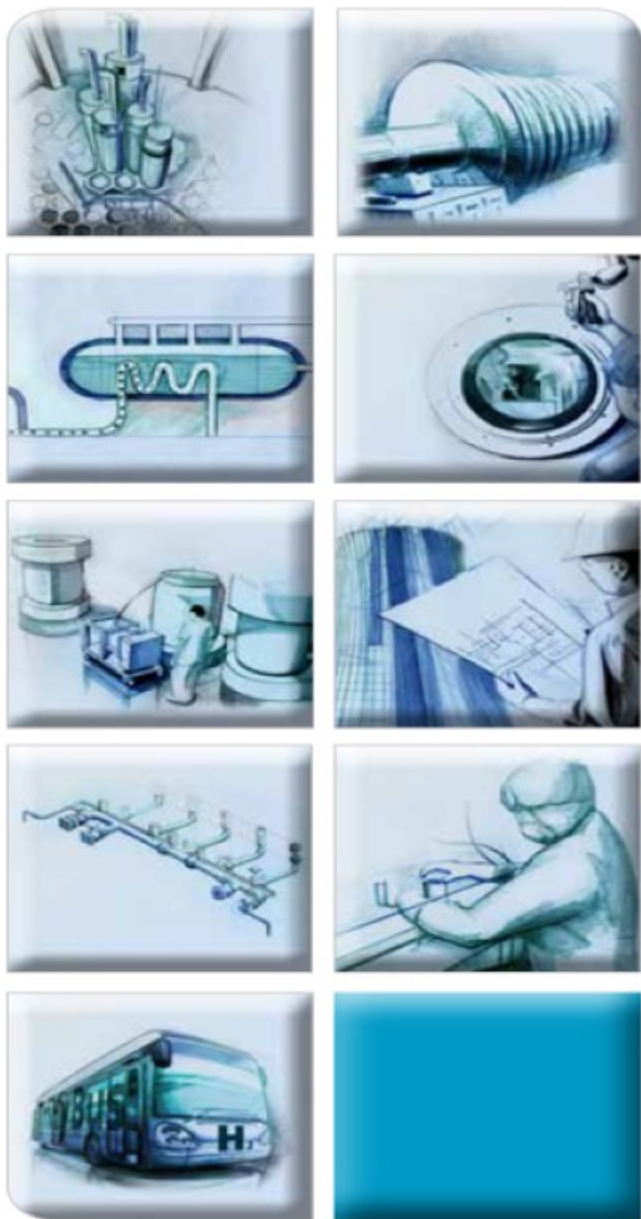




Výzkum transportních procesů geologických bariér

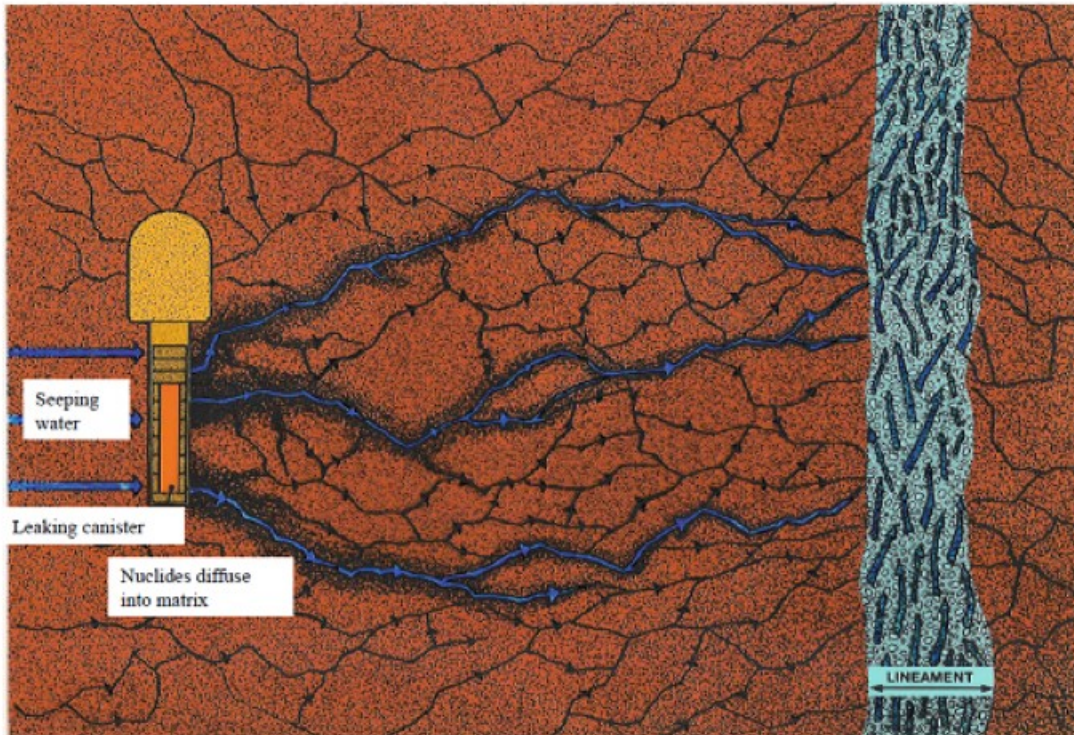
Milan Zuna

Václava Havlová, Filip Jankovský

SSFC 2020

Praha, 29.9. – 30.9. 2020

Proč se tím zabýváme...



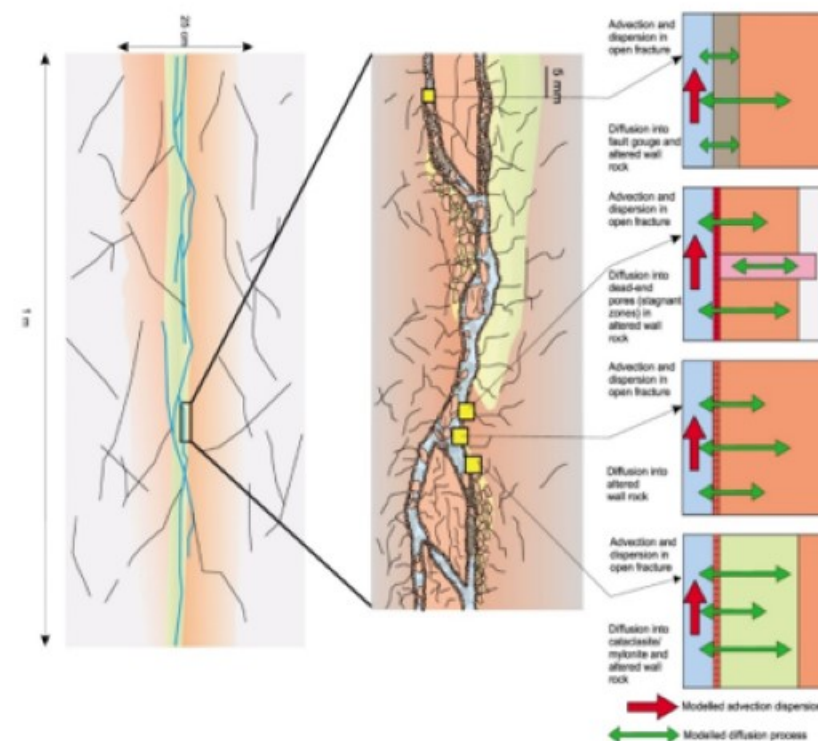
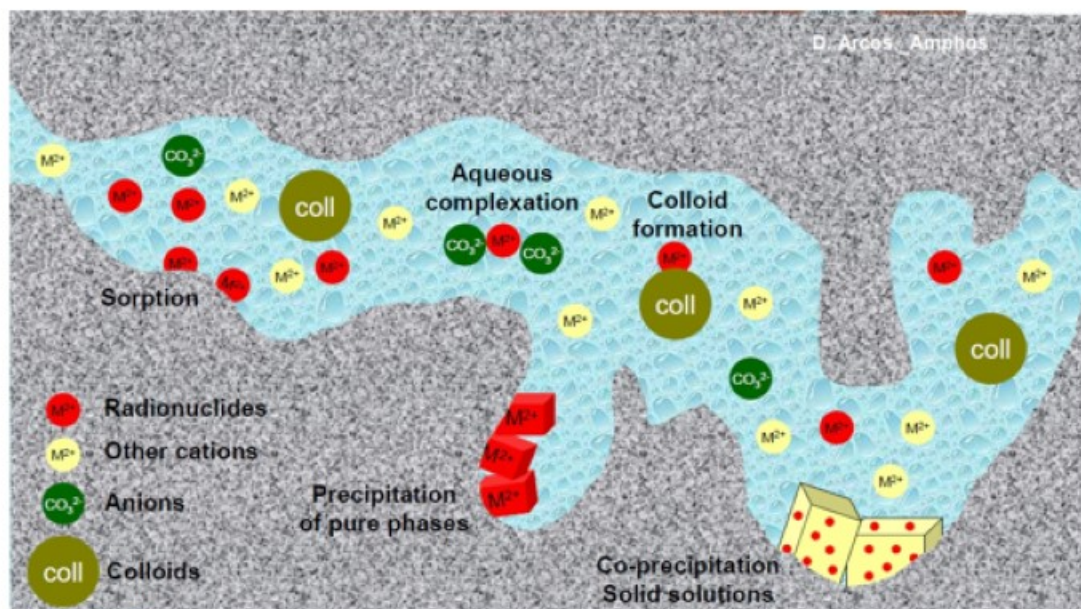
- Multibariérový systém – obal/bentonit/horninové prostředí
- nutná dobrá znalost celého systému a jeho procesů
- relevantní data je možné získat pouze kombinací experimentálních prací a následného modelování
- **Výsledky → modelování bezpečnosti HÚ**

➔ **Studium v laboratoři i reálných podmínkách**

Migrace radionuklidů v horninovém prostředí

Závislá především na:

- rozpustnosti radionuklidu v podzemní vodě
- transportu RN/koloidů v puklinovém systému - advekce
- difúzi do horninové matrice
- sorpci na horninovou matici/ puklinovou výplň (srážení)



Migrace RN v krystalických horninách

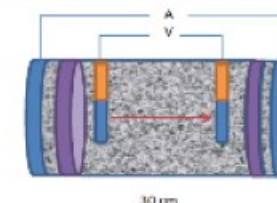
- Puklinová síť - ADVEKCE
- Horninová matrice - DIFUZE
- Advekčně/disperzní model

Laboratorní experimenty

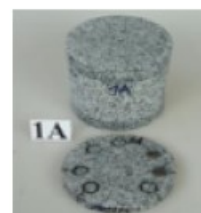
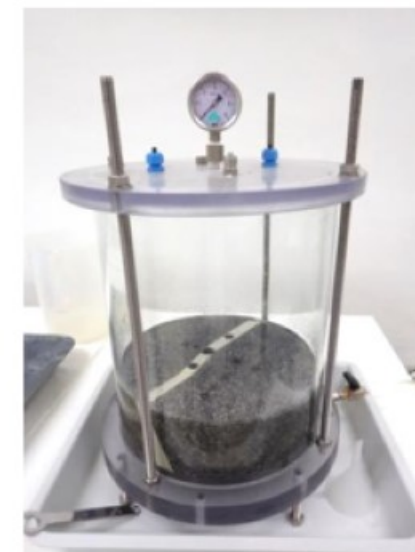
Charakterizace horniny – transportní parametry



- Vzorky horniny **různých měřítek** - malé cm/střední měřítko dm
- Difúze – malé (5 cm) a střední měřítko (30 cm), elektromigrace, sorpce, migrace (puklina), propustnost
- **Charakterizace vzorků:** porozita, Hg. porozimetrie, petrologie – mineralogie, pórového prostoru – X ray-CT, konfokální mikroskopie, BET, CEC
- využití radionuklidů i neaktivních stopovačů



- *ovlivnění předúpravou – řezání, mletí apod*
- *důraz na pečlivou předúpravu vzorků*
- *omezená velikost => reprezentativnost*



Migrace radionuklidů v horninách: vzorky z kandidátních lokalit



■ 9 potenciálních lokalit



Hrádek



Horka



Hrádek



Bukov

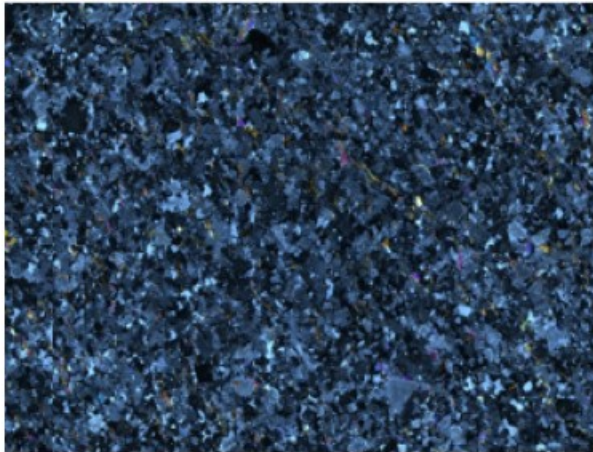
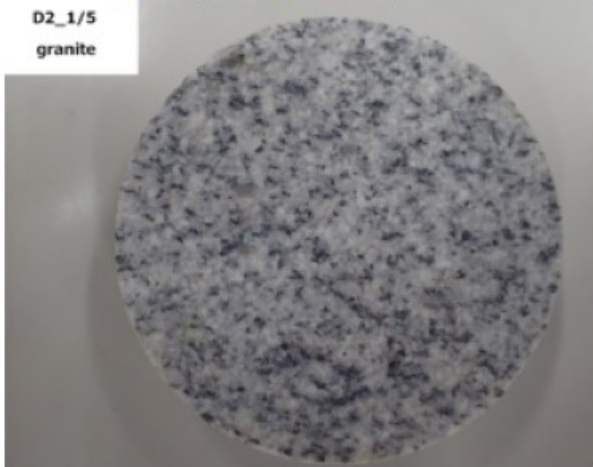


Čihadlo

Magmatické horniny (granity, syenit)

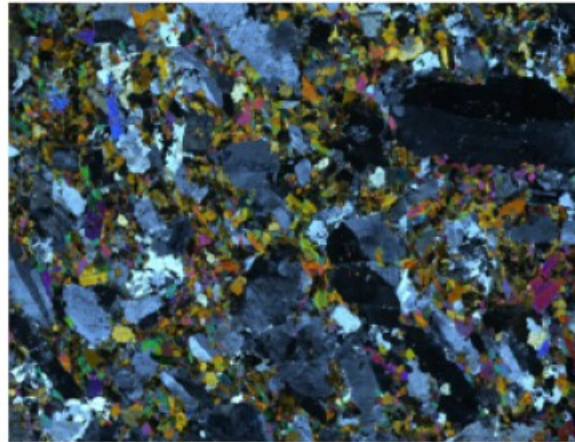
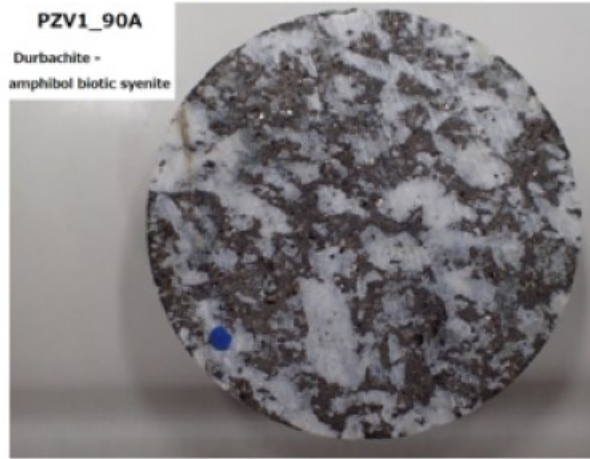
D2 (Čihadlo)

D2_1/5
granite



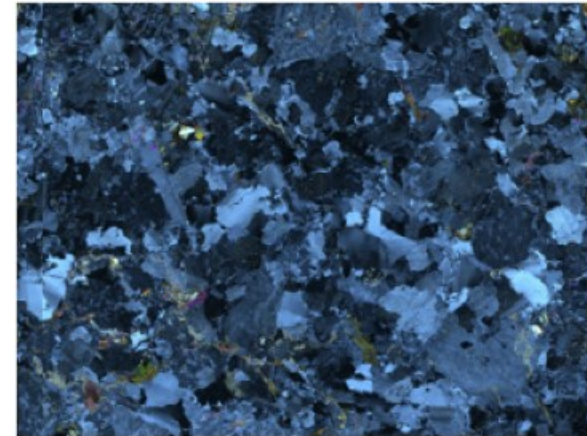
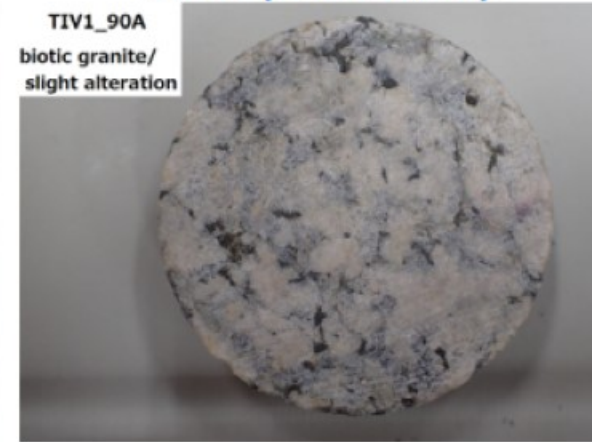
PZV1 (Horka)

PZV1_90A
Durbachite -
amphibol biotite syenite



TIV1 (Čertovka)

TIV1_90A
biotite granite/
slight alteration



Optický mikroskop, zkřížené nikoly, E. Sasao (JAEA)



5 cm

Migmatit



5 cm

Rula



5 cm

Amfibolit



5 cm

Amfibolizovaný
migmatit



5 cm

Migmatizovaný
amfibolit

Difúzní experimenty s horninovými vzorky

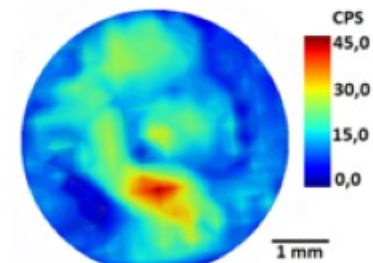
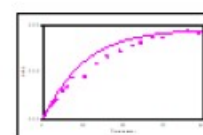
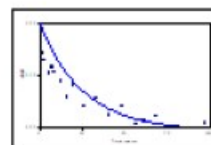
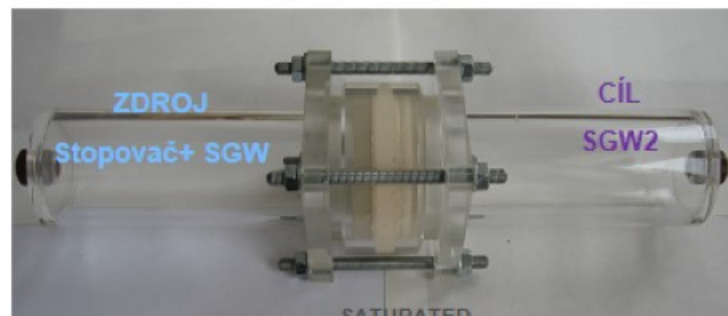


Difúzní cely pro granit

- **Efektivní difúzní koeficient**
 D_e (m²/s) na základě Fickova zákon

$$F_{i,x} = -D_x \left(\frac{\partial c_i}{\partial x} \right)_{y,z}$$

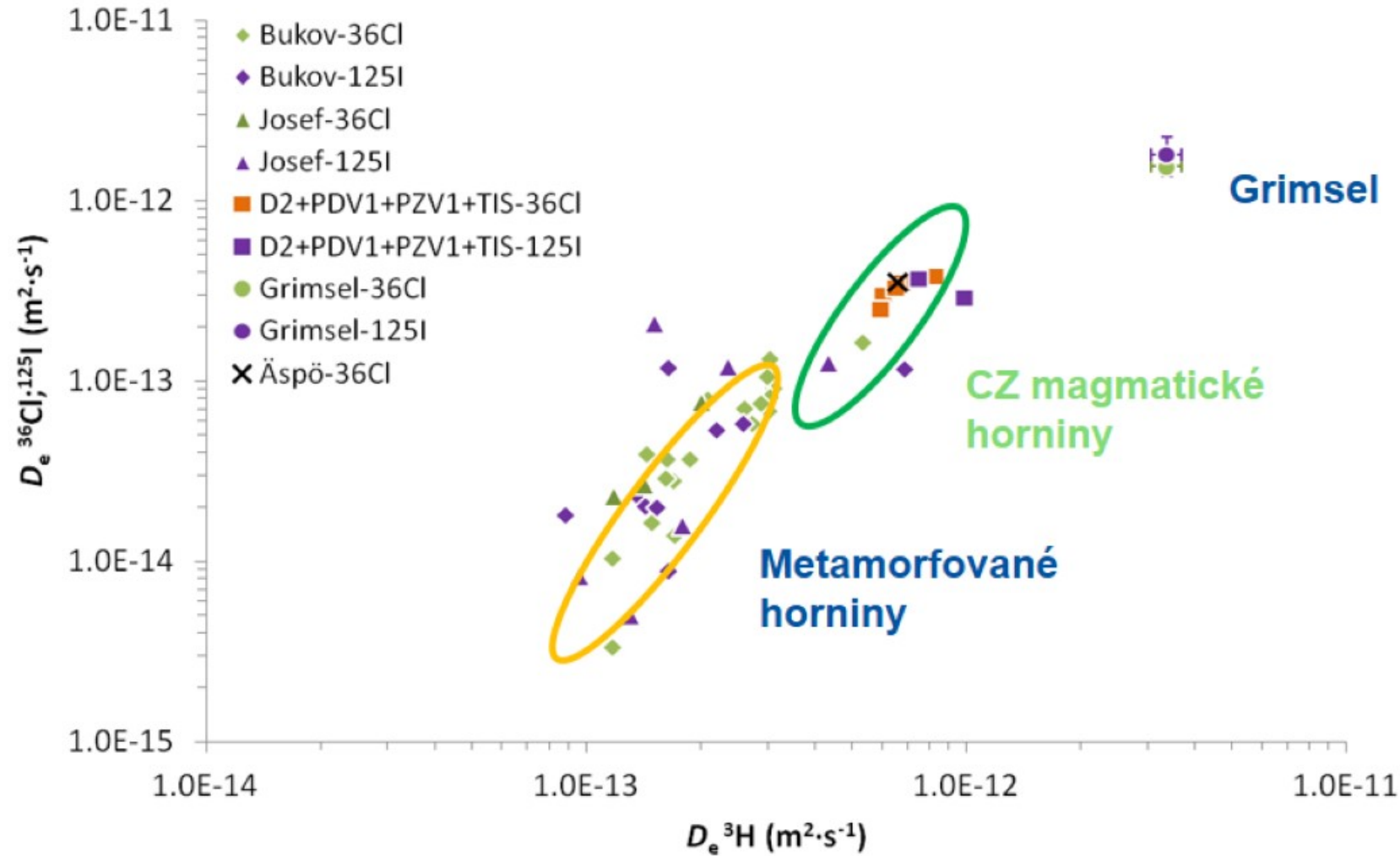
- difúzní experimenty s různými stopovači (³H, ³⁶Cl, ¹²⁵I)
- měření aktivity v rezervoárech - průniková křivka



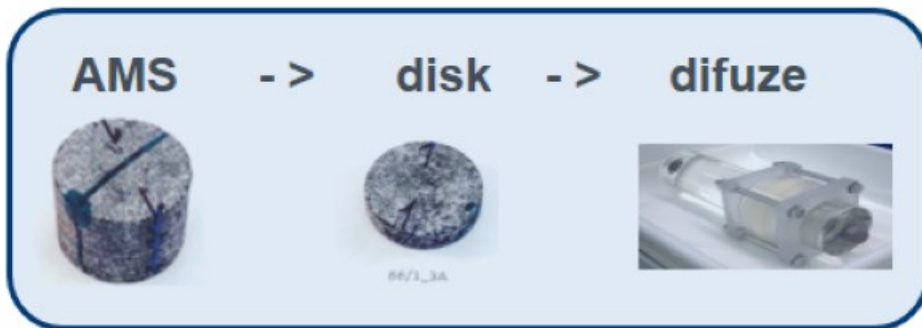
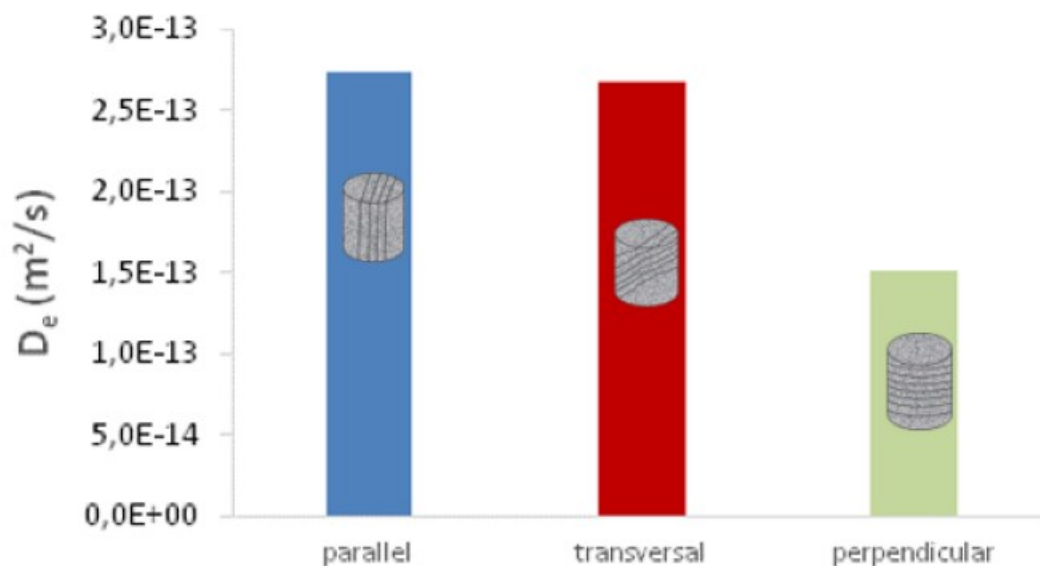
- **Difuze ovlivněna zejména:**

- porozitou (~ 0,1 – 0,5%)
- charakterem pórové sítě
- mineralogické složení
- speciací RN

Rozsahy D_e (m^2/s) pro anionty pro krystalinické horniny ČR (^3H , ^{36}Cl , ^{125}I)

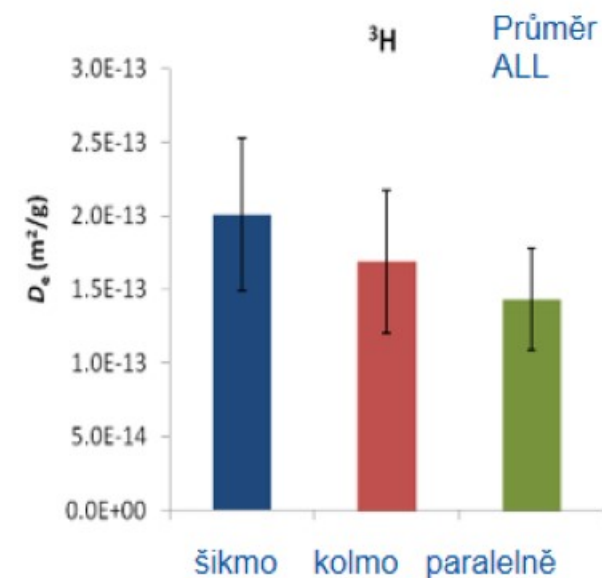


$D_e (^3\text{H})$ v závislosti orientaci magnetické foliace: Migmatit (PVP Bukov)

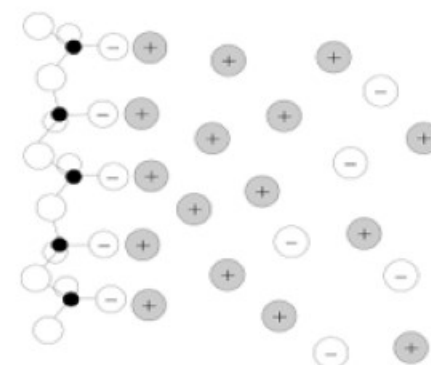
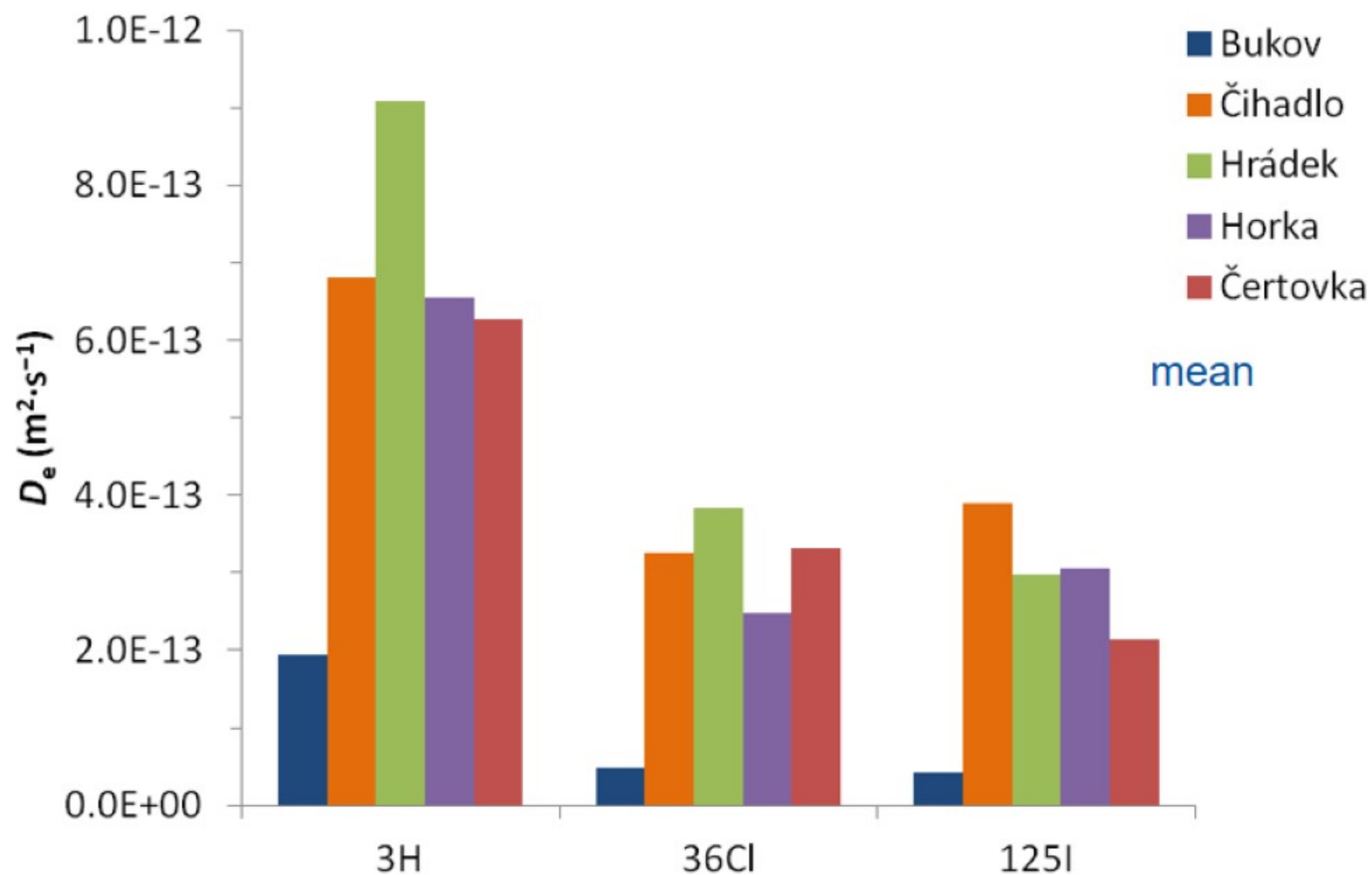


^3H	mean D_e (m ² /s)
paralelní	2,74E-13
Šikmé	2,67E-13
kolmo	1,52E-13

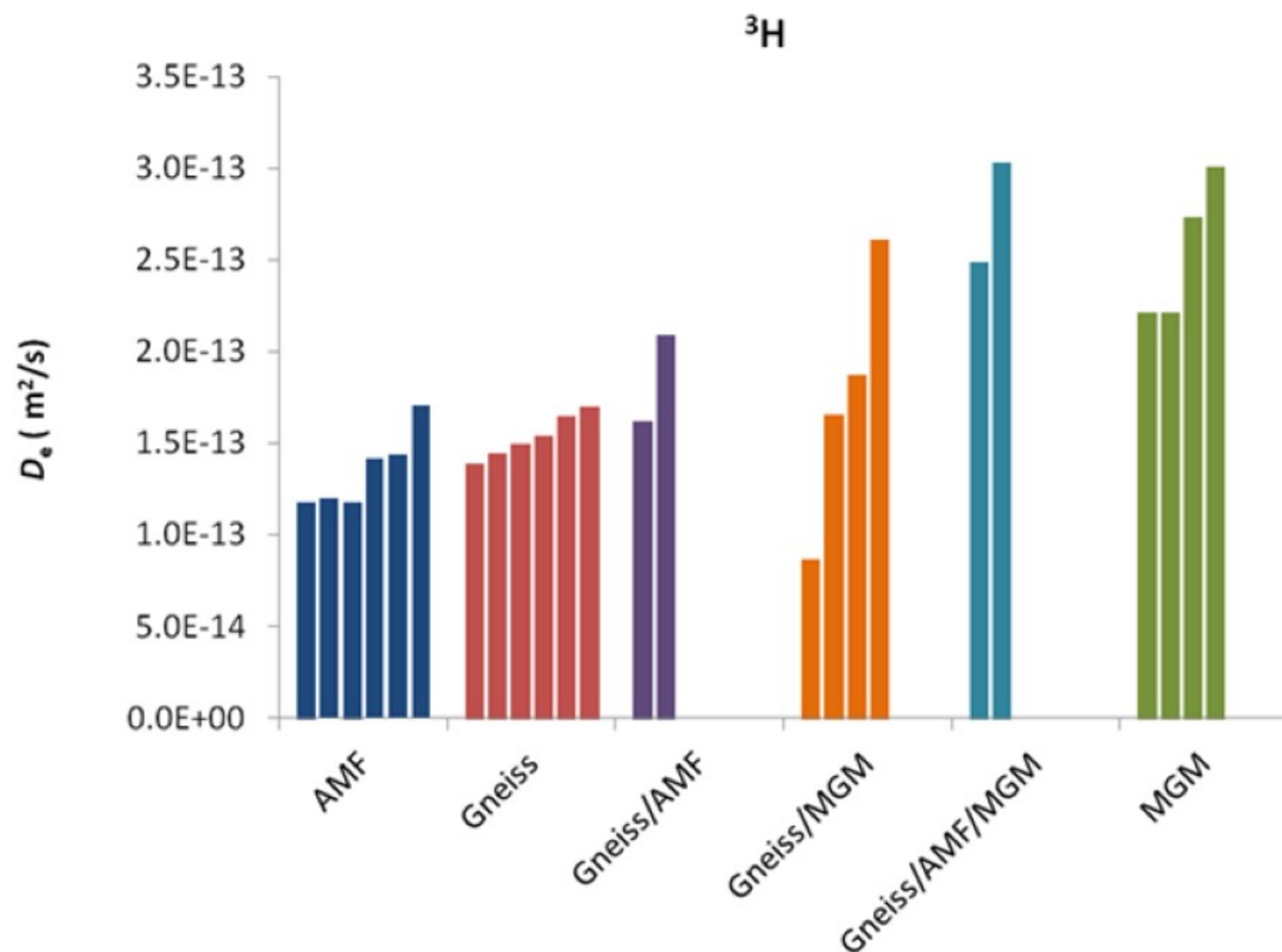
- Bukov: 145 orientovaných vzorků (amfibolity – migmatity)
- AMS – paramagnetické minerální fáze (biotit, amfibol)



D_e ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$): Lokality



D_e ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) metamorfované horniny (Bukov): Horninové typy



Experimenty středního měřítka:

migrace ^3H a ^{125}I ve vzorku o průměru 115 mm/ vzorek 290 mm (^{131}I)



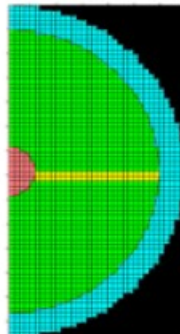
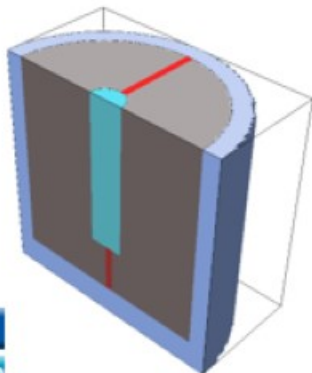
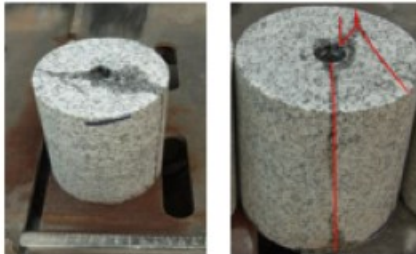
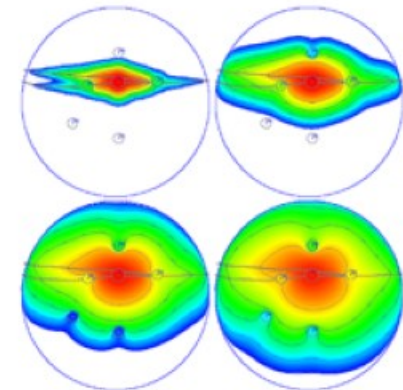
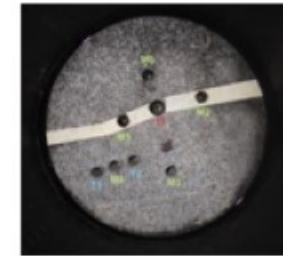
OUT-LEACHING EXPERIMENT:

výsledky:

Horninová matrice: $D_e(^3\text{H}): 1.5 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$,
 $D_e(^{36}\text{Cl}): 7.5 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$

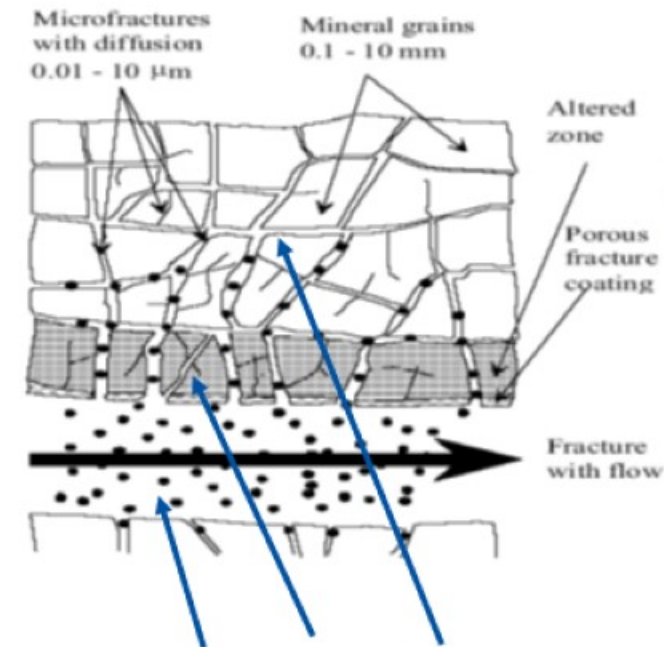
Matrice s trhlinou: $D_e(^3\text{H}): 2.4 \times 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$

- difuzní parametry vzorků (horninové matrice, puklina) jsou vyhodnoceny pomocí transportního modelu (program MT3DMS)



Závisí na:

- mineralogické složení/alterace/sekundární minerály
- pórový prostor (propojenost, geometrický faktor, velikost pórů, konstruktivita aj)
- orientace minerálů (foliace/lineace)
- RN (speciace, sorpční vlastnosti aj)
- porozita => *studium pórového prostoru*



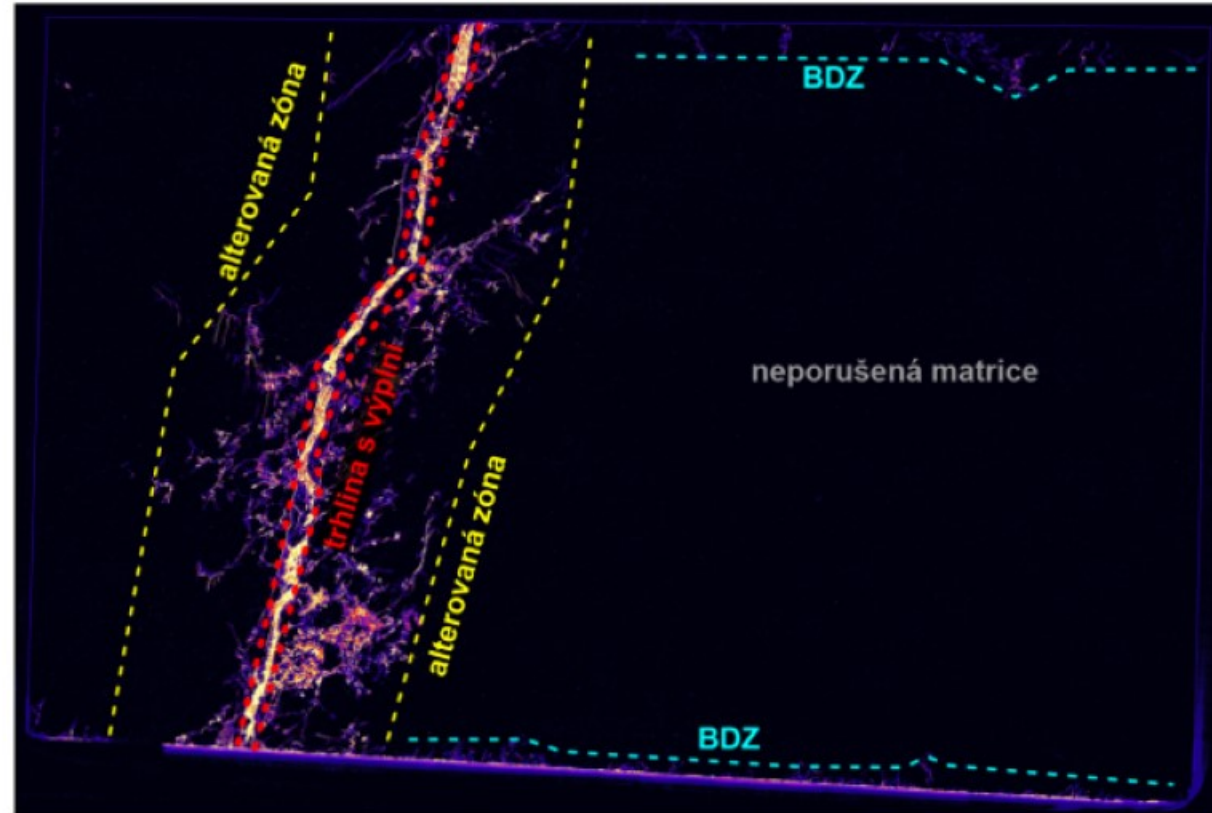
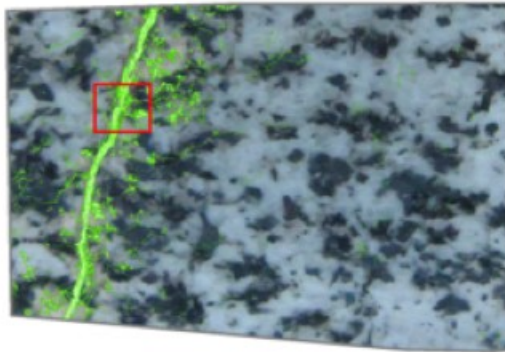
$$\varepsilon = \varepsilon_f + \varepsilon_t + \varepsilon_r$$

- ε Celková porozita
 ε_f propojená porozita (advekce)
 ε_t efektivní porozita (difuze)
 ε_r reziduální porozita (uzavřené pory/nepropojené)

Reproduced from Rasilainen, 1997



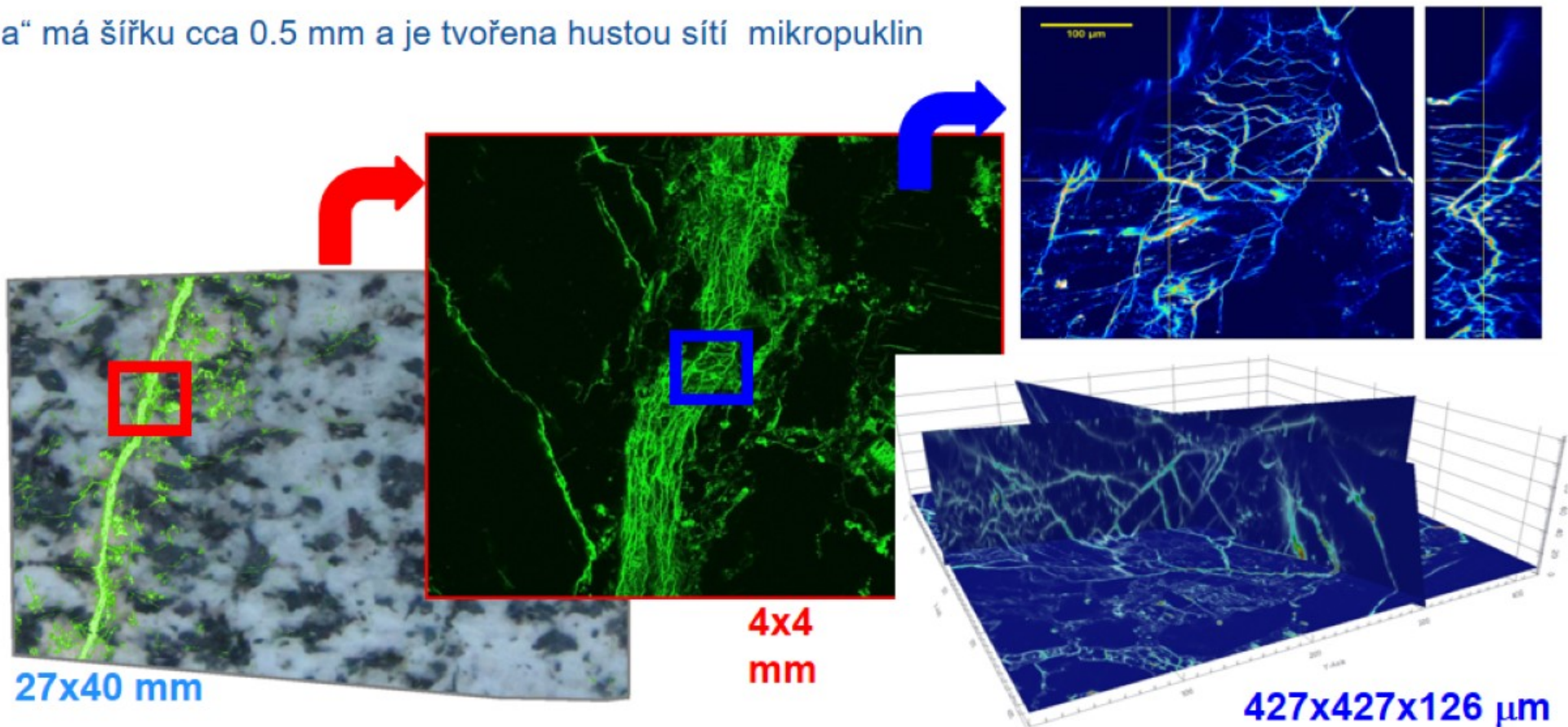
difuzní vzorek (1 x 5cm)



Koncepce pórového prostoru horninové matrice – difuzní vzorek (1 x 5cm)

Zobrazení mikropórového prostoru horninové matrice – CLSM - konfokální laserová skenovací mikroskopie

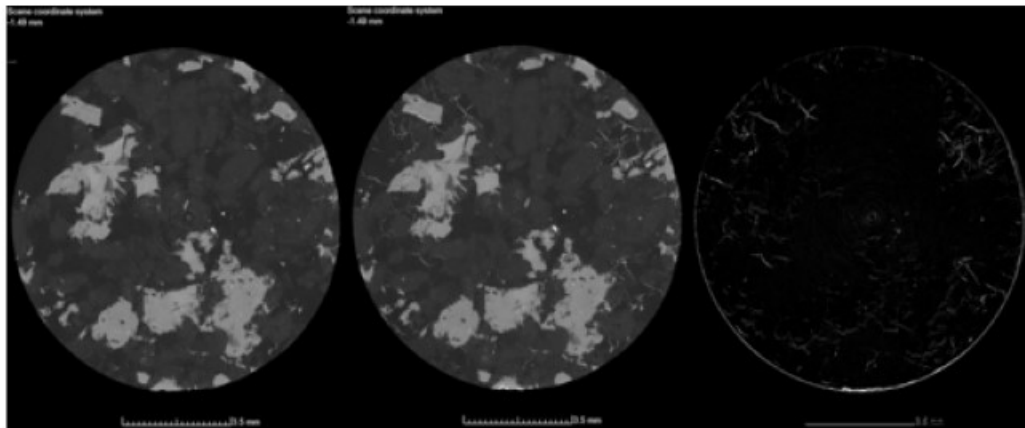
- studium délek mikropuklin a propojení mikropórového prostoru
- vzorek horninové matrice s puklinou s kalcitovou výplní
- prostorové 3D snímkování vybraných detailů do hloubky max. 120 μm – velikost voxelu až 87x87x252 nm
- „puklina“ má šířku cca 0.5 mm a je tvořena hustou sítí mikropuklin



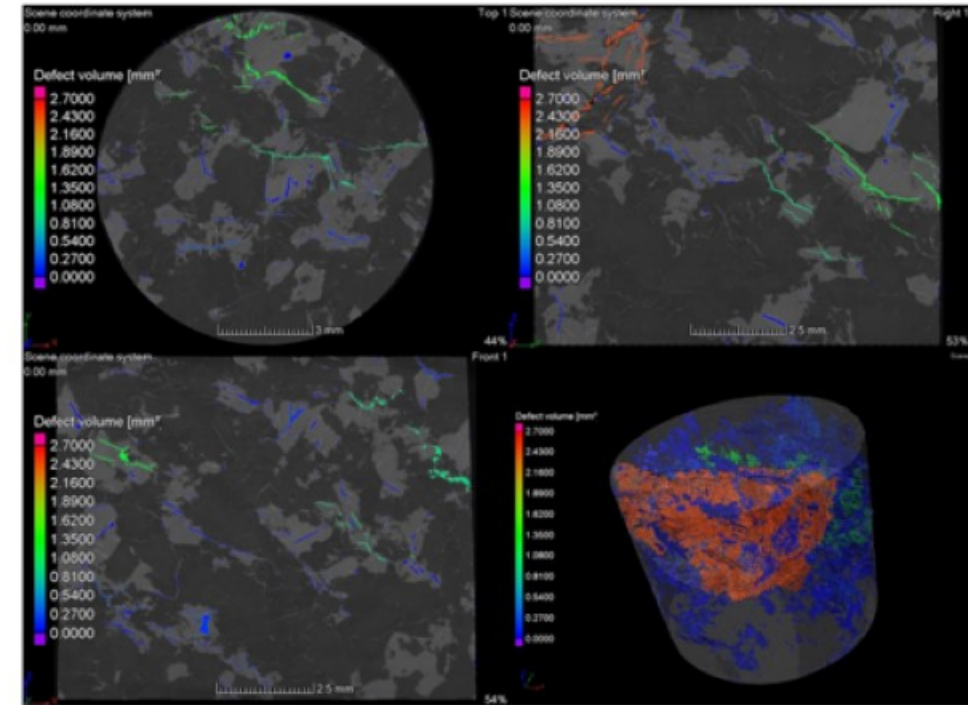
Využití možností počítačové tomografie (CT) pro zobrazení pórového prostoru granitických vzorků



- Připravený zkušební vzorky z vrtného jádra (5cm/8mm)
- Řezání pilou a vodním paprskem (porovnání)



Možnost vizualizace pórového prostoru granitických hornin- vysokotlaká Hg porozimetrie



Analýza vnitřní struktury po Hg porozimetrii (zvýraznění pórového prostoru)

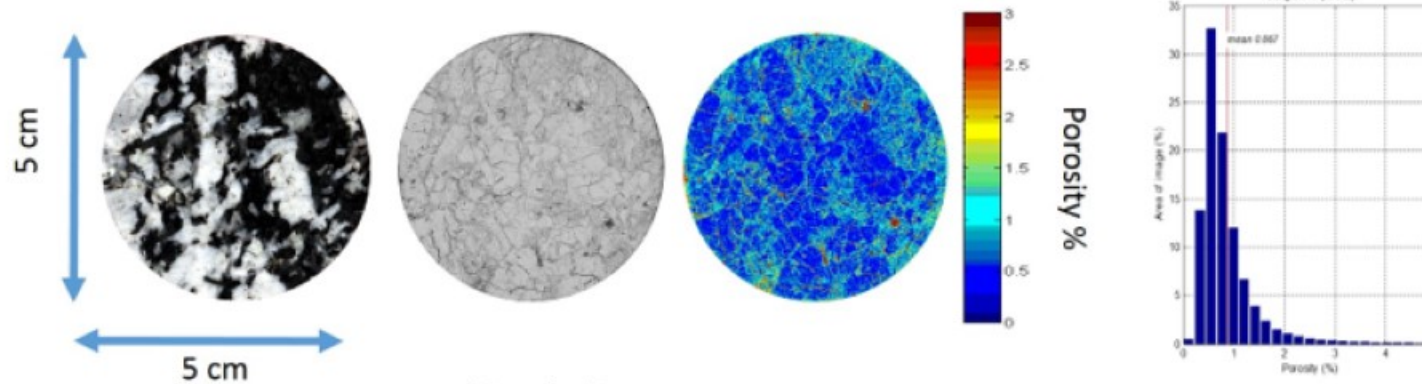
Sample	Mercury porosity (%)	CT porosity (%)
1A-1	1,26	N/A
1A-2	2,48	1,94
1B-1	0,22	N/A
2A-1	0,90	0,84
2A-2	1,02	1,20
2B-1	0,34	N/A

Korelace porozity stanovené pomocí CT a Hg porozimetrie

CT vhodné pro porozity kolem 1%>

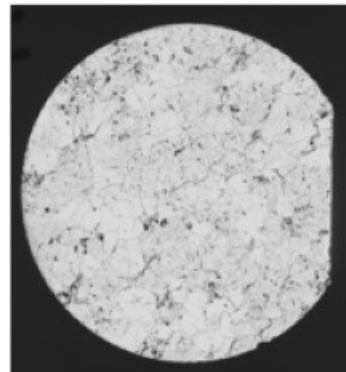
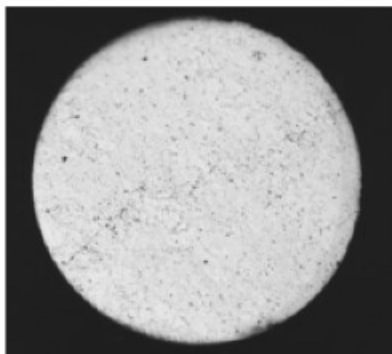
Měření porozity - C-14-PMMA (UniHelsinki)

- impregnace vzorku methyl methacrylate značenou C-14- (C-14-MMA)
- distribuce aktivního stopovače - autoradiografie
- kvantitativní analýza – digitální analýza obrazu



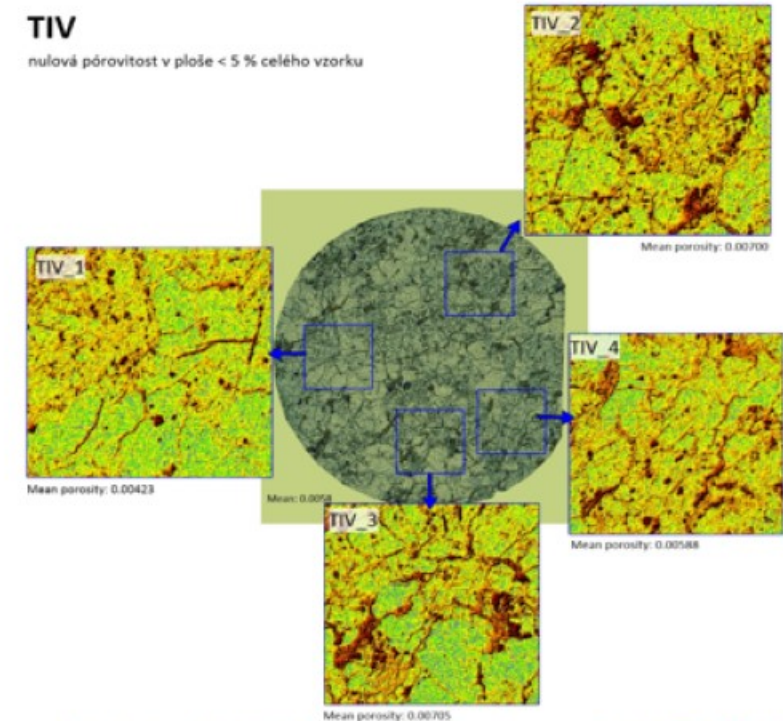
B3 migmatit
Metamorfovaná hornina

TIV1 granit
Magmatická hornina



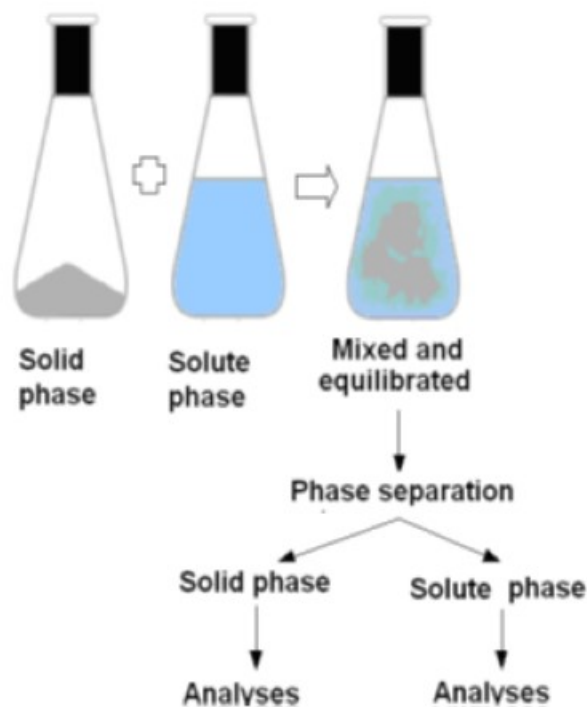
TIV

nulová porovitost v ploše < 5 % celého vzorku



- Modelování difuze založené na C-14 PMMA analýze- Modelování v MT3D - MODFLOW (USGS)

Sorpce radionuklidů na horninový materiál



➤ Vsádková sorpční metoda (Batch)

➤ Dynamický kolonový experiment

➤ Stopovač - ^{137}Cs , ^{85}Sr , UO_2^{2+} , Se

^{36}Cl , ^{125}I , ^{152}Eu + kapalná fáze (SGW2)

➤ Charakterizace pevné fáze - hornina

➤ RTG

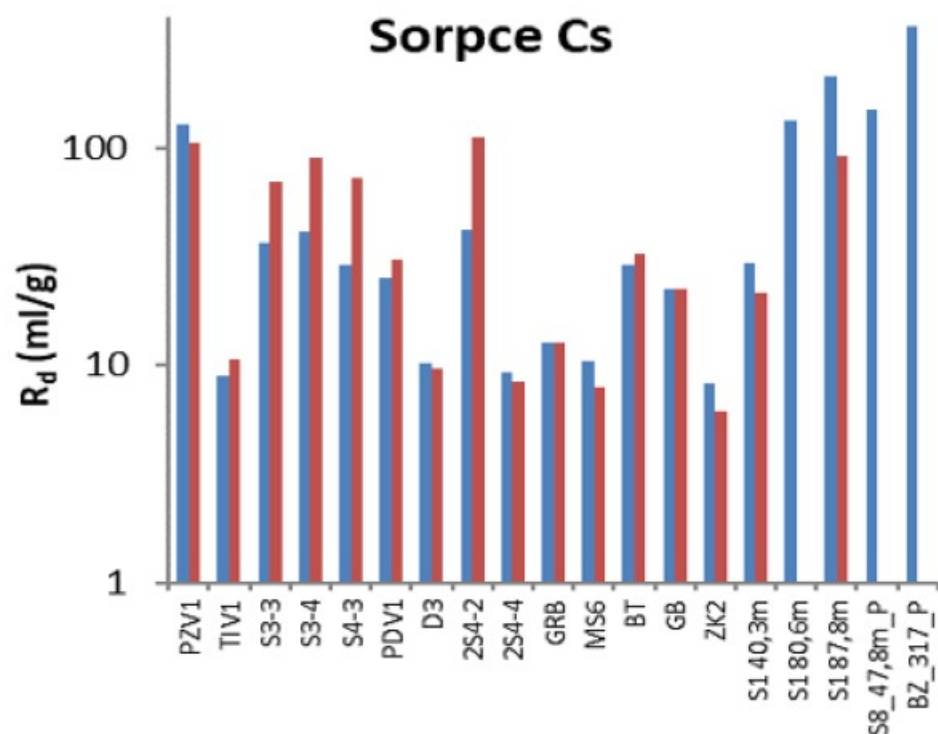
➤ Stanovení CEC

Specifický povrch - BET



Sorpční distribuční koeficient (K_d)

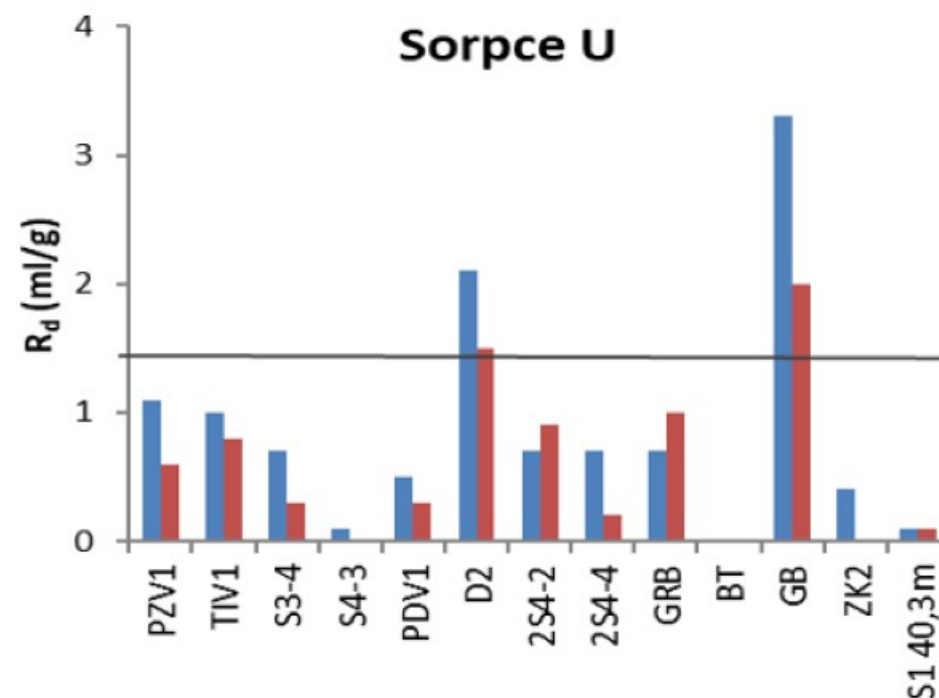
- závislost na podmínkách
- K_d - vstup do modelů



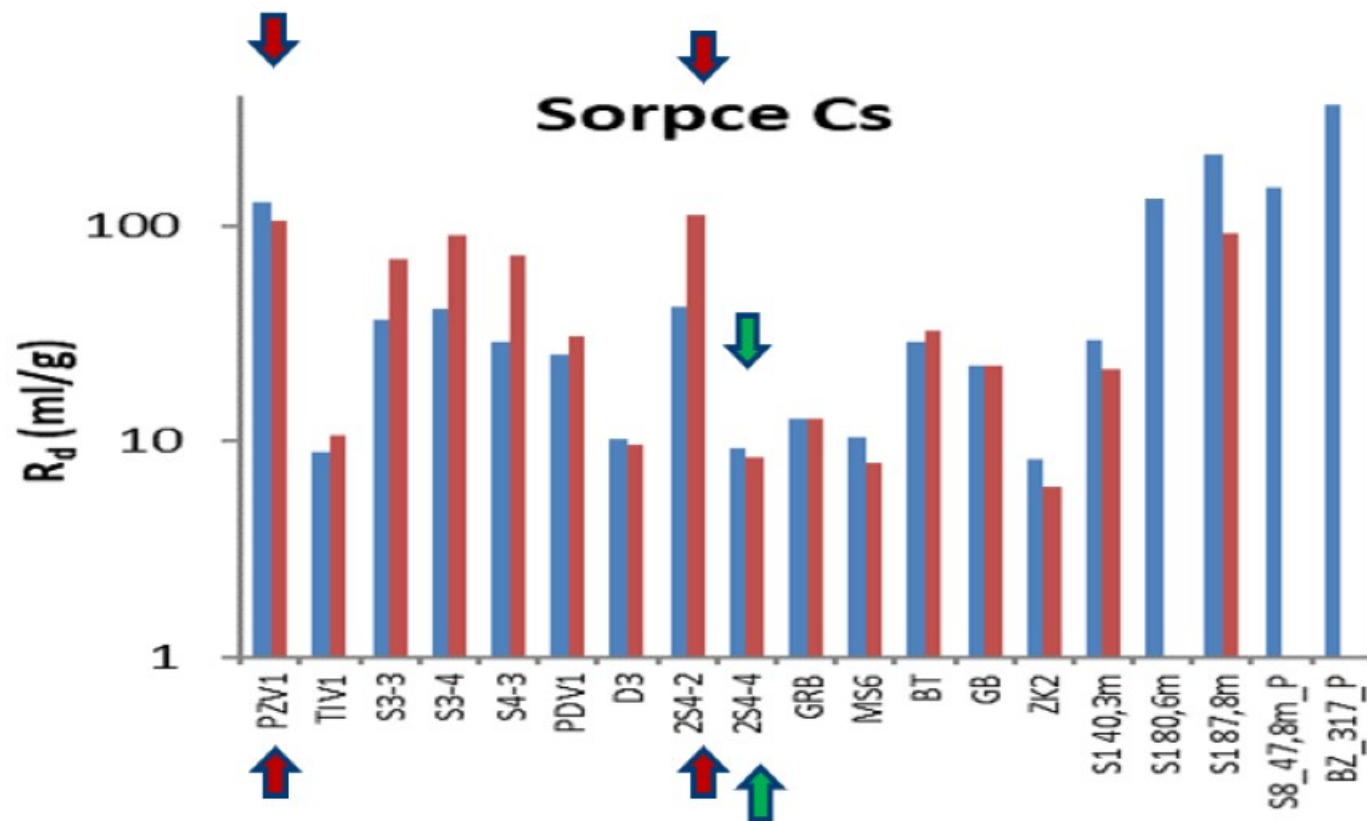
Specie v podzemní vodě SGW2: Cs^+

Cs - nejvyšší sorpce

Sorpce kationtovou výměnou



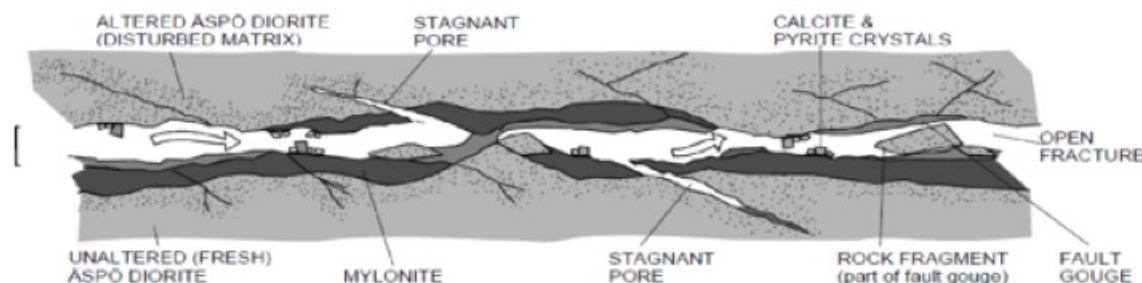
Specie v podzemní vodě SGW2:
Aniontový karbonátový komplex
 $(\text{UO}_2)\text{CO}_3^{2-}$



- až řádové rozdíly v hodnotách K_d
- vliv mineralogie: vyšší sorpce na některé minerály, např. kaolinit, slída, amfibol
- vliv velikosti frakce
- závislost na specifickém povrchu a CEC – alterované horniny/puklinové výplně

Ovlivněna zejména:

- speciace RN
- složením podzemní vody (kompetice jiných specií - Cs vers. K), pH, Eh, iontová síla
- vlastnostmi horninového materiálu
 - přítomnost minerálních fází s vyšší sorpční kapacitou (např. slídy, Fe oxidy ad.)
 - vyšší CEC
 - vyšší specifický povrch
 - porozita
 - zeta potenciál aj.



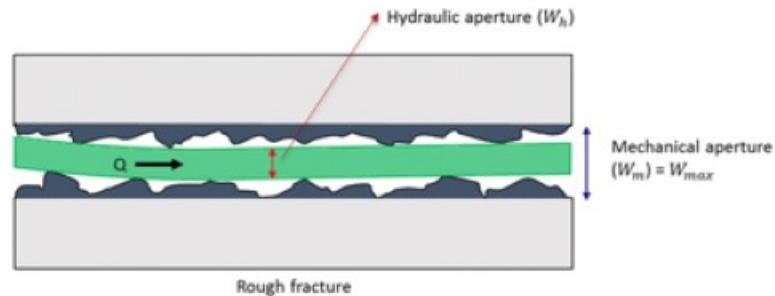
Crystalline rock fracture with fissure infill and disturbed zones (Winberg et al. 2001)

Transportní experimenty



Transport kontaminantů v puklině – Modelový blok

- Migrace kontaminantů v prostředí krystalických hornin probíhá především procesem advekce v puklinové síti
- Hlavním cílem projektu je vyvinout nástroje pro hodnocení migrace a retence potenciálních kontaminantů (radionuklidy, těžké kovy, nanočástice) ve fyzikálních modelech krystalických hornin v umělé puklině



A schematic illustration of rough fracture surface (J Petrol Explor Prod Technol (2018) 8:143–154)

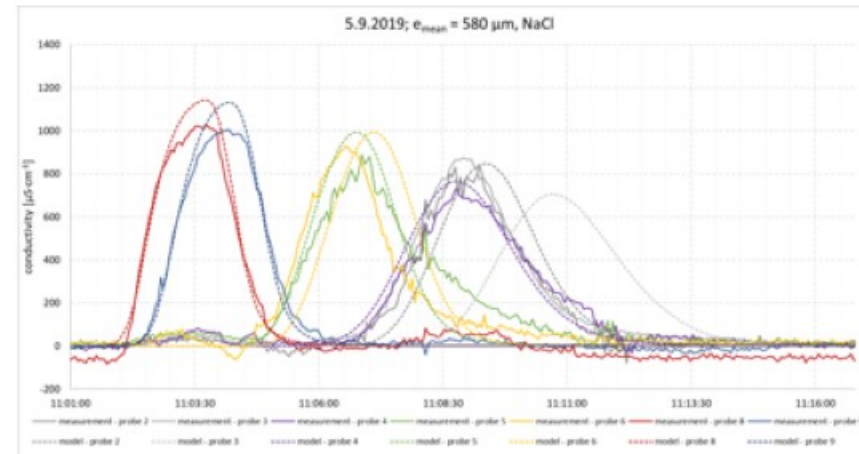
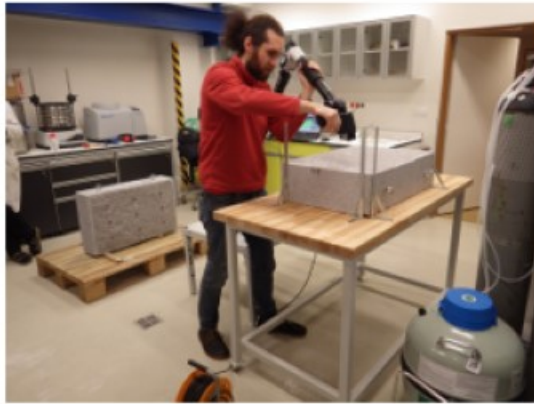


Instrumentace Bloku MS1 (80 x 50 x 40 cm)

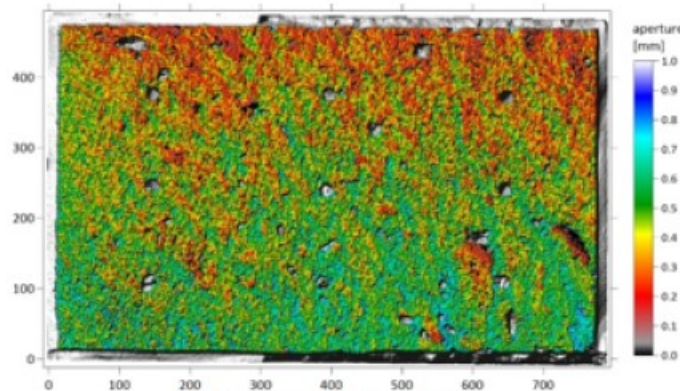
Model transportu na horninovém bloku_MS1, MS2 (80 x 50 x 40 cm)



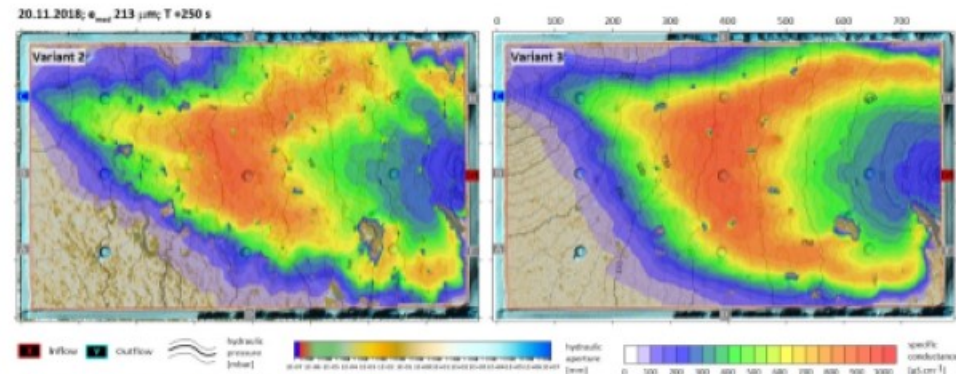
- reálnější data, jasně definované podmínky, opakovatelnost – validace dat do modelů
- charakterizace pukliny - 3D scanning (Romer Absolute Arm)
- stopovací experimenty s konzervativními stopovači: NaCl, KCl, KI, HTO, reaktivní transport: těžké kovy $\text{Pb}(\text{ClO}_4)_2$, nanočástice
- modelování MODFLOW + MT3D, Flow 123D



Měření a modelové průnikové křivky



Mapa rozevření pukliny

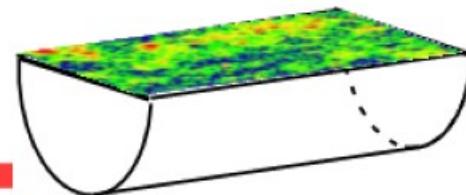
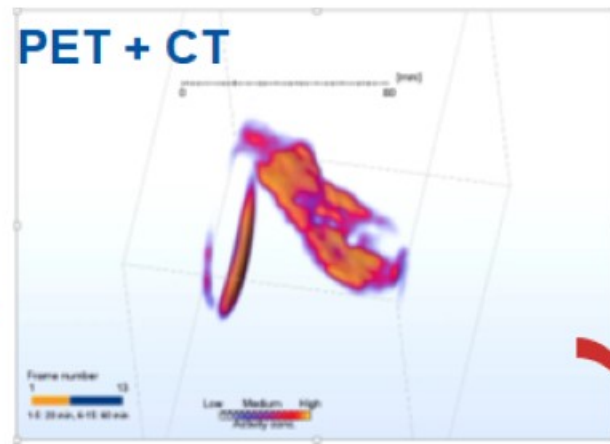
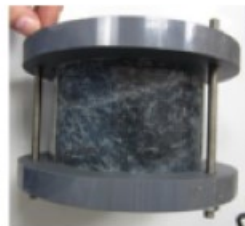
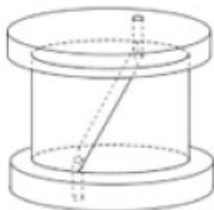


Srovnání šíření konzervativního stopovače puklinou vs hydraulický model

Migrační experimenty na vzorcích s přirozenou puklinou – GeoPET (HZDR, UJV) _3D



- GeoPET_pozitronová emisní tomografie (HZDR)
- 3D charakterizace pukliny - μ CT charakterizace transportu Geo PET (^{18}F aktivita 56 -100 MBq), Eu



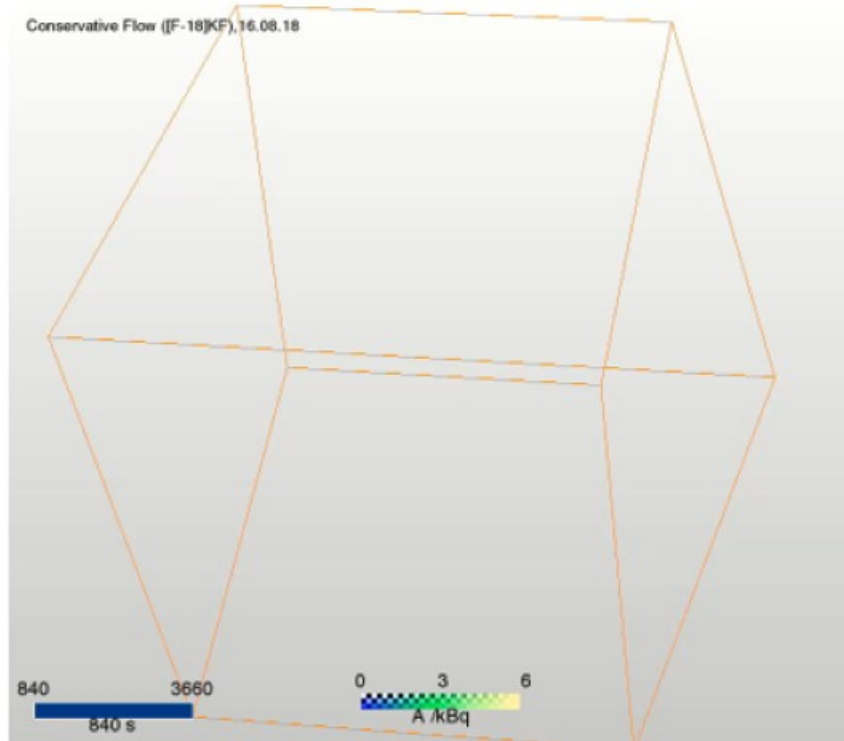
Modelování – reaktivní transport

Eu(III) - μ TRLFS on
ROIs v puklině

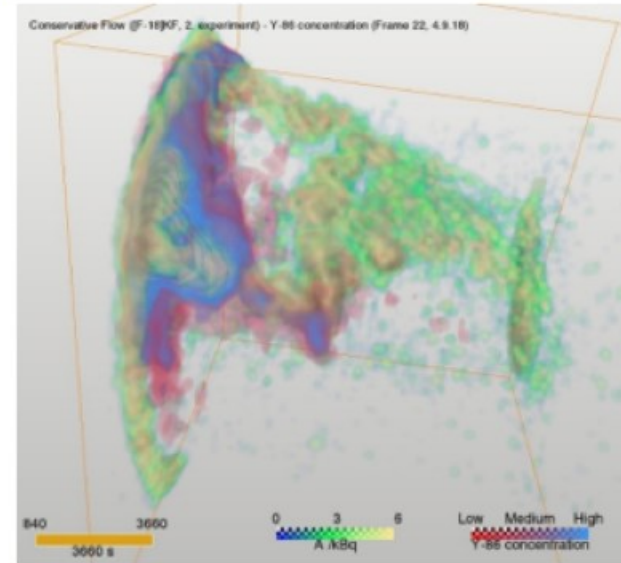


GeoPET (HZDR) – PVP 2 (PVP Bukov)

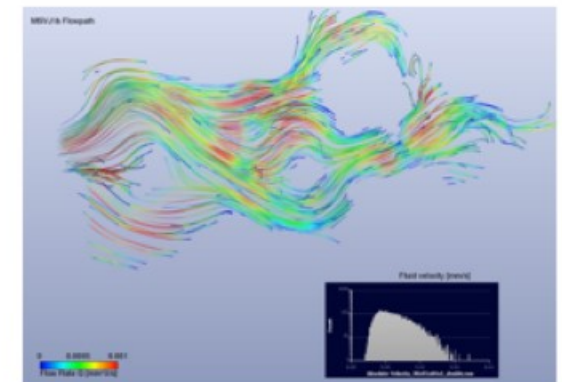
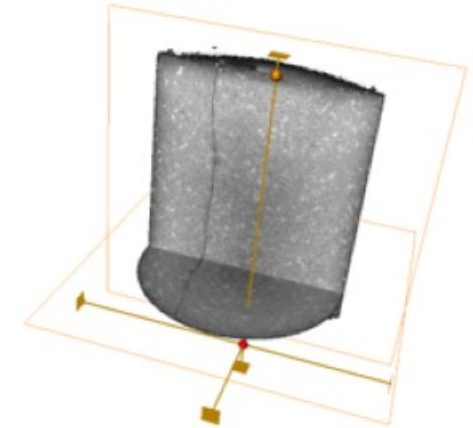
- šíření aktivity a rychlosti proudění
- heterogenní proudění
- transportní simulace – reaktivní transport
- vývoj modelových přístupů (PROGEO, TUL)



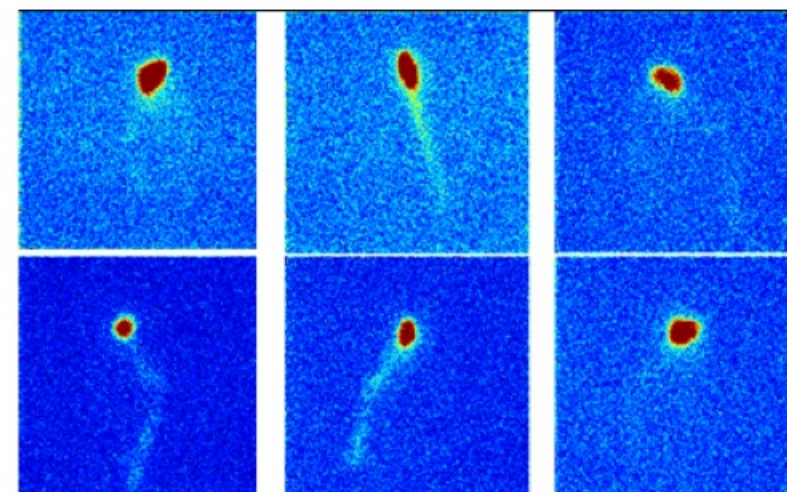
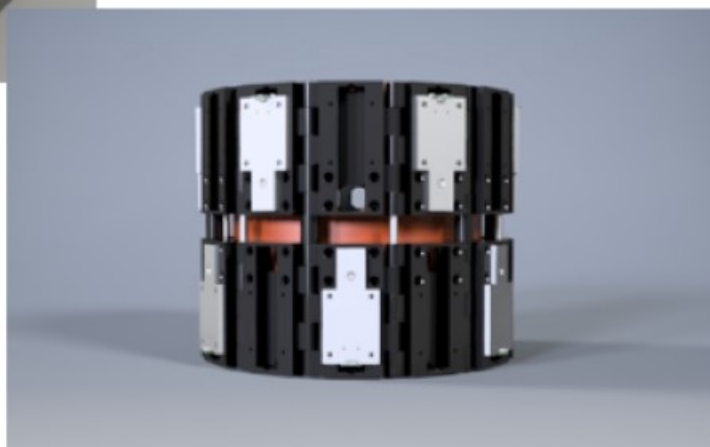
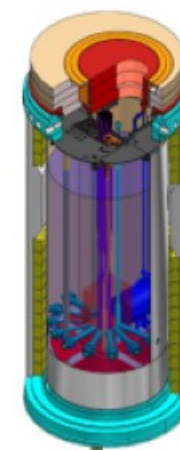
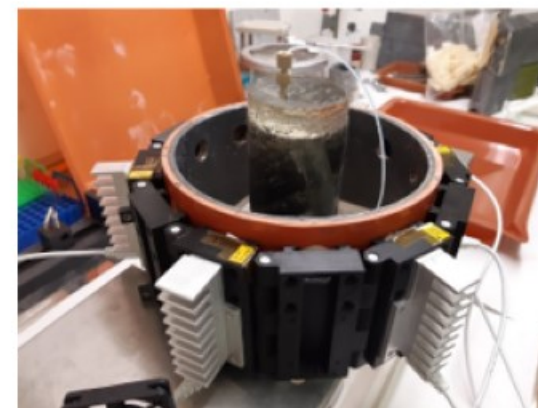
transport ^{18}F uklinou PVP-2 (PVP Bukov)



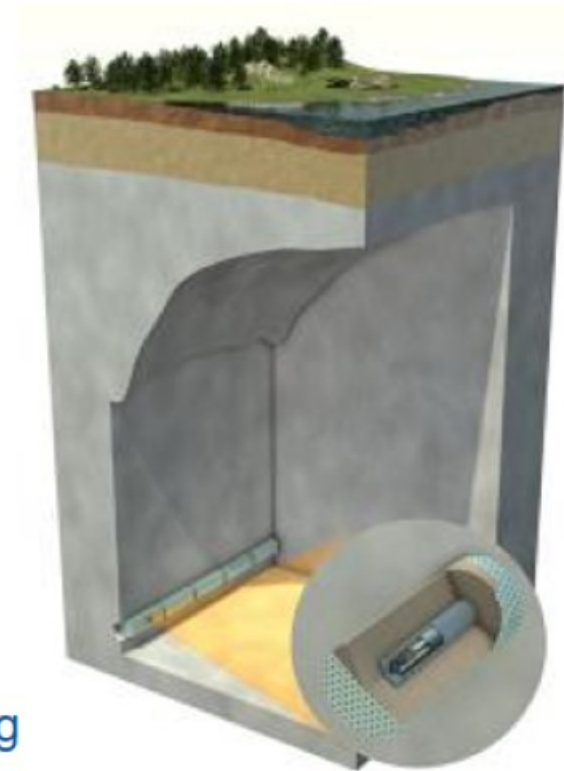
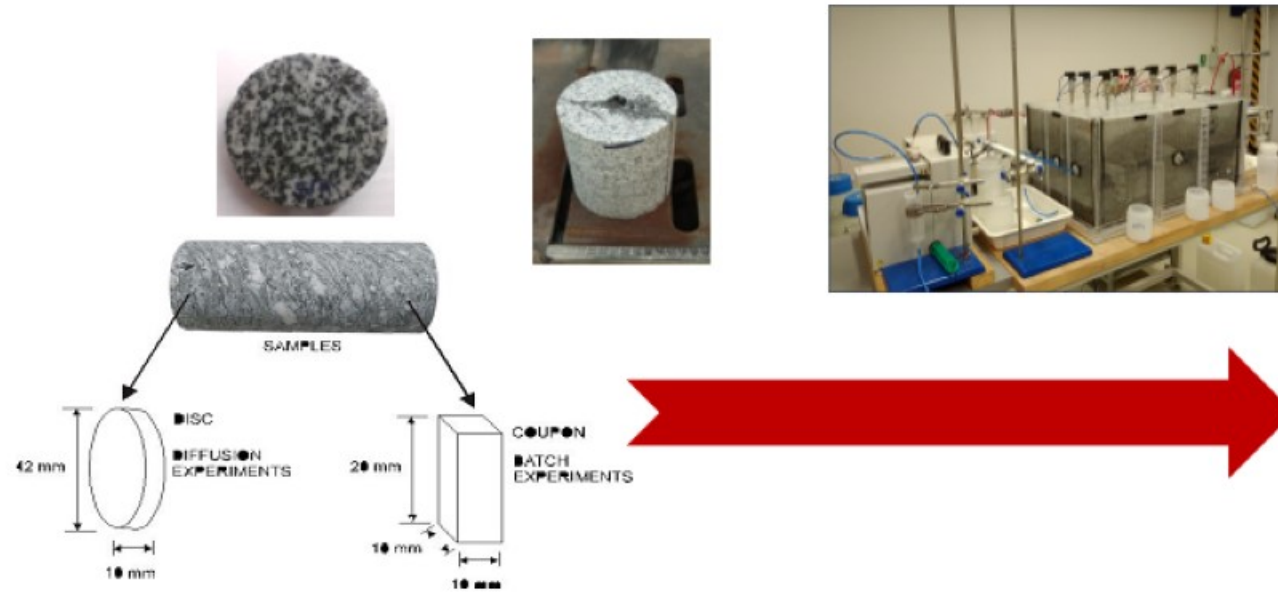
transport ^{86}Y - PVP-2 (PVP Bukov)



- testovaná izotopy ^{133}Ba , ^{137}Cs , ^{129}I , ^{22}Na , ^{152}Eu , ^{154}Eu + ^{188}Re , ^{166}Ho , nanočástice
- 12 detektorů – 3D vizualizace (Detektor Minipix Timepix3 (CdTe 2 mm senzor),
- statické i dynamické experimenty – on – line detekce
- rekonstrukční SW, 3D rekonstrukční SW



Z laboratorního do reálného měřítka...



