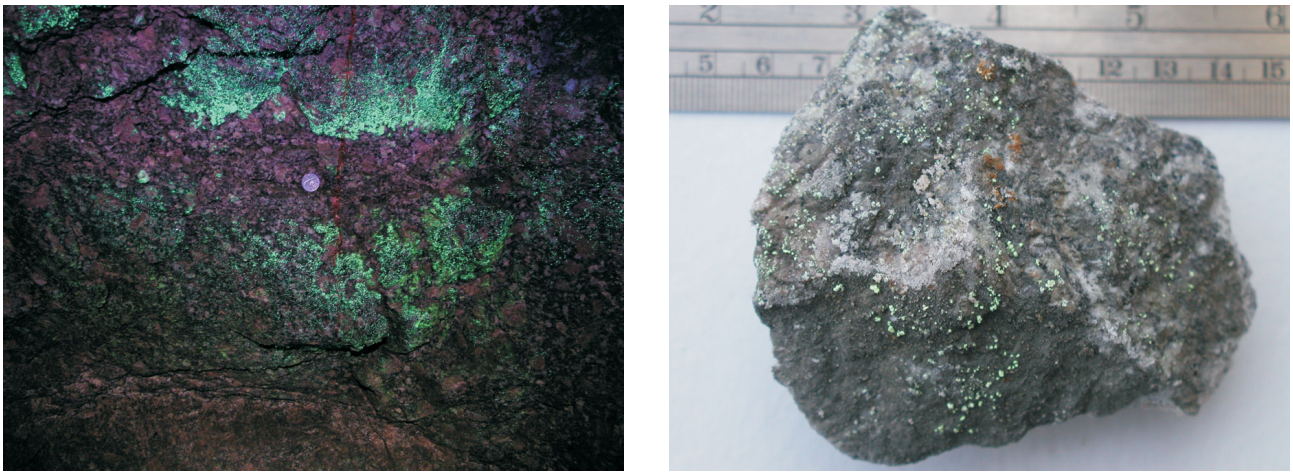
Podzemní voda se v bedřichovském tunelu objevuje jednak v podobě jednotlivých pramenů o velmi rozdílné vydatnosti, jednak jako plošné ronění po stěnách tunelu z trhlin aktivovaných jeho ražbou v jizerském granitu (Klomínský et al. 2008). Tento granit je v rozsahu (EDZ) zóny narušené ražbou tunelu soustavně ochuzován o obsah uranu v akcesorických minerálech loužením prosakující oxidovanou podzemní vodou. Účinkem kyslíku dochází k oxidaci U^{IV} na U^{VI} a vytvoření uranylového iontu $(UO_2)^{2+}$, který v prostředí s CO_2 tvoří stabilní uranyltrikarbonátový komplex $[UO_2(CO_3)_3]^{4-}$, dobře rozpustný ve vodě. Odparem skalní vlhkosti na stěnách tunelu následkem intenzivní výměny vzduchu při větrání tunelu (vzdušná vlhkost v tunelu je 95–99 %) dochází ke koncentraci látek ve vodě obsažených a posléze až ke krystalizaci schröckingeritu nebo bílých povlaků tvořených střídajícími se vrstvičkami uranonosného opálu a uranonosného kalcitu (Klomínský et al. 2013).

Novotvořené minerály na stěnách bedřichovského tunelu a přítomnost uranu v podzemní vodě vytékající z tunelu do povrchové vodoteče jsou dokladem procesu nepřetržitého vyluhování uranu a dalších chemických elementů podzemní vodou, prosakující granity krkonošsko-jizerského kompozitního masivu. Pukliny vzniklé nebo aktivované před téměř 30 lety při jeho ražbě způsobily vyšší intenzitu těchto procesů.

