

GeoChem

Havainnot uraanin käyttäytymisestä kiteisissä kivissä 2006-2010

Mira Markovaara-Koivisto
Teknillinen korkeakoulu, Geoympäristötekniikka

15.2.2008

KYT2010 seminaari - Kalliokulkeutuminen
Helsingin yliopisto - Radiokemian laboratorio

Tutkimusryhmä

- Hankepäällikkö prof. Kirsti Loukola-Ruskeeniemi
- Koordinaattori Marja Siitari-Kauppi
- Tutkija Mira Markovaara-Koivisto
- Tutkija Jussi Ikonen
- Alihankkijat
 - Geologian tutkimuskeskus, Antero Lindberg
 - University of Reading UK, prof. David Read

Tutkimuksen perusasetelma

- Loppusijoitustilassa vallitsevat hapettavat olosuhteet sen täyttövaiheessa ja siinä tapauksessa, että mahdollinen hapekas jäätiköiden sulavesi tunkeutuu loppusijoitussyvyydelle.
- Jos uraania pääsee yo tapauksissa pohjaveteen se on +VI arvoisena liikkuva ja kemiallisesti reaktiivinen.
- Työssä tutkitaan uraanin käyttäytymistä kalliossa hapellisissa oloissa.

GeoChem-projektin osatehtävät

- Osa I – Luonnonhavainnot
 - Luonnon uraanifaasit: mineralogia, morfologia, kemia, ja ikä
- Osa II – Laboratoriokokeet
 - Uraanin kulkeutumiskokeita hydrostaattisen paineen alla ja diffuusion avulla (köyhdytetty uraanipelletti radionuklidi lähteenä)
- Osa III – Mallintaminen
 - Osissa I ja II saatujen parametrien hyödyntäminen mallinnuksen avulla
 - Tarkoituksena kehittää uraanin kulkeutumismalli, joka ottaa huomioon
 - Geokemialliset prosessit
 - Kiven rakenteen ja mineralogian heterogeenisuuden

Näytteet

- Uraanipitoiset näytteet
 - Palmottu
 - Lähellä Salpausselkä III:sta, missä jäätikkö pysähtyi → hapellinen sulavesi tunkeutui kiveen suurella paineella
 - Hyrkkölä
 - Myös lähellä Salpausselkä III:sta
 - Kivessä myös metallista kuparia
 - Askola
 - Tutkimuksen alla
- Laboratoriokokeiden kivet
 - Sievi tonaliitti (paineella)
 - Kairasydän otettu heikkousvyöhykkeestä → suuri läpäisevyys
 - Sievi tonaliitti ja Kuru graniitti (diffuusiokoe)
 - suuri diffuusiokerroin



Osa I - Luonnonhavainnot

- Näytteiden huokoisuuden ja radioaktiivisten mineraalien sijainnin määrittäminen autoradiografisin menetelmin senttimetriskaalassa.
- Mineralogia ja rakenne mikroskooppisin menetelmin (polarisaatiomikroskopia, ohuthieet ja pintahieet).
- Uraanimineraalien esiintymistavan ja kemiallisen koostumuksen tutkiminen pyyhkäisyelektronimikroskoopilla (SEM) ja energia dispersiivisellä spektrometrillä (EDS) ja aallonpituus dispersiivisellä spektrometrillä (SEM/WDS).
- Valittujen mineraalifaasien ikämääryksiä laserablaatio-induktiivisesti kytketyllä plasma massaspektrometrillä (LA-ICP-MS).
 - Helsingin yliopiston Agilent 7500 ICP-MS
 - Geologian tutkimuskeskuksen Nu Plasma HR

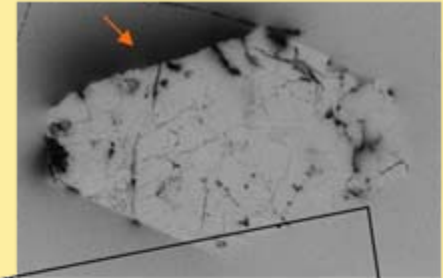
Osa I - Tuloksia

- Näytteiden autoradiogrammien perusteella löydettiin uraanifaaseja jotka täyttivät kiven mikrorakoja.
- Raot kuvattiin SEM:llä ja rakotäytteiden kemialliset koostumukset selvitettiin EDS:llä tai EPMA:lla.