- výsledky porovnatelné v rámci měřítka – složitý Up – scaling
- každé měřítko má své specifikace – výhody/nevýhody
- výsledky – do bezpečnostního modelu

In-situ experiments blíže realitě

složitě - proměnné vstupy, složitost systému, nejasné okrajové podmínky,

Přenos hodnot migračních **PA**rametrů granitických hornin z **MI**kroměřítka do **Re**álného měřítka horninového masivu (**PAMIRe**) (TA04020986)

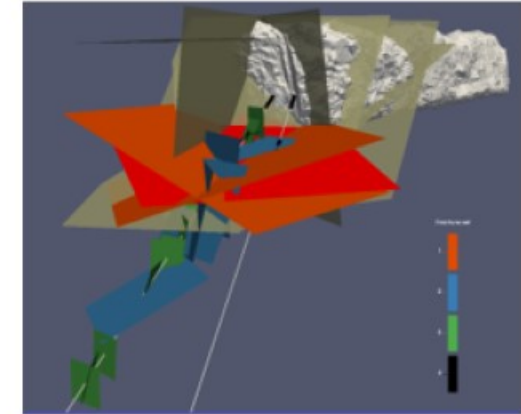
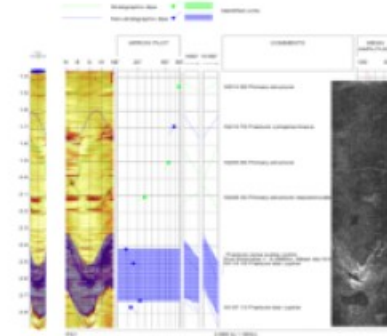
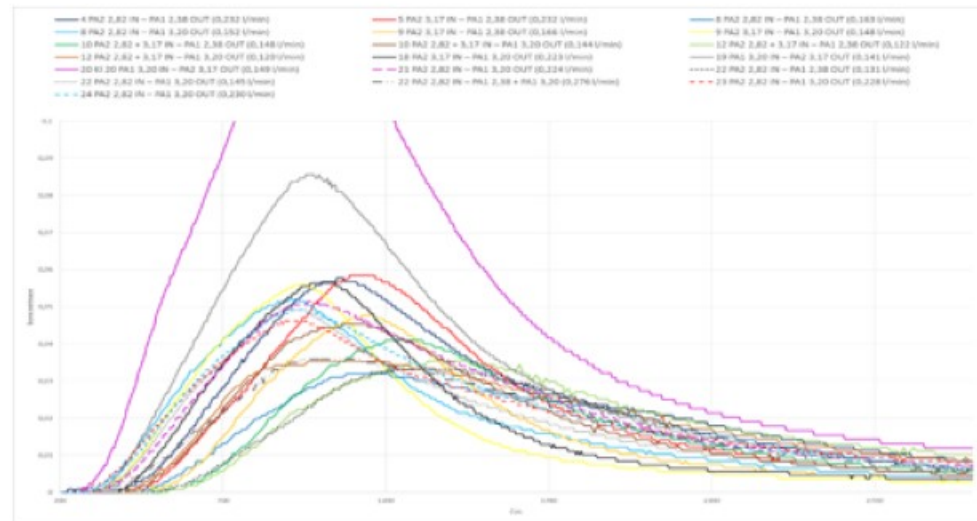


T A
Č R



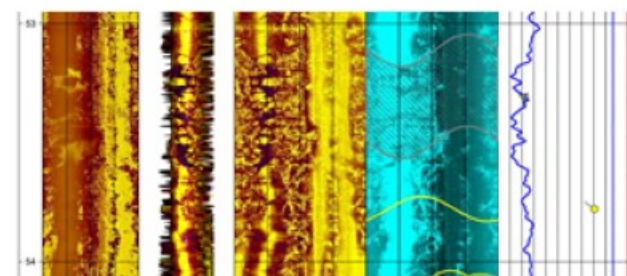
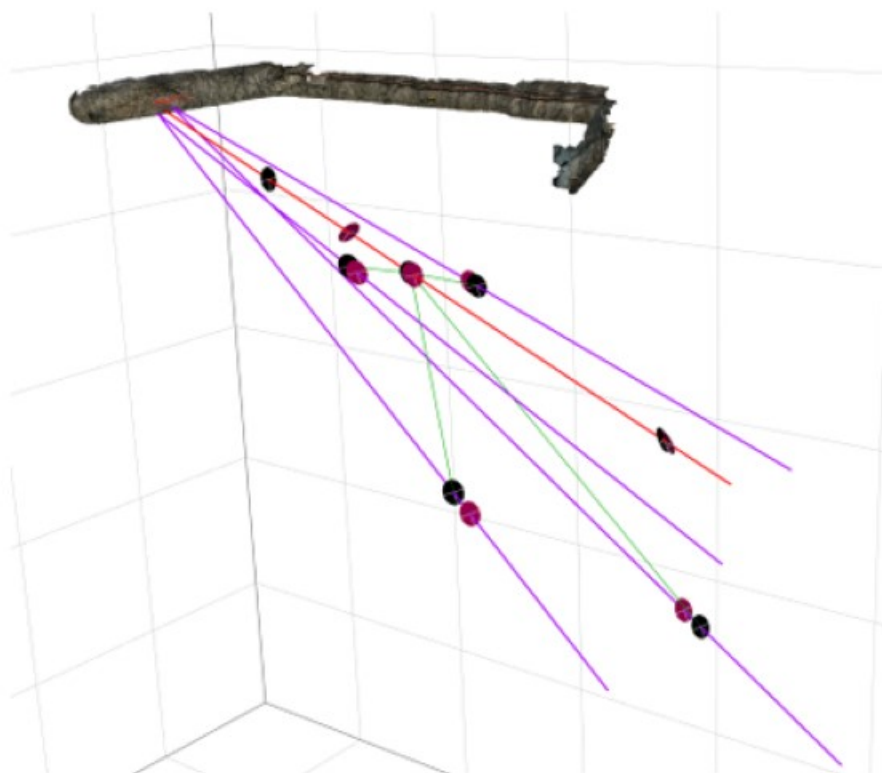
Cíle projektu:

- transfer transportních parametrů granitických hornin z malého měřítka do středního a velkého měřítka
- použití radiostopovačů (HTO) na vzorcích dm měřítka a **in-situ** v podzemní laboratoři Josef



- Hodnocení 24 testů (Qtracer, Exel) + 2 aktivní (^3H)
- Stanoveny parametry** - čas prvního objevení, čas maximální koncentrace, střední doba zdržení, střední rychlost, maximální rychlost, Koeficient disperze, podélná disperze, Pecletovo číslo, zasažený objem, množství získaného stopovače, návratnost
- Modelování transportu** _ NAPSAC (DFN model) + GeoVisage (interface)/Paraview

- Cílem projektu „Výzkum puklinové konektivity v PVP Bukov“ je **získat relevantní data pro vytvoření a ověření správnosti hydrogeologického a transportního modelu zájmového bloku horniny**, který bude sloužit pro matematické modelování proudění vody a migrace stopovacích látek
- Vývoj a testování metodik a dostupných nástrojů pro charakterizaci horninového masivu za účelem tvorby hydrogeologického (DFN) modelu



53.1 – 53.8 m poúťová zóna

- **charakter horniny** výrazně ovlivňuje retenční procesy, které mohou mít dopad na finální hodnocení bezpečnosti
- **proces difúze** je závislý na **porozitě a na charakteru pórového prostoru**, který je ovlivněn jak minerálním složením. tak i např. geologickými procesy (usměrněním, kompakcí apod.)
- výrazný vliv na difuzní parametry mají i **mírné nehomogenity vzorky** (drobné trhliny, mikropukliny)
- **metamorfované horniny** vykazují **nižší hodnoty D_e než magmatické horniny**
- u všech krystalinických hornin byl pozorován **vliv aniontové exkluze**, s výraznějším vlivem u metamorfovaných hornin
- orientace magnetické foliace vykazuje podružnou roli /oproti změnám v mineralogickém složení.
Rozsah rozdílů - první jednotky $0, \times 10^{-13} \text{ m.s}^{-2}$

- **sorpce je významně závislá na speciaci radionuklidu a složení horniny**; některé z minerálních fází zvyšují sorpci až o řády (jílové minerály, chlority...)
- **významné sorpce** byly zjištěny u studovaných **puklinových výplní a alterovaných hornin**
- pro validaci modelů je důležité studovat transportní parametry v různých měřítcích (rozlišení, datové toky, hraniční podmínky...) – *On-line záznam a 3D vizualizace*
- přenos z laboratorního měřítka do reálného prostředí složitý => *In-situ experimenty*

Prezentované výsledky byly podporovány ze zdrojů SÚRAO
v projektech **Výzkumná podpora bezpečnostního hodnocení HÚ a
Hluboké horizonty a Transport 1**



Dále..

TACR (TA04020986): *Přenos hodnot migračních PArametru granitických hornin z Mlkroměřítká do Reálného měřítká horninového masivu (PAMIRe)*

T A

TACR (TH02020543): *Vývoj nástrojů pro studium transportu kontaminantů v puklinovém prostředí*

Č R

MPO TRIO program (FV30430) *Využití krátkodobých RAdiostopovačů a vývoj jejich DEtekčních METod pro popis procesů, ovlivňujících transport kontaminantů v životním prostředí (RADEMET)*



ÚJV Řež a.s. Odd. Radioaktivní odpady a vyřazování 2400

Václava Havlová, Filip Jankovský, Kateřina Kolomá, Eva Galeková, Tomáš Rosendorf, Vlastislav Kašpar, Hana Vodičková

Prezentované výsledky vznikly za spolupráce dalších organizací a týmů



Děkuji za pozornost

Milan Zuna

ÚJV Řež, a. s.

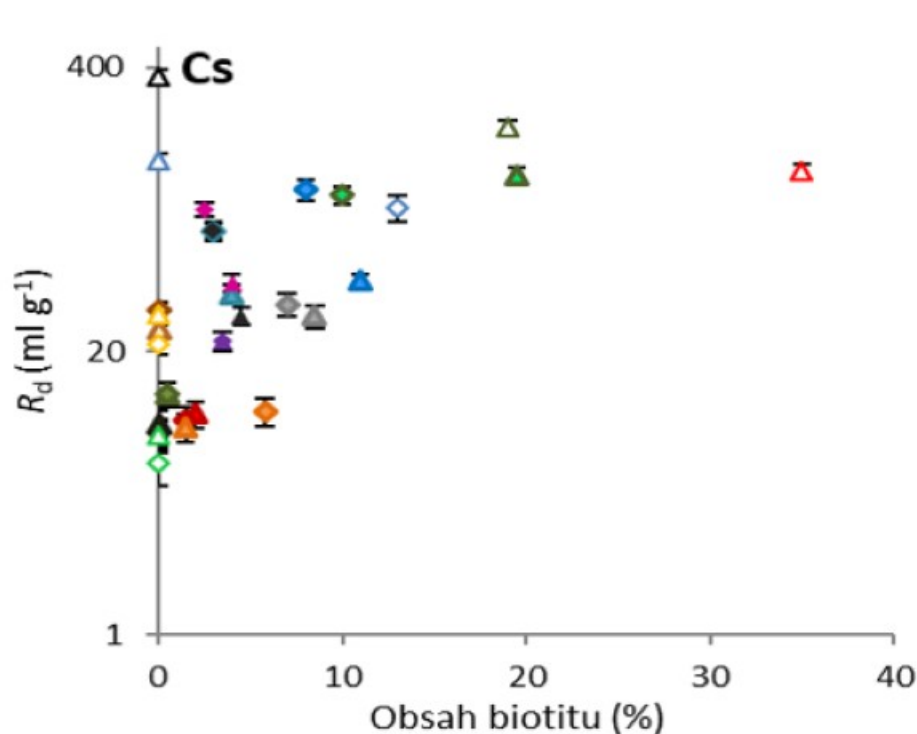
Hlavní 130, 250 68 Husinec - Řež

Czech Republic

Tel +420 266 172 087

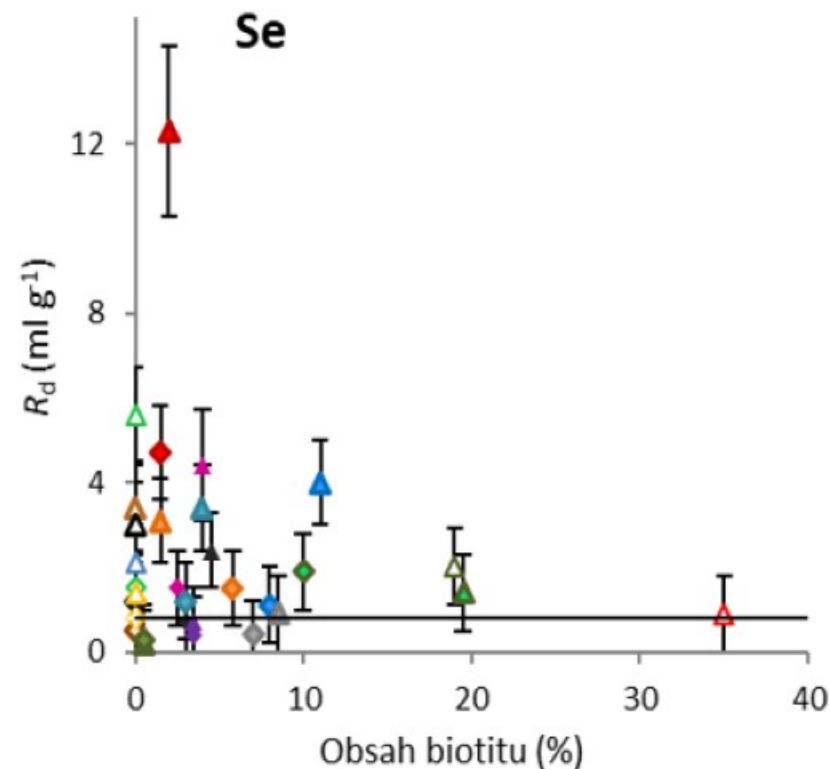
milan.zuna@ujv.cz

www.ujv.cz



Sorpce kationtovou výměnou

- slídy (např. biotit)
- jílové minerály – puklinové výplně



Sorpce redukčními

procesy/povrchová komplexace

- sulfidy (např. FeS_2)
- biotit