Uvolňování uranu z akcesorických minerálů granitu a jeho nová mobilizace ve formě schröckingeritu na stěnách tunelu je novým poznatkem o pohybu radionuklidů a dalších chemických prvků, který je třeba očekávat při budování a provozu podzemních úložišť radioaktivních odpadů v granitových masivech zejména s nadklarkovým obsahem uranu. Tento proces migrace uranu i dalších chemických prvků pravděpodobně probíhá i na celé ploše krkonošsko-jizerského kompozitního masivu. Svědčí o tom obsah uranu a dalších chemických prvků ve vodě ve vodní nádrži Josefův Důl, ležící v jizerském granitu v západním segmentu krkonošsko-jizerského kompozitního masivu (obr. 1).

Vodní nádrž Josefův Důl při objemu 22 600 000 m^3 vody tak může například obsahovat při obsahu 0,41 ppb uranu 10 kg uranu, při obsahu 100 ppb F 2,26 t fluoru, při obsahu 1,5 ppb Li 34 kg lithia a při obsahu 301 ppb Al 6,8 t hliníku (tab. 1).

Ukázka odhadu rychlosti migrace a objemu látek (U, Li, F, Al) transportovaných z granitů krkonošsko-jizerského



Obr. 4. Jizerský granit v UV světle s povlakem schröckingeritu (zelený) v bedřichovském vodárenském tunelu (úsek A) vlevo. Krystaly zeleného schröckingeritu a povlaky bílého uranonosného opálu z bedřichovského vodárenského tunelu (úsek A) vpravo.
Fig. 4. Jizera Granite in UV light with schröckingerite crystals (left), Bedřichov water-supply tunnel (section A), left. Schröckingerite crystals (green) and opal coatings (white) from the Bedřichov water-supply tunnel (section A), right.

kompozitního masivu může vysvětlit jejich hromadění v sedimentech okolních pánevních depresí.

Poděkování. Výzkum byl podpořen Správou úložišť radioaktivních odpadů v rámci projektu Technické univerzity v Liberci „Tunel Bedřichov – charakterizace granitoidů in situ“. Autor děkuje recenzentům Miloši Renému, Prokopu Závadovi a editorce Veronice Štědré za cenné a podnětné připomínky k článku.

Literatura

BALVÍN, A. – HOKR, M. – ŠANDA, M. – VITVAR, T. – RÁLEK, P. (2012): Transit time estimation of tunnel inflow in fractured granites. – Geophys. Res. Abstracts Vol. 14, EGU2012-9809-6, EGU General Assembly 2012.

HOKR, M. et al. (2010): Tunel Bedřichov – charakterizace granitoidů in situ. Závěrečná zpráva, 116 str. – MS Správa úložišť radioaktivních odpadů, Praha, Technická univerzita, Liberec.

KLOMÍNSKÝ, J. et al. (2005): Geologická a strukturní charakteristika granitoidů z vodárenských tunelů v Jizerských horách – etapa 2004–2005 (multidisciplinární výzkum). 159 str. – MS Čes. geol. služba. Praha.

KLOMÍNSKÝ, J. et al. (2008): Studium dynamiky puklinové sítě granitoidů ve vodárenském tunelu Bedřichov v Jizerských horách – etapa 2006–2008. 171 str. – MS Čes. geol. služba. Praha.

KLOMÍNSKÝ, J. – VESELOVSKÝ, F. – MALEC, J. (2013): Novotvořené minerály v bedřichovském vodárenském tunelu v Jizerských horách – příklad uvolňování uranu z jizerského granitu. – Zpr. geol. Výzk. v Roce 2012, 214–219.

KLOMÍNSKÝ, J. – WOLLER, F., ed. (2010): Geological studies in the Bedřichov water supply tunnel. Technical report 02/2010. 104 str. – Spr. úložišť radioaktiv. odpadů, Čes. geol. služba. Praha.

NĚMEČEK, V. (1982): VD Josefův Důl – štola, zpráva o geologicko-průzkumných pracích. Duben 1982. – Staveb. geol., n. p. Praha.

VRÁNA, S. – SULOVSKÝ, P. – SCHOVÁNEK, P. (2012): Změny chemismu allanitu-(Ce) vlivem alterace s ohledem na uvolňování uranu do horninového prostředí biotitického monzogranitu u Bedřichova. – Zpr. geol. Výzk. v Roce 2011, 202–207.