

---

**REALIZACE A VYHODNOCENÍ  
LTD ETAPA III. EXPERIMENTU  
V GRIMSEL TEST SITE**

---

Autoři: RNDr. Václava Havlová, Ph.D.,  
Ing. Eva Hofmanová,  
Ing. Kateřina Kolomá, PhD.  
RNDr. Dagmar Trpkošová, Ph.D.

ÚJV Řež, a. s.

Praha, červen 2018

**Název projektu: Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site**

**Název dílčí etapové zprávy: Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site**

**Závěrečná zpráva**





Evidenční číslo objednatele: SO2014-061/číslo oblasti/číslo ESS

Evidenční číslo poskytovatele: SO2014-016

**ŘEŠITELÉ:**

**ÚJV Řež, a. s.**

**Autoři: RNDr. Václava Havlová, Ph. D.,  
Ing. Eva Hofmanová  
Ing. Kateřina Kolomá, PhD.  
RNDr. Dagmar Trpkošová, Ph. D.**

Schválil				
Funkce	Instituce	Jméno	Datum	Podpis
Osoba poskytovatele zodpovědná za technické řešení	ÚJV Řež, a. s.	RNDr. Václava Havlová, Ph.D.	19.12.2018	
Osoba poskytovatele zodpovědná za koordinaci projektu	ÚJV Řež, a. s.	RNDr. Václava Havlová, Ph.D.	19.12.2018	
Osoba objednatele zodpovědná za technické řešení	SÚRAO	Ing. Antonín Vokál, CSc.	18.12.18	
Osoba objednatele zodpovědná za koordinaci projektu	SÚRAO	Ing. Antonín Vokál, CSc.	18.12.18	



## Obsah

<b>1</b>	<b>Úvod</b>	<b>14</b>
1.1	Zdůvodnění projektu	14
1.2	Cíle projektu	14
1.3	Plánované schéma řešení projektu	15
<b>2</b>	<b>Experiment in-situ: LTD Phase II./III.</b>	<b>19</b>
2.1	Základní koncepce experimentu dlouhodobé difúze LTD Phase II./III.	19
2.2	Příprava vrtů pro experimentální práce	20
2.2.1	Experimentální vrt 10.001	21
2.2.2	Pozorovací vrt 12.001	21
2.3	Injekce radionuklidů do systému	22
2.4	Sledování poklesu aktivity v experimentálním intervalu vrtu BOLT 10.001	23
2.5	Výsledky poklesu aktivity stopovačů v experimentálním vrtu	23
2.6	Nárůst aktivity stopovačů v experimentálním vrtu	25
2.7	Měření nárůstu aktivity stopovačů v pozorovacím vrtu 12.001	29
2.8	Možný vliv advektivního toku na difúzi radionuklidů z experimentálního vrtu	30
2.9	Ukončení experimentu in-situ	31
2.9.1	Zkušenosti z ukončení experimentu LTD Phase I	31
2.9.2	Zhotovení pomocných vrtů pro experiment LTD Phase III.	33
2.9.2.1	Analýza migrace radionuklidů na základě zhotovení 3 pomocných vrtů	35
2.9.3	Převrtání experimentu	36
2.9.3.1	Vrtné práce pro zastižení experimentálního intervalu a zpracování vzorků z převrtu	39
<b>3</b>	<b>Laboratorní vyhodnocení vzorků z převrtu in-situ experimentu</b>	<b>43</b>
3.1.1	Shrnutí výsledků stanovení profilu radionuklidů v hornině z vrtu 17.004	49
<b>4</b>	<b>Laboratorní experimenty s horninovou maticí</b>	<b>51</b>
4.1	Charakterizace horninových vzorků pro laboratorní experimenty	51
4.2	Stanovení sorpčních vlastností hornin experimentálního intervalu	54
4.2.1	Sorpční experimenty na vytříděných materiálech	56
4.3	Difúzní experimenty	56
4.3.1.1	Vliv usměrnění zrn granitu na proces difúze radionuklidů	56
4.3.2	Vyhodnocení a shrnutí výsledků difúzních experimentů	61

Dlážděná 6 | 110 00 Praha 1 | ČR

tel.: +420 221 421 511 | fax: +420 221 421 544 | e-mail: info@sura0.cz | www.sura0.cz

IČ: 66000769 | Bankovní spojení: ČNB Praha 1, č. ú. 35-64726011/0710

Tato zpráva je výhradně majetkem SÚRAO a její šíření bez vědomí majitele je zakázáno.

Správa úložišť radioaktivních odpadů byla zřízena k 1. 6. 1997 Ministerstvem průmyslu a obchodu ČR jako státní organizace na základě atomového zákona (§ 26 zákona č. 18/1997 Sb. o mírovém využívání jaderné energie a ionizujícího záření). Od roku 2000 je SÚRAO ve smyslu § 51 zákona č. 219/2000 Sb. organizační složkou státu.

<b>5</b>	<b>Modelování in-situ experimentu .....</b>	<b>66</b>
5.1	Koncepční model .....	66
5.2	Primární kalibrace materiálových parametrů .....	68
5.3	Výsledky primární kalibrace matematického modelu .....	69
5.3.1	Post-mortem modelování (zahrnutí profilu aktivity z experimentu in-situ .....	75
<b>6</b>	<b>Význam výsledků experimentu LTD Phase III. pro český program vývoje HÚ 76</b>	
<b>7</b>	<b>Závěr .....</b>	<b>79</b>
<b>8</b>	<b>Citace a seznam literatury .....</b>	<b>81</b>
<b>9</b>	<b>Příloha 1 – Práce provedené v roce 2018.....</b>	<b>83</b>
9.1	Difúze sodíku <sup>22</sup> Na (2018) .....	83
9.2	Difúze barya a cesia.....	87

Dlážděná 6 | 110 00 Praha 1 | ČR

tel.: +420 221 421 511 | fax: +420 221 421 544 | e-mail: info@sura0.cz | www.sura0.cz

IČ: 66000769 | Bankovní spojení: ČNB Praha 1, č. ú. 35-64726011/0710

Tato zpráva je výhradně majetkem SÚRAO a její šíření bez vědomí majitele je zakázáno.

Správa úložišť radioaktivních odpadů byla zřízena k 1. 6. 1997 Ministerstvem průmyslu a obchodu ČR jako státní organizace na základě atomového zákona (§ 26 zákona č. 18/1997 Sb. o mírovém využívání jaderné energie a ionizujícího záření). Od roku 2000 je SÚRAO ve smyslu § 51 zákona č. 219/2000 Sb. organizační složkou státu.

## Seznam obrázků:

Obr. 1 Schematický náčrt konceptu dlouhodobého difúzního experimentu LTD Phase II./III. v podzemní laboratoři Grimsel.....	19
Obr. 2 Obrázek sestavy vrtů (vlevo pozorovací, vpravo experimentální) v podzemní laboratoři Grimsel. Obrázek NAGRA.....	20
Obr. 3 Schéma umístění sestavy vrtů v podzemní laboratoři Grimsel (směrem od tunelu kontrolovaného pásma GTS). Obrázek NAGRA.....	20
Obr. 4 Porovnání polohy puklin v jádrech z vrtu 10.001 a 12.001 s cílem zpřesnit informaci o vzdálenosti obou vrtů (Lanyon, 2015).....	21
Obr. 5 Pokles aktivity stopovačů $^3\text{H}$ , $^{22}\text{Na}$ , $^{36}\text{Cl}$ , $^{133}\text{Ba}$ a $^{134}\text{Cs}$ po 1265 dnech experimentu v experimentálním vrtu 10.001 .....	24
Obr. 6: Speciace Ba v podzemní Grimsel. $c = 10^{-8}$ M (vlevo) a $10^{-5}$ M (vpravo) .....	25
Obr. 7 Změna trendu poklesu aktivity v pozorovacím vrtu 10.001 pro nesorbující se radionuklidy $^3\text{H}$ , $^{36}\text{Cl}$ a málo se sorbující $^{22}\text{Na}$ .....	25
Obr. 8 Rozdíl hydraulických tlaků ve vrtech v průběhu experimentu LTD III. (prezentace Lanyon, Wettingen, 2017) .....	26
Obr. 9 Nárůst koncentrace Na a Cl (mg/l) v experimentálním vrtu .....	27
<i>Obr. 10 Nárůst koncentrace Ba, Se a pokles koncentrace Fe (mg/l) v experimentálním vrtu</i>	<i>27</i>
Obr. 11 Pevné částice, uvolněné po interakci aarského granitu s 0,1 M NaCl (identifikovala E. Hofmanová v průběhu experimentálních aktivit).....	28
Obr. 12 Nárůst aktivity $^3\text{H}$ , $^{36}\text{Cl}$ a $^{22}\text{Na}$ v pozorovacím vrtu 12.001 .....	29
Obr. 13 Hydraulický gradient mezi vrty (prezentace Lanyon, Wettingen, 2017) .....	30
Obr. 14 Migrace radionuklidů mezi vrty s použitím advektivní složky (prezentace Soler, Wettingen, 2017).....	31
Obr. 15 Vrtná souprava při převrtání experimentálního vrtu LTD Phase I. v roce 2009.....	32
Obr. 16 Schéma rozdělení horninového intervalu z aktivní zóny experimentu ve vrtu 06.0010 (foto NAGRA) .....	32
Obr. 17 Kupon z aktivního intervalu, připravený pro odeslání do ÚJV Řež, a. s. (foto NAGRA) .....	32
Obr. 18 Návrh na systém převrtání experimentálních vrtů 10.001 a 12.001 a jejich okolí (prezentace A. Martin, meeting projektu 2016) .....	33
Obr. 19 Schéma umístění pomocných vrtů (#1 - #3 a vrtů 10.001 a 12.001; dále je uvedeno schéma rozdělení vzorků mezi jednotlivé účastníky) .....	34
Obr. 20 Schéma rozdělení vzorků z vrtného jádra vrtu #2 : vzorek 2J1 - JAEA, 2U1 - ÚJV, 2H1 - Helsink; vpravo balení vzorků. ....	34
Obr. 21 Schematické znázornění pohybu radionuklidů s ohledem na pozici jednotlivých vrtů v systému experimentu .....	36

Dlážděná 6 | 110 00 Praha 1 | ČR

tel.: +420 221 421 511 | fax: +420 221 421 544 | e-mail: info@sura0.cz | www.sura0.cz

IČ: 66000769 | Bankovní spojení: ČNB Praha 1, č. ú. 35-64726011/0710

Tato zpráva je výhradně majetkem SÚRAO a její šíření bez vědomí majitele je zakázáno.

Správa úložišť radioaktivních odpadů byla zřízena k 1. 6. 1997 Ministerstvem průmyslu a obchodu ČR jako státní organizace na základě atomového zákona (§ 26 zákona č. 18/1997 Sb. o mírovém využívání jaderné energie a ionizujícího záření). Od roku 2000 je SÚRAO ve smyslu § 51 zákona č. 219/2000 Sb. organizační složkou státu.

Obr. 22 Schematický návrh převrtu (červeně), zohledňující i preferenční pohyb radionuklidů v systému experimentu. Srpen 2017 .....	36
Obr. 23 Schematický návrh převrtu systému experimentu 1 (zeleně). Říjen 2017. ....	37
Obr. 24 Schematický návrh převrtu systému experimentu 2 (šedá) ze směru experimentu LTDI. Říjen 2017. ....	37
Obr. 25 Schematický návrh převrtů systému experimentu 3 (oranžově). Říjen 2017. ....	38
Obr. 26 Schéma 2 vrtů, směřujících k experimentálnímu a pozorovacímu vrtu (nově zhotovené vrty 17.004 a 18.001). ....	39
Obr. 27 Vrtné jádro 17.004 (nahore) a 18.001 (dole) se zastižením experimentálního vrtu 10.001 (vlevo) a 12.001 (vpravo). ....	40
Obr. 28 Rozdělení vrtného jádra 17.004 na vzorky pro participující organizace. Vzorky pro Helsinkou univerzitu jsou označeny HYRL, pro JAEA J a pro ÚJV U. U vzorků U a J: R = vpravo, D = směr dolů, L = vlevo. U vzorků HYRL U = horní, L = dolní. ....	40
Obr. 29 Rozdělení vrtného jádra 17.004 na kupony pro ÚJV. Směr odběru vzorků od experimentálního vrtu: R = vpravo, D = směr dolů, L = vlevo. ....	41
Obr. 30 Rozdělení vrtného jádra 17.004 na kupony pro JAEA. Směr odběru vzorků od experimentálního vrtu: R = vpravo, D = směr dolů, L = vlevo. ....	41
Obr. 31 Příklady odběru vzorků z vrtného jádra 17.004 pro HYRL .....	42
Obr. 32 Balení kuponů pro ÚJV ve zdvojených nádobkách (pevně uzavřeno s cílem uchování vzniklé rovnováhy mezi vzorkem a atmosférou v nádobce). Pro obě instituce ÚJV a JAEA poskytlo ÚJV .....	42
Obr. 33 Jednotlivé vzorky a měření vzdálenosti A v CAL.....	44
Obr. 34 Přepočtené měrné aktivity <sup>133</sup> Ba na start in-situ experimentu stanovené CAL ÚJV Řež (vzorky U) a JAEA (vzorky J) .....	46
Obr. 35 Přepočtené měrné aktivity <sup>134</sup> Cs na start in-situ experimentu stanovené CAL ÚJV Řež (vzorky U) a JAEA (vzorky J). ....	47
Obr. 36 Přepočtené měrné aktivity <sup>22</sup> Na na start in-situ experimentu stanovené CAL ÚJV Řež (vzorky U) a JAEA (vzorky J). ....	47
Obr. 37 Shrnutí vzorků analyzovaných v HYRL pomocí sledování vydifundování <sup>3</sup> H a <sup>36</sup> Cl. 48	
Obr. 38 Vzorek GR 1 z vrtu 10.001 podzemní laboratoře Grimsel (experiment II.): aarský granit.....	52
Obr. 39 Pro srovnání vzorek z vrtu 006.010 (experiment LTD I.): grimselský granodiorit, ....	52
Obr. 40 Mikroskopický obraz aarského granitu s porfyrickou strukturou (qtz, plg, kfs, bt, chl, ep). Intenzivní duktilní deformace mění primární porfyrickou texturu na mylonitickou. Alterované velké krystaly K živce jsou nahrazeny světlou slídou a jílovými minerály. ....	54
Obr. 41 Odvrtání vzorků ke studiu vlivu usměrnění zrn z vrtného jádra 15.001 (A), vzorek kolmý (B) a paralelní (C). ....	57

Obr. 42 Průnikové křivky $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$ na orientovaných vzorcích (vlevo), pokles $^{22}\text{Na}$ aktivity ve zdrojovém rezervoáru pro paralelně orientované vzorky; srovnání metod detekce $^{22}\text{Na}$ (vpravo).....	58
Obr. 43 Grafické znázornění výsledných $D_e(^{36}\text{Cl})$ na vzorcích z monitorovacího vrtu a na orientovaných vzorcích za různých koncentrací NaCl (mol/l; Tab. 16); koncentraci $\text{Cl}^-$ v GGW1 je uvedena v Tab. 13 .....	60
Obr. 44 Srovnání hodnot efektivních difúzních koeficientů HTO pro aarský granit a vybrané české granitické horniny při porozitě určené z 0.bodu osychací křivky vzorku (plné symboly) a z průsečíku asymptot osychací křivky (otevřené symboly); data pro české horniny pochází z projektu Výzkumná podpora bezpečnostního hodnocení HÚ, financovaného SURAO. ....	61
Obr. 45 Výsledky difúzních experimentů s HTO a s anionty (vlevo efektivní difúzní koeficienty, vpravo formační faktory. ....	63
Obr. 46 Rozdělení simulovaného prostředí do 20 modelových vrstev.....	66
Obr. 47 Rozdělení simulovaného prostředí do 20 modelových vrstev (vlevo), zobrazení způsobu zahrnutí disperze do matematického modelu (vpravo). ....	67
Obr. 48 Zobrazení míry snížení aktivity v pozorovacím vrtu, kdy aktivita v pozorovacím vrtu je daná záchytem pouze určitého množství radionuklidů transportovaná v daném transportním směru od experimentálního k pozorovacímu vrtu .....	68
Obr. 49: Zobrazení rovnoměrného šíření radionuklidů od experimentálního k pozorovacímu vrtu.....	68
Obr. 50 Oříznutí strmého poklesu aktivity během prvního dne měření.....	69
Obr. 51 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^3\text{H}$ v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech). ....	70
Obr. 52 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^{22}\text{Na}$ v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech). ....	70
Obr. 53 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^{36}\text{Cl}$ v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech.- .....	71
Obr. 54 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^{133}\text{Ba}$ v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech). Byl kalibrován pouze parametr $D_e$ , parametr $K_d$ byl vzat z laboratorního měření (Havlová et al., 2015, frakce E > 8 mm).....	71
Obr. 55 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^{134}\text{Cs}$ v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech). Byl kalibrován pouze parametr $D_e$ , parametr $K_d$ byl vzat z laboratorního měření (Havlová et al., 2015, frakce E > 8 mm).....	72
Obr. 56 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^{133}\text{Ba}$ v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech), vedle parametru $D_e$ byl kalibrován i parametr $K_d$ .. ....	72

Obr. 57 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^{134}\text{Cs}$ v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech), vedle parametru $D_e$ byl kalibrován i parametr $K_d$ .....	73
Obr. 58 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^3\text{H}$ v pozorovacím vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech).....	73
Obr. 59 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity $^{36}\text{Cl}$ v pozorovacím vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech).....	74
Obr. 60 Hodnoty $D_e$ pro různé typy hornin: všechny analýzy kromě vzorků z Grimselu byly provedeny v rámci projektu Výzkumná podpora (prezentace V. Havlové na konferenci Migration 2017). .....	77
Obr. 61 Extrapolace výsledků laboratorních experimentů do reálného systému (Tachi, meeting partnerů 2015) .....	78
Obr. 62 Experimentální data poklesu (nahore) a nárůstu (dole) objemové aktivity $^{22}\text{Na}$ v rezervoárech .....	84
Obr. 63 Vliv hodnoty $K_d$ na tvar modelových křivek v cílovém rezervoáru (nahore), ve zdrojovém rezervoáru (dole) v rané (vlevo) a pozdní (vpravo) době experimentu.....	85
Obr. 64 Zobrazení získaných $^{22}\text{Na}$ profilů ve vzorcích W a Z po 160 dnech difúze společně s modelovými křivkami z fitování průnikových křivek .....	86
Obr. 65 Profil $^{22}\text{Na}$ po skončení průnikového experimentu na grimselském granodioritu a jeho vyhodnocení (Tachi a kol. (2015)) .....	87
Obr. 66 Experimentální data poklesu (nahore) a nárůstu (dole) objemové aktivity $^{133}\text{Ba}$ a $^{134}\text{Cs}$ v rezervoárech .....	89
Obr. 67 Vývoj vyhodnocené hodnoty efektivního difúzního koeficientu barya u vzorku D pomocí difúzních toků ve zdrojovém a cílovém rezervoáru.....	89
Obr. 68 Ukázka skládání difúze skrz dvě komponenty granitu odhadnutých z toků barya ve zdrojovém a cílovém rezervoáru.....	90



## Seznam tabulek:

Tab. 1 Schéma řešení prací v rámci projektu (modře posunuté práce v rámci projektu; červeně práce, které nebylo možno splnit v důsledku posunu prací) .....	16
Tab. 2 Aktivita radionuklidů (MBq) a koncentrace Se(VI) (mol/l) ve směsném roztoku, injektovaném v roce 2014 pro LTD Phase III. ....	22
Tab. 3 Rozpis vzorkování roztoku z experimentálního systému vrtu 10.001 (plán prací mezinárodního projektu).....	23
Tab. 4 Hodnoty koncentrací stabilních prvků ve vzorcích z experimentálního vrtu 10.001, včetně koncentrace Se, a koncentrace v pozorovacím vrtu červeně) 12.001 (informace Giroud, 14.12. 2017) .....	28
Tab. 5 Výsledky screeningového stanovení celkové aktivity ve vzorcích vody, v níž byly louženy vzorky z pomocných vrtů #1 - #3 (kapalinové scintilační spektroskopie, přístroj Hidex SL300) .....	35
Tab. 6 Vyhodnocení výhod a nevýhod jednotlivých navrhovaných metod převrtání systému vrtů 10.001 a 12.001. ....	38
Tab. 7 Přeměnové konstanty použité při přepočtu aktivit na datum spuštění in-situ experimentu .....	44
Tab. 8 Difúzní profil radionuklidů $^3\text{H}$ , $^{22}\text{Na}$ , $^{36}\text{Cl}$ a $^{122}\text{Ba}$ a $^{134}\text{Cs}$ – rozměry, hmotnosti a přepočtené stanovené aktivity radionuklidů na datum spuštění in-situ experimentu ( $k = 1$ ). Vzorky z vrtu 17.004, okolí experimentálního vrtu. ....	45
Tab. 9 Výsledky stanovení specifických aktivit $^3\text{H}$ a $^{36}\text{Cl}$ na HYRL.....	48
Tab. 10 Minerální složení hornin (%), studovaných v projektu LTD: horniny z podzemní laboratoře Grimsel, grimselský granit (vrt 06.010, experiment I.), aarský granit (vrt 10.001, experiment II.) – Havlová et al. (2013a); E (experimentální vrt 10.001) a M (monitorovací vrt 12.001) – zrnitostní frakce C (0,125-0,63 mm), D (0,63-0,8 mm) a E (nad 0,8 mm).....	53
Tab. 11 Chemické složení hornin (%), studovaných v daném projektu: horniny z podzemní laboratoře Grimsel, grimselský granit (vrt 06.010, experiment I.) a aarský granit (vrt 010.001, experiment II.) – Havlová et al. (2013a).....	53
Tab. 12 Výsledné hodnoty $K_d$ ( $\text{ml}\cdot\text{g}^{-1}$ ) pro $^{22}\text{Na}$ , $^{133}\text{Ba}$ a $^{134}\text{Cs}$ a 5 zrnitostních frakcí aarského granitu z vrtu 10.001 (Havlová et al. 2013a) a Se(VI) (Havlová et al. 2015); podmínky experimentů - AN anaerobní, AE aerobní.....	55
Tab. 13 Porovnání složení syntetických podzemních vod pro experimentální práce na vzorcích aarského granitu: N.A. znamená: nebylo analyzováno. Celkový křemík stanoven metodou ICP-MS.....	55
Tab. 14 Výsledné hodnoty $K_d$ ( $\text{ml}\cdot\text{g}^{-1}$ ) pro $^{134}\text{Cs}$ , $^{85}\text{Sr}$ a $^{133}\text{Ba}$ na frakci D a z ní ručně vyříděných minerálních fází – zleva křemen, slída a chlorit . ....	56
Tab. 15 Výsledky HTO difúzních experimentů na vzorcích z experimentálního, monitorovacího vrtu a orientovaných vzorků.....	58

Tab. 16 Výsledky efektivních difúzních koeficientů z průnikových difúzních experimentů s $^{36}\text{Cl}$ a $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$ na vzorcích z experimentálního a monitorovacího vrtu a na orientovaných vzorcích z rozrážky 15.001 (Havlová et al. 2017) .....	59
Tab. 17 Výsledky efektivních difúzních koeficientů z průnikových difúzních experimentů s $^{22}\text{Na}$ a $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$ na vzorcích z experimentálního a monitorovacího vrtu a na orientovaných vzorcích z rozrážky 15.001 (Havlová et al. 2017) .....	60
Tab. 18 Souhrnná tabulka s výsledky difúzních experimentů se vzorky z vrtů 10.001 a 12.001 v prostředí syntetické podzemní vody GGW1 za aerobních podmínek (jiné podmínky jsou označeny u příslušného experimentu; AN anaerobní, 7 pH = 7, 9 pH = 9, IS iontová síla, Cs/Sr přidány stabilní nosič ve formě chloridu o koncentraci 0,01 mM. ....	64
Tab. 19 Konstantní modelové parametry .....	69
Tab. 20 Výsledné kalibrované parametry po kalibraci matematického modelu na měřená data bez úpravy parametru $K_d$ .....	74
Tab. 21 Výsledné kalibrované parametry po kalibraci matematického modelu na měřená data s úpravou parametru $K_d$ u radionuklidů $^{133}\text{Ba}$ a $^{134}\text{Cs}$ .....	74
Tab. 22 Vstupní parametry pro vyhodnocení průnikových difúzních experimentů s $^{22}\text{Na}$ .....	85
Tab. 23 Neurčitost difúzních parametrů vyplývající z neurčitosti sorpčního distribučního koeficientu .....	86
Tab. 24 Shrnutí výsledků z průnikových difúzních experimentů $^{22}\text{Na}$ a HTO .....	87

## Seznam textových příloh:

## Seznam elektronických příloh:

Dlážděná 6 | 110 00 Praha 1 | ČR

tel.: +420 221 421 511 | fax: +420 221 421 544 | e-mail: info@sura0.cz | www.sura0.cz

IČ: 66000769 | Bankovní spojení: ČNB Praha 1, č. ú. 35-64726011/0710

Tato zpráva je výhradně majetkem SÚRAO a její šíření bez vědomí majitele je zakázáno.

Správa úložišť radioaktivních odpadů byla zřízena k 1. 6. 1997 Ministerstvem průmyslu a obchodu ČR jako státní organizace na základě atomového zákona (§ 26 zákona č. 18/1997 Sb. o mírovém využívání jaderné energie a ionizujícího záření). Od roku 2000 je SÚRAO ve smyslu § 51 zákona č. 219/2000 Sb. organizační složkou státu.

**Seznam použitých zkratk:**

BDZ	Borehole Disturbed Zone
CAL	Centrální analytická laboratoř ÚJV Řež, a.s.
CSCI	španělská Národní rada pro výzkumGTS Grimsel Test Site
CVŘ	Centrum výzkumu Řež
D	směr dolů (down)
HÚ	hlubinné úložiště
HYRL	Helsinki University (Finsko)
JAEA	Japanese Atomic Energy Agency
L	směr doleva (left)
LTD	Long Term Diffusion
MaCoTe	Material Corrosion Test
NAGRA	National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste, Švýcarsko
PSI	Paul Scherrer Institute, Švýcarsko
PVP Bukov	podzemní výzkumné pracoviště Bukov, ČR
R	směr doprava (right)
TDE	Through-diffusion experiment, Finsko
TF GWFTS	Task Force Groundwater Flow and Transport of Solutes
VJP	vyhořelé jaderné palivo

## Abstrakt

Tato závěrečná zpráva shrnuje výsledky projektu „Realizace a vyhodnocení LTD etapa III. experimentu v Grimsel Test Site“, jehož cílem je posoudit míru reprodukovatelnosti výstupů laboratorního studia difúze do neporušené horninové matrice v porovnání s výsledky experimentu v reálném prostředí a možnost následné implementace do reálných podmínek hostitelské horniny a do modelů vyhodnocujících difúzi radionuklidů do horniny. Zpráva shrnuje výsledky dosažené do poloviny roku 2018. Projekt samotný od počátku řešení nabral prakticky rok zpoždění, které bylo umocněno ještě navíc problémy při převrtání experimentu in-situ v podzemní laboratoři Grimsel, některé z prací proto nemohly být dokončeny, včetně finálního vyhodnocení a definování, jak postupovat při scale up dat, která jsou získávána v laboratoři, pro prostředí reálného horninového masivu.

Průběh projektu velmi významně poukázal na některé aspekty experimentů in situ a laboratorních prací. Difúze může být ovlivněna advektivní složkou i v horninové matrici bez puklin. Foliace horniny však pro tento jev s největší pravděpodobností nemá velký význam. Sestava experimentu in-situ pak charakter neradiální difúze musí odrážet a musí být kombinovaná nejméně ze 3 vrtů. Na migraci radionuklidů má spíše vliv charakter horniny a její struktura, včetně deformací, které ji postihly v průběhu geologického vývoje, a míra přeměny minerálů primárních na sekundární.

Aniontová exkluze je v magmatických horninách z Grimsel URL přítomna. Klasický koncept efektivního difúzního koeficientu se avšak nejeví jako zcela schopný popsat difúzi heterogenním prostředí granitických hornin. Tento jev je s největší pravděpodobností ovlivněn intergranulárními a intragranulárními póry v různých minerálech granitu, a to zejména u sorbujících se radionuklidů.

Práce provedené v roce 2018 jsou uvedeny v Příloze zprávy.

## Klíčová slova

*difúze, horninová matrice, radionuklidy, advekce*

## Abstract

This final report summarizes the results of the project "Realization and evaluation of the LTD Phase III. experiment at the Grimsel Test Site", which aims at evaluation of the reproducibility of laboratory diffusion study toward an intact rock matrix results and the possibility of subsequent application into real host rock conditions and radionuclide diffusion models. The report summarizes the results achieved until mid-2018. The project itself gained practically two years of delay since the injection, which was further reinforced by the problems of in situ drilling in the Grimsel underground laboratory. Therefore, some of the works could not be completed, including the final evaluation and the definition, how to proceed with the scale up of the data obtained in the laboratory for a real rock massive environment.

The course of the project highlighted some aspects of in situ experiments and laboratory activities. Diffusion in the rock matrix can also be affected by the advective component of transport even in the massive non-fissured rock environment. Rock foliation is unlikely to be of such significance. Setting up an in-situ experiment must then reflect the possibility of non-radial diffusion and must be combined with at least 3 boreholes. The migration of radionuclides is dependent on the rock origin and on its structure, including the deformations that affected it during geological development, and the rate of conversion of primary minerals to secondary minerals.

Anionic exclusion does not have a significant influence in the magmatic rocks of the Grimsel URL, even in the presence of secondary clay minerals. The classical concept of effective diffusion coefficient appears to be not so effectively applicable to the diffusion description as a heterogeneous process. Diffusion is most likely influenced by intergranular and intragranular pores in different granite minerals, especially for sorbing radionuclides.

The work done in 2018 is set out in the Annex to the report

## .Keywords

*diffusion, rock matrix, radionuclides, advection*

## 1 Úvod

### 1.1 Zdůvodnění projektu

Difúze do neporušené horninové matrice je považována za jeden z nejdůležitějších procesů retardace radionuklidů při umístění HÚ v granitoidních horninách. Stále však existuje řada problematických oblastí, jež nejsou doposud dostatečně popsány, a to:

- otázka, zda jsou laboratorní experimenty vůči in-situ experimentům nadhodnoceny,
- vytvoření komplexního modelu heterogenního pórového prostoru pro granitoidní horniny,
- popis kontaktní plochy mezi horninovou maticí a podzemní vodou.

Z těchto nejistot vycházel i tento projekt LTD Phase III., v jehož rámci byly studovány migrační vlastnosti magmatických hornin, relevantní pro hodnocení bezpečnosti HÚ, se zaměřením na difúzní a sorpční procesy. Tyto procesy byly zkoumány jak v laboratorních podmínkách (malé měřítko), tak v prostředí podzemní laboratoře Grimsel (reálné měřítko), aby bylo zajištěno co největší přiblížení k reálnému prostředí hostitelské horniny hlubinného úložiště. Výstupy z experimentálních prací budou dále využity pro verifikaci modelů zaměřených na popis difúze do horninové matrice granitových hornin, jež umožní mimo jiné predikci dosahu radionuklidů od jejich zdroje.

Projekt úzce navazuje na experiment LTD Phase I. a II., jehož výsledky byly zpracovány ve zprávě Havlová et al. (2013b), a jež představuje jeden z mála difúzních experimentů, při nichž byly v reálném prostředí horninového masivu použity radionuklidy.

Jde o unikátní projekt, neboť je v něm, na rozdíl od mnoha projektů v ČR, využito součinnosti experimentů malého a reálného měřítka (laboratoř/podzemní laboratoř) a modelování. V ČR doposud nikdy neprobíhal projekt studující difúzi radionuklidů do horninové matrice v přímé návaznosti na vrtné práce na studované lokalitě. Podstatný je rovněž fakt, že podzemní laboratoř Grimsel je pro prostředí ČR bližší (složení podzemní vody, charakter hornin apod.) než prostředí Skandinávského štítu.

V předkládané zprávě jsou prezentovány průběžné výsledky prací za roky 2014 - 2018. Vzhledem k posunu prací na projektu in-situ nebylo možno do termínu ukončení tohoto projektu plně dokončit stanovení všech převrtů z in-situ experimentu a post-mortem modelování, které je na jejich výsledky navázané.

### 1.2 Cíle projektu

Cílem bylo posouzení míry reprodukovatelnosti laboratorních výsledků (sorpční a difúzní experimenty) v porovnání s experimenty in-situ a možnost následné implementace do reálných podmínek hostitelské horniny.

Cíle projektu je možno rozšířit do následujících bodů:

1. Kvantifikace procesu difúze v reálném horninovém prostředí granitického masivu s využitím reálných radioaktivních stopovačů.
2. Identifikace nejistot scale efektu při přenosu dat z malého (laboratorního) do velkého měřítka (reálný masiv).

 <b>SÚRAO</b>	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

3. Verifikace modelových nástrojů pro modelování migrace radionuklidů do horninového prostředí pro experimentální set-up experimentální vrt – pozorovací vrt.

Projekt probíhá v úzké součinnosti mezinárodního týmu (NAGRA, Helsinská univerzita, JAEA, ÚJV Řež, a. s.). Práce ÚJV Řež, a. s. jsou realizovány jak v ÚJV Řež, a. s. (laboratorní část), tak v podzemní laboratoři Grimsel ve Švýcarsku ve spolupráci se zahraničními partnery (experiment in-situ, vzorkování po ukončení in-situ experimentu).

ÚJV Řež, a. s. měl dle předpokladů v rámci předkládaného projektu spolupracovat s partnery na průběhu experimentálních prací in-situ (zejména na průběh, ukončení a převrtání aktivního experimentu ve vrtu v podzemní laboratoři Grimsel). Jeho úkolem bylo se podílet na stanovení migračních vlastností vzorků granitů odebraných v podzemní laboratoři Grimsel (sorpční a difúzní experimenty), jejich vyhodnocení a srovnání s výsledky in-situ experimentu a predikčního modelování. Schéma prací vychází ze zkušeností z LTD Phase I. Základním předpokladem pro rozšíření znalostí v dané oblasti je rozšíření souboru radioaktivních stopovačů, použitých pro nový experiment, a jiná experimentální sestava vrtu Monopole II.

Další část projektu představovala práce na vzorcích odebraných po ukončení in-situ experimentu po nejméně 1,5 letech kontaktu s radionuklidy (finálně po 3 letech kontaktu), jejich analýza a srovnání jejich výsledků s laboratorními a modelovanými výsledky. Už na počátku projektu se předpokládalo, že práce mohou být v případě úspěšného průběhu in-situ experimentu posunuty do pozdějšího termínu v důsledku zpoždění projektu. Práce na projektu tedy nejsou zcela ukončeny (hlavně u zahraničních partnerů) a poslední meeting projektu proběhne v listopadu 2018.

### 1.3 Plánované schéma řešení projektu

Plánované řešení projektu se do roku 2016 řídilo schématem uvedeným v SoD v Tab. 1. Veškeré aktivity jsou prováděny v rámci WP5 projektu LTD III. Všechny aktivity budou navazovat na milníky projektu LTD Phase III.

V roce 2016 však nedošlo k plánovanému ukončení experimentu v podzemní laboratoři Grimsel. Došlo k němu až ve druhé polovině roku 2017, kdy byl experiment ukončen a experimentální interval byl s komplikacemi (viz dále) převrtán a analyzován jako poslední komponenta nutná pro komplexní vyhodnocení celého experimentu. Toto vyhodnocení však partneři projektu posunuli na konec roku 2018. Finální meeting projektu je plánován na listopad 2018.

Report NAGRA je po meetingu projektu v červnu 2018 plánován na rok 2019.

Posun činností byl v letech 2017 a 2018 nahrazen doplňujícími činnostmi (doplňující laboratorní výzkum, experimenty s doplňujícími radionuklidy, analýzy vzorků z 3 doplňujících experimentálních vrtů apod.)

Tab. 1 Schéma řešení prací v rámci projektu (modře posunutá práce v rámci projektu; červeně práce, které nebylo možno splnit v důsledku posunu prací)

Výstupy	Původní plán řešení	Změny v řešení	Termín
1	<p>Zahájení prací.</p> <p>Komunikace s koordinátorem projektu a spolupráce na zahájení aktivního experimentu v podzemní laboratoři Grimsel. Participace na průběhu in-situ experimentu v podzemní laboratoři Grimsel.</p> <p>Výstup 1: Průběžná zpráva o průběhu projektu</p>		<p>Do 14 dnů po uzavření smlouvy</p> <p>9.12.2013</p>
2	<p>Participace na průběhu in-situ experimentu v podzemní laboratoři Grimsel.</p> <p>Zahájení laboratorních prací.</p> <p>Výstup 2: Průběžná zpráva o průběhu projektu</p>		9.12.2014
3	<p>Pokračování laboratorních prací.</p> <p>Zpracování a analýza vzorků z horninového jádra kontaktního intervalu po ukončení experimentu.</p> <p>Předložení zprávy o laboratorních experimentech partnerům projektu v mezinárodním konsorciu.</p> <p>Výstup 3: Průběžná zpráva o průběhu projektu</p>		9.12.2015
4	<p>Dokončení laboratorních prací. Zpracování výsledků.</p> <p>Zpracování a analýza vzorků z horninového jádra kontaktního intervalu po ukončení experimentu.</p> <p>Předložení zprávy o analýze převrtaných hornin partnerům projektu v mezinárodním konsorciu (dle průběhu projektu).</p> <p>Post mortem modelování.</p> <p>Výstup 4: Průběžná zpráva o průběhu projektu</p>	<p>Participace na průběhu in-situ experimentu v podzemní laboratoři Grimsel, průběžné vyhodnocování výsledků poklesu aktivity v zájmovém intervalu vrtu v podzemní laboratoři Grimsel a nárůstu aktivity v monitorovacím vrtu.</p> <p><i>Pokračování laboratorních prací, včetně provedení doplňujících experimentálních prací (difúzní experimenty)</i></p> <p><b>Výstup 3:</b> Průběžná zpráva o průběhu projektu</p>	9.12.2016



		Reporty NAGRA	
5	<p>Dokončení laboratorních prací. Vyhodnocení výsledků.</p> <p>Post mortem modelování.</p> <p>Předložení zprávy o analýze převrtaných hornin partnerům projektu v mezinárodním konsorciu (dle průběhu projektu).</p> <p>Poskytnutí podkladů partnerům v mezinárodním konsorciu pro zpracování zprávy o modelování v rámci projektu.</p> <p>Poskytnutí podkladů partnerům v mezinárodním konsorciu pro zpracování závěrečné zprávy projektu.</p> <p>Vyhodnocení výsledků predikčního modelování, výsledků in-situ, laboratorních experimentů a post mortem modelování a jejich vyhodnocení.</p> <p>Výstup 5: Průběžná zpráva o průběhu projektu</p>	<p>Ukončení experimentu v podzemní laboratoři Grimsel.</p> <p>Zahájení převrtání</p> <p>Pokračování laboratorních prací.</p> <p>Post mortem modelování.</p> <p><b>Výstup 4:</b> Průběžná zpráva o průběhu projektu</p> <p>Reporty NAGRA</p>	9.12.2017
6	<p>Dokončení prací, zpracování závěrečné zprávy projektu</p> <p>Výstup 6: Závěrečná zpráva projektu</p>	<p>Vyjmutí horninového jádra a jeho rozdělení participantům projektu.</p> <p>Zpracování a analýza vzorků z horninového jádra kontaktního intervalu po ukončení experimentu.</p> <p>Dokončení laboratorních prací</p> <p>Dokončení analýz horninových vzorků z aktivní části vrtu z podzemní laboratoře Grimsel (pouze 1 série).</p> <p>Post mortem modelování a srovnání s experimentálními výsledky</p> <p>Vyhodnocení výsledků predikčního modelování, výsledků in-situ, laboratorních experimentů a post mortem modelování.</p> <p>Dokončení prací, zpracování závěrečné zprávy projektu,</p>	29.6.2018

 <b>SÚRAO</b>	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

		databáze parametrů získaných během řešení projektu. <b>Výstup 5:</b> Závěrečná zpráva projektu Reporty NAGRA (plánován v návaznosti na mezinárodní projekt 2019)	
--	--	--	--

- **Modře:** posun prací, provedeno oproti plánu
- **Červené:** posun pracím, nedokončeno

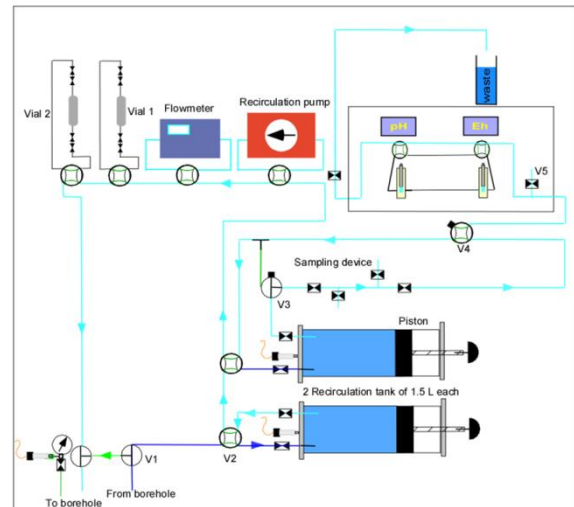
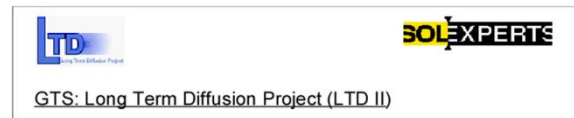
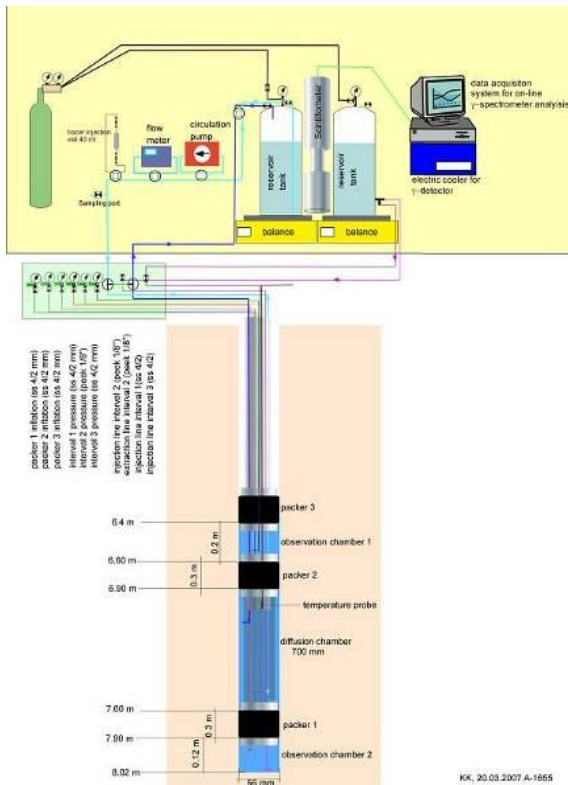
## 2 Experiment in-situ: LTD Phase II./III.

Experiment LTD Phase II./III. vychází z experimentu LTD Phase I. a z prací vykonaných v rámci LTD Phase II. Výsledky těchto prací byly shrnuty ve zprávě Havlové et al. (2014).

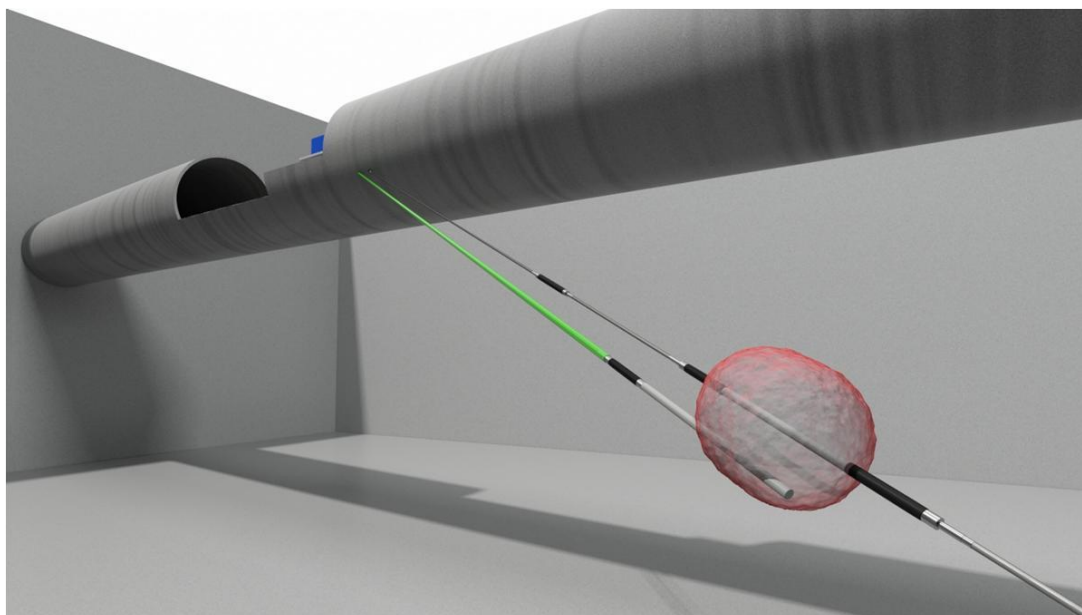
### 2.1 Základní koncepce experimentu dlouhodobé difúze LTD Phase II./III.

Příprava prací pro nový dlouhodobý difúzní experiment II. byla detailně shrnuta ve zprávách Havlové et al. (2010 a 2011).

Koncept dlouhodobého difúzního experimentu LTD Phase II. byl původně stejný jako v prvním experimentu dlouhodobé difúze (viz Obr. 1). V roce 2012 v rámci přechodu na fázi III. došlo však po dlouhé diskuzi mezi účastníky projektu ke změně koncepce experimentu. Bylo rozhodnuto o zhotovení druhého pozorovacího vrtu v blízkosti experimentálního, ve kterém by bylo možno sledovat přímo (na základě odběru vzorků roztoku) průnik stopovačů. Sestava experimentu je uvedena na Obr. 2 a Obr. 3.

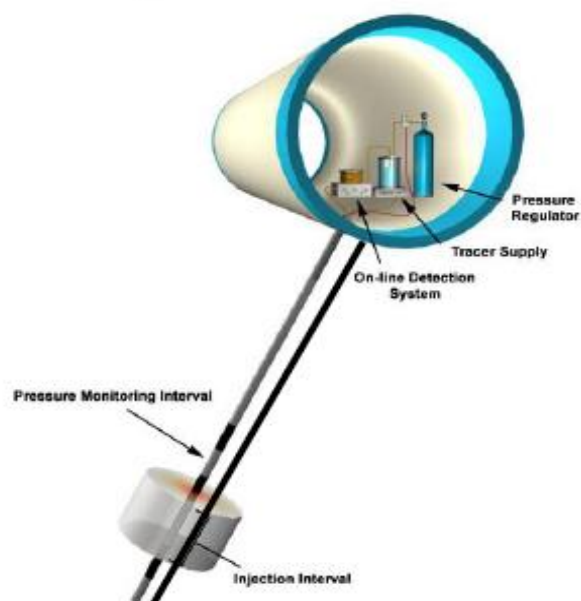


Obr. 1 Schematický nákrés konceptu dlouhodobého difúzního experimentu LTD Phase II./III. v podzemní laboratoři Grimsel



Obr. 2 Obrázek sestavy vrtů (vlevo pozorovací, vpravo experimentální) v podzemní laboratoři Grimsel.  
Obrázek NAGRA

### Mono-dipole



Obr. 3 Schéma umístění sestavy vrtů v podzemní laboratoři Grimsel (směrem od tunelu kontrolovaného pásma GTS). Obrázek NAGRA

## 2.2 Příprava vrtů pro experimentální práce

Experiment dlouhodobé difúze LTD Phase II./III. byl umístěn na konci kontrolovaného pásma podzemní laboratoře Grimsel do vrtu BOLT 10.001 s využitím know-how a některých částí zařízení z minulých prací. Pozorovací vrt BOLT 12.001 byl plánovaně umístěn cca 10 cm od vrtu experimentálního.

### 2.2.1 Experimentální vrt 10.001

Vrt 10.001 byl zhotovený pro experiment v roce 2010, je lokalizován v horninách tzv. centrálního aarského granitu. Vrt byl zhotoven až do hloubky 18 m. Jako testovací úsek byl zvolen interval 13,98-14,7 m od stěny tunelu. Minerální složení hornin typu aarského granitu (světlý metagranit, středně až hrubě zrnitý, s mírně paralelní texturou) je uvedeno ve zprávě Havlové et al. (2011).

Podrobný popis osazení vrtu je uveden ve zprávě Havlová et al. (2015).

### 2.2.2 Pozorovací vrt 12.001

Pozorovací vrt 12.001 byl zhotoven v přibližné vzdálenosti 10 cm od vrtu 10.001 (2018). Tato vzdálenost byla volena na základě výsledků prvního experimentu, kdy i zkreslený profil v hornině prokázal, že  $^3\text{H}$  za 2 roky proniklo do vzdálenosti minimálně 16 cm (Havlová et al., 2013a).

Stanovení vzdálenosti mezi oběma vrty bylo řešeno jednak pomocí optické televize Flotron, jednak srovnáním s reálným popisem jádra a výpočtem vzdálenosti na základě polohy puklin na něm (viz **Chyba! Nenalezen zdroj odkazů.**; Lanyon 2015).



Obr. 4 Porovnání polohy puklin v jádrech z vrtu 10.001 a 12.001 s cílem zpřesnit informaci o vzdálenosti obou vrtů (Lanyon, 2015)

Na základě doplňujícího průzkumu a výpočtů směrů puklin z optického průzkumu vrtu a rekonstrukce vrtného jádra (Lanyon 2015) došli hodnotitelé k závěru, že nejlepším odhadem vzdálenosti obou vrtů je **10 cm s rozsahem 9-14 cm**. Tento závěr zpřesnil výsledek optického výzkumu pomocí kamery Flotron  $21 \text{ cm} \pm 14 \text{ cm}$  (Lanyon, 2015).

**Po převrtání byla zjištěna reálná vzdálenost obou vrtů 18,5 cm (2018) – viz Obr. 28.**

Horniny, zachycené v tomto vrtu, jsou téměř výhradně typu aarského granitu. Zájmový interval v hloubce pod 13,95 m byl od ostatních částí vrtu oddělen hydraulickým pakrem.

Svrchní část vrtu (0,26 m až 12,96 m) byla vyplněna polymerizující pryskyřicí za účelem zabránění hydraulického propojení mezi zájmovým intervalem a lamprofyrovými zvodněnými polohami.

Ve druhé polovině roku 2013 byl systém obou vrtů zcela připraven pro injekci radionuklidů. Nicméně vzhledem k původním plánům mezinárodního projektu i tohoto projektu SÚRAO byly práce zpožděny minimálně o 1 rok.

## 2.3 Injekce radionuklidů do systému

Všechny tři roztoky stopovačů (ÚJV I., ÚJV II. a  $^{36}\text{Cl}$  z Helsinské univerzity) byly v listopadu 2013 napojeny na cirkulační systém. Injekce radionuklidů byla provedena 5. 3. 2014. otevřením kohoutu, kterým byl z cirkulačního systému napuštěn roztok (Havlová et al. 2014).

Aktivita radionuklidů injektovaná do systému je uvedena v Tab. 2.

Tab. 2 Aktivita radionuklidů (MBq) a koncentrace Se(VI) (mol/l) ve smíšeném roztoku, injektovaném v roce 2014 pro LTD Phase III.

Radionuklid	$T_{1/2}$	Typ emitovaného záření	Experiment II. Celková aktivita (MBq) v březnu 2014
$^3\text{H}$ (HTO)	12,3 roku	$\beta$	193
$^{22}\text{Na}$	2,6 roku	$\gamma$	2,06
$^{36}\text{Cl}$	301 000 let	$\beta$	3,6
$^{134}\text{Cs}$	2,06 roku	$\gamma$	1,8
$^{133}\text{Ba}$	10,5 roku	$\gamma$	3,7
Se(VI)	Stabilní	Stabilní	$10^{-5}$ mol/l



## 2.4 Sledování poklesu aktivity v experimentálním intervalu vrtu BOLT 10.001

Roztok v experimentálním systému byl sledován na základě pravidelných odběrů vzorků v experimentálním a pozorovacím vrtu dle Tab. 3. Vzorek byl vždy po odběru převezen do Paul Scherrer Institute (PSI), kde byl analyzován.

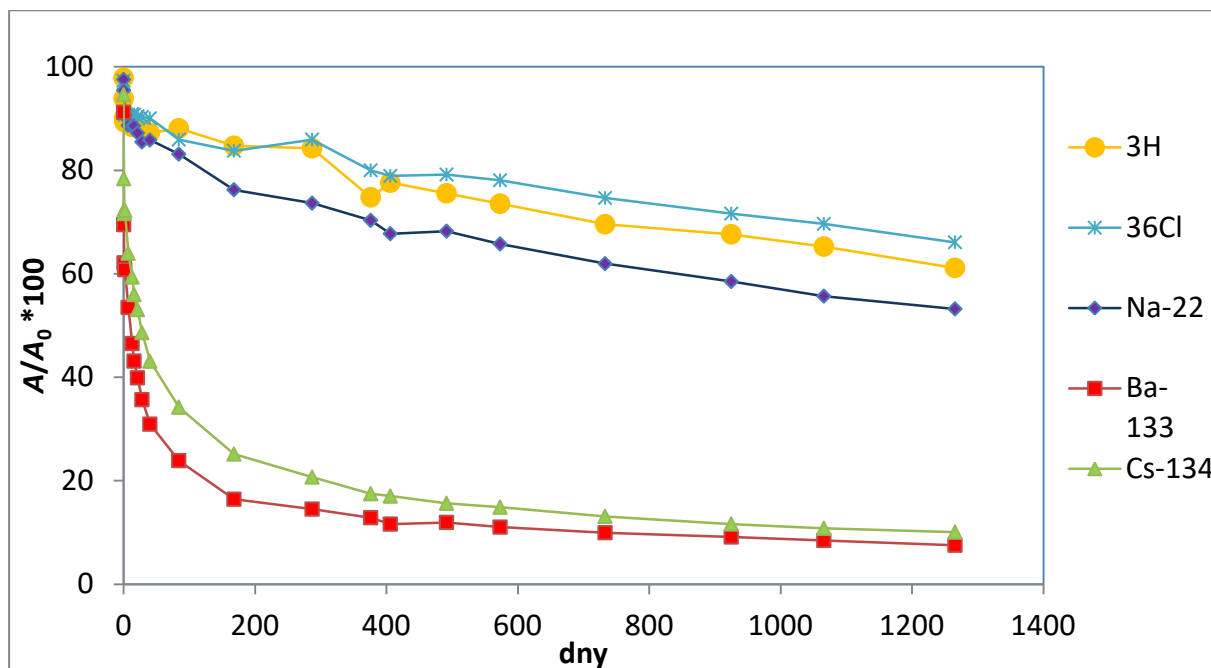
Tab. 3 Rozpis vzorkování roztoku z experimentálního systému vrtu 10.001 (plán prací mezinárodního projektu)

Sampling Schedule			Injection date	03/03/2014 09:00		Total volume	3244 ml		
Sample n°	Date	Time	Elapsed time [days]	pH [-]	Eh [mV]	Samples	Planned volume (mL)	Actual volume (mL)	Observation borehole (mL)
LTDII-1	03/09/2013	14:52	2.5 months	6.88	42	50 mL for pH and Eh 20 mL chem. sample for PSI	70	90.00	
LTDII-2	07/11/2013	09:14	11 days before injection	6.65	74.28	50 mL for pH and Eh 20 mL chem. sample for PSI	70	70.40	
LTDII-3	11/11/2013	09:00	3 hour before mixing	6.65	48.1	50 mL for pH and Eh 60 mL chem. sample for PSI (incl. Org.)	110	129.89	
	11/11/2013	12:05:H3 and Cl36 14:27: Cs134	Start of mixing						
LTDII-4	05/03/2014	08:42	0.5 hour before injection 08:30			5 mL for Jost	5	6.86	5
	05/03/2014	08:56	Start injection						
LTDII-5	05/03/2014	11:11	0d 2h15			5 mL for Jost	5	5.90	
LTDII-6	05/03/2014	15:29	0d 6h33			5 mL for Jost	5	4.28	
LTDII-7	06/03/2014	09:05	1d 0h09	6.64	-44	50 mL for pH and Eh 20 mL chem. sample for PSI	70	80.66	
LTDII-8	06/03/2014	09:15	1d 0h19			5 mL for Jost	5	5.66	
LTDII-9	06/03/2014	14:24	1d 5h28			5 mL for Jost	5	6.24	
LTDII-10	07/03/2014	09:45	2d 0h49			5 mL for Jost	5	4.52	
LTDII-11	12/03/2014	09:35	7d 0h39			5 mL for Jost	5	5.70	
LTDII-12	18/03/2014	09:00	13d 0h04			5 mL for Jost	5	6.03	
LTDII-13	21/03/2014	09:42	16d 0h46			5 mL for Jost	5	6.00	
LTDII-14	26/03/2014	13:51	21d 4h55			5 mL for Jost	5	4.88	
LTDII-15	02/04/2014	08:45	27d 23h49			5 mL for Jost	5	5.87	
LTDII-16	17/04/2014	10:27	43.06			5 mL for Jost	5	6.74	
LTDII-17	28/05/2014	10:26	84.06			5 mL for Jost	5	6.61	
LTDII-18	28/05/2014	10:50	84.08	6.68	0.76	50 mL for pH and Eh 60 mL chem. sample for PSI (incl. Org.)	110	115.23	
LTDII-19	28/07/2014	08:56	145.00			5 mL for Jost	5		
LTDII-20	28/09/2014	08:56	207.00			5 mL for Jost	5		
LTDII-21	28/11/2014	08:56	268.00			5 mL for Jost	5		
LTDII-22	28/03/2015	08:56	388.00			5 mL for Jost	5		
LTDII-23	23/02/2016	08:56	720.00			5 mL for Jost	5		
LTDII-21	23/02/2016	08:56	720d (+C)			50 mL for pH and Eh 60 mL chem. sample for PSI (incl. Org.)	110		5
TOTAL Volume (mL) =							630	561	10
Wast during pressure drop evaluation								20	
Total volume extracted								581	
Volume remain in the loop								2663	
Percentage of start volume								82.69	%

## 2.5 Výsledky poklesu aktivity stopovačů v experimentálním vrtu

Aktivity stopovačů byly průběžně měřeny v PSI a výsledky byly předávány všem partnerům projektu. V odebraných vzorcích byly stanoveny aktivity  $^3\text{H}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  (Bq/g). Kromě toho byly periodicky stanoveny i koncentrace neaktivního Se (viz dále). Stanovení koncentrace Se je prováděno pouze ve vybraných vzorcích, neboť je pro jeho stanovení nutný odběr většího objemu vzorku roztoku z cirkulačního systému.

Výsledky poklesu aktivity stopovačů po 1 265 dnech trvání experimentu jsou vyneseny na Obr. 5. Všechny hodnoty měřené aktivity jsou opraveny na poločas rozpadu.



Obr. 5 Pokles aktivity stopovačů  $^3\text{H}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  po 1265 dnech experimentu v experimentálním vrtu 10.001

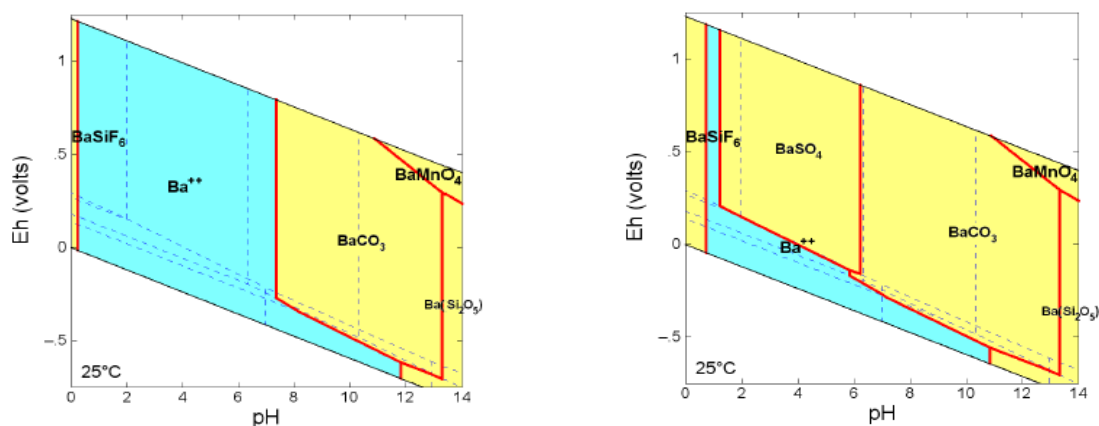
Jak je patrné z obrázku, aktivita stopovačů (zde vyjádřená jako relativní aktivita  $A/A_0$ ) klesá tak, jak bylo předpokládáno (viz Obr. 5 a **Chyba! Nenalezen zdroj odkazů.**; Havlová et al. 2017)

Aktivita radionuklidů do doby ukončení experimentu

- $^3\text{H}$  poklesla o 39 %
- $^{36}\text{Cl}$  poklesla o 34 %
- $^{22}\text{Na}$  poklesla o 47 %
- $^{133}\text{Ba}$  poklesla o 92,5 %
- $^{134}\text{Cs}$  poklesla o 90 %

Aktivita konzervativních stopovačů  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  poklesla nejméně, následovaná  $^{22}\text{Na}$  jako málo sorbujícího se stopovače. Aktivity  $^{134}\text{Cs}$  a  $^{133}\text{Ba}$  poklesly výrazně – aktivita  $^{133}\text{Ba}$  poklesla prakticky o 92,5 %. Tento předpoklad vyvrací zmínky v literatuře odkazující k malé sorpci  $^{133}\text{Ba}$  na granit a k podobným sorpčním vlastnostem jaké vykazuje např.  $^{90}\text{Sr}$  (např. Byegard et al., 1998). Pokles koncentrace aktivity tohoto stopovače může být však ovlivněn i jeho speciací v podzemní vodě Grimsel (viz Obr. 6). Za pH cca 9 dochází s největší pravděpodobností ke srážení  $\text{BaCO}_3$ , ačkoli obsah uhličitánů je v podzemní vodě Grimsel poměrně nízký - 27,5 mg/l (viz Guimera et al. 2006; ve zprávě Havlové et al. 2014). Na porovnání - koncentrace uhličitánů v podzemní vodě v na lokalitě Kraví hora se pohybuje kolem 100 - 220 mg/l (záznamy L. Rukavičkové, ČGS).

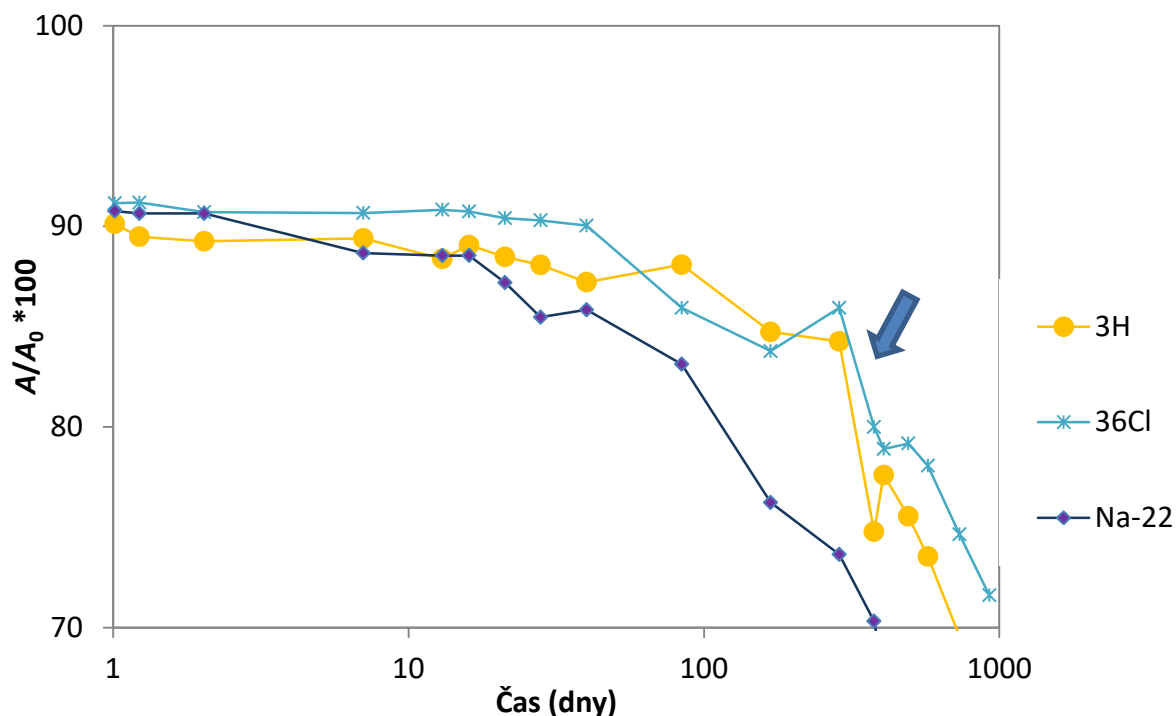




Obr. 6: Speciace Ba v podzemní Grimsel.  $c = 10^{-8} \text{ M}$  (vlevo) a  $10^{-5} \text{ M}$  (vpravo)