^{14}C -PMMA impregnoidusta kairasydämeestä tehty pintahie



Autoradiografi samasta näytteestä



Takaisinsirontakuva elektronimikroskoopilla

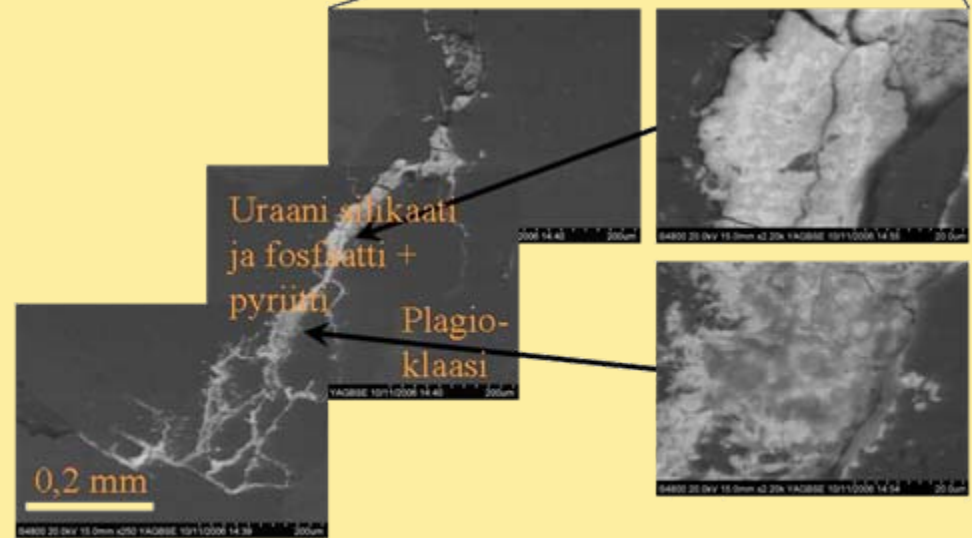
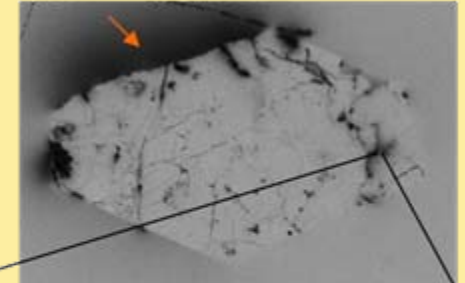
Osa I - Tuloksia

- Toinen iänmäärittämiseen sopiva uraanipitoinen raontäyte.

^{14}C -PMMA impregnoitusta kairasydämeistä tehty pintahie



Autoradiografi samasta näytteestä



Takaisinsirontakuva elektronimikroskoopilla

Osa II - Laboratoriokokeet

Laboratoriokokeissa radionuklidi lähteenä käytetyn köyhdytetyn uraanipelletin (DU) alkuainepitoisuudet

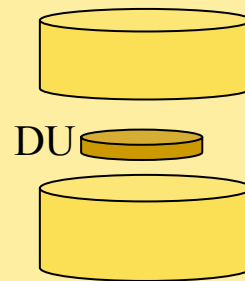
Radio-nuklidit	Aktiivisuus [Bq/g] (Trueman et al, 2004)	Epävarmuus [±Bq/g]	wt%	Epävarmuus [±wt%]
²³⁸U	12343	0.916	2.992E-12	2.2204E-16
²³⁵U	156.6	0.461	1.478E-09	4.3515E-12
²³⁴U	2382	1.161	2.784E-07	1.3571E-10
²³⁶U	7.113	0.113	9.822E-07	1.5603E-08
²³⁷Np	5.002	0.267	1.535E-05	8.1936E-07
²³⁹⁺²⁴⁰Pu	2.195	0.098	—	—
²³⁸Pu	1.059	0.055	1.7909259	0.09301315
²⁴³Am	6.678	0.117	0.0034232	5.9975E-05
²⁴¹Am	2.166	0.085	0.1782787	0.00699616
⁹⁹Tc	78.97	0.795	4.134E-06	4.1617E-08

Epävarmuudet ovat laskennalliset 2σ

Osa II - Laboratoriokokeet

TRIAKSIAALIKOE (paineella)

- Koeaika 1v 8 kk
- Kivilaji Sievin muuntunut tonaliitti
- Kivikiekkojen väliin asetettiin köyhdytetty uraanipelletti. Systemi suljettiin kumiputkeen, joka aiheuttaa sellipaineen. Murskattuun Sievin muuntuneeseen tonaliittiin tasapainotettu vesi painetaan pienellä ylipaineella systeemin läpi.
- Systemin yläpuolelta kerätään vesinäytteet, joista U isotoopit ja muut alkuaineet analysoidaan.
- Virtausparametrien muutoksia monitoroidaan jatkuvasti.
- Kokeen loputtua kivikiekoista sahataan pintahieitä analysoitavaksi.



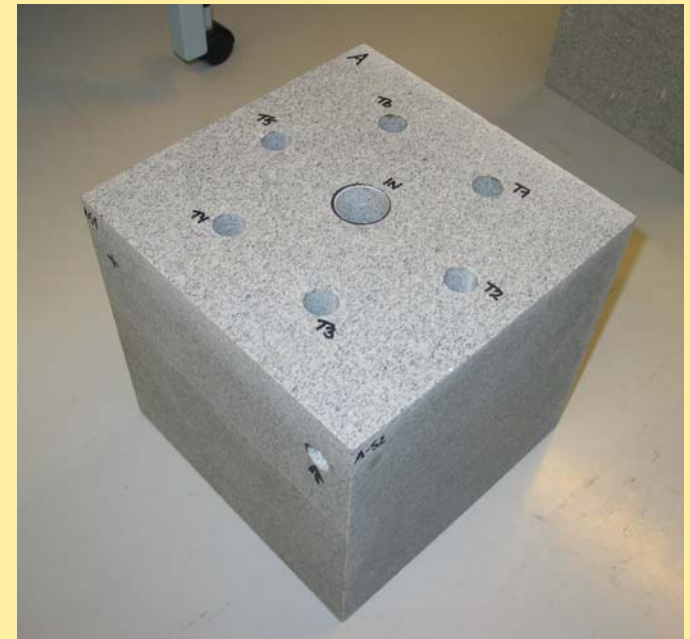
Osa II - Tuloksia

- Tulokset tähän mennessä:
 - Köyhdytetystä uraanipelletistä liuennut uraani kulkeutui nopeasti muuntuneen tonaliitiin läpi (2 cm),
 - Uraanikonsentraatio nousee tasaisesti ajan funktiona
 - Virtaus pienentyä ajan funktiona
 - Uraanipelletin pinnalla on havaittu muuntumista

Osa II - Laboratoriokokeet

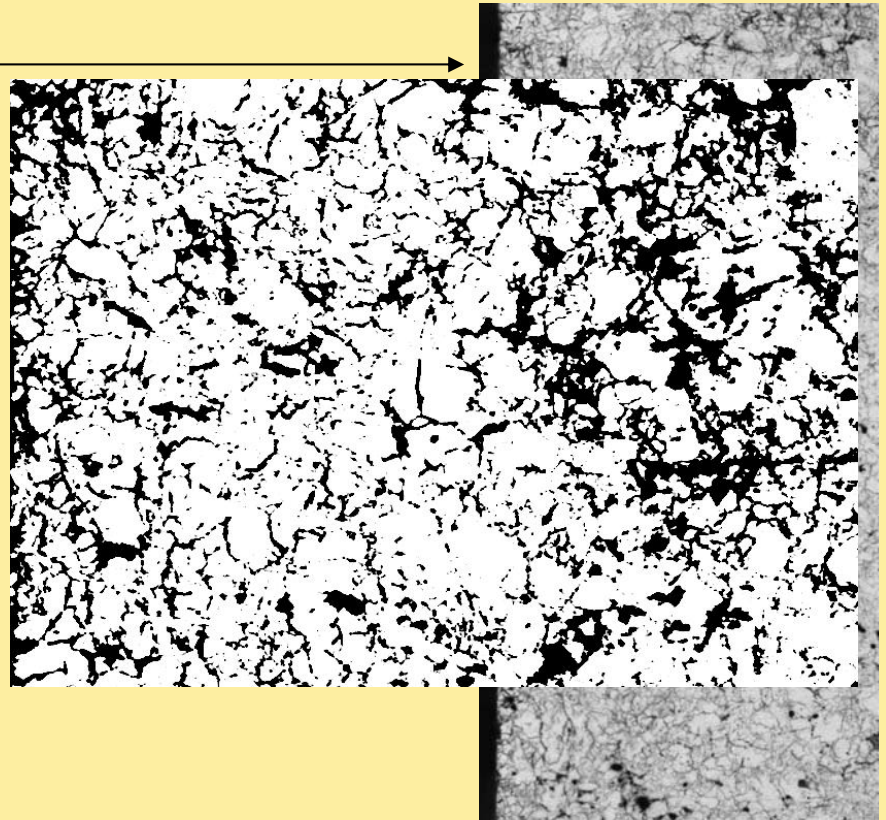
DIFFUUSIOKOE

- Koeaika 1v 3kk
- Kivilaji Kurun harmaa graniitti
- Murskattuun Kurun harmaaseen graniittiin tasapainotettu vesi kiviblokissa
- Köyhdytetty uraanipelletti keskireiässä
- Uraanin liikkumista kiviblokissa seurataan ottamalla vesinäytteitä blokin seurantareijistä, jotka ovat 1,2,3 ja 7 cm etäisyydellä keskireiästä.
- Vesinäytteistä analysoidaan alkuaineet ICP-MS:llä.



Osa II - Laboratoriokokeet

- Kurun harmaa graniitin ^{14}C -PMMA huokosrakenne.
- Kokonaishuokoisuus 0.4%
- Mineraalirakeiden rajapintahuokoisuus dominoi
- Diffuusiokoe aloitettiin 9.2007 / kerran kuukaudessa näytteenotto / suunniteltu jatkuvan 12.2008 saakka.



3 cm

Osa III - Mallinnus

- Tulosten hyödyntäminen ydinjätteen loppusijoituksen turvallisuusanalyysissä uusien mallinnustyökalujen avulla.
- Mallinnus on suunniteltu toteutettavaksi yhteistyössä hollantilaisen partnerin kanssa (Institute for Energy, Joint Research Centre, Petten, The Netherlands) kokeellisten osatöiden päätteeksi vuosina 2009 ja 2010.

Kiitän mielenkiinnostanne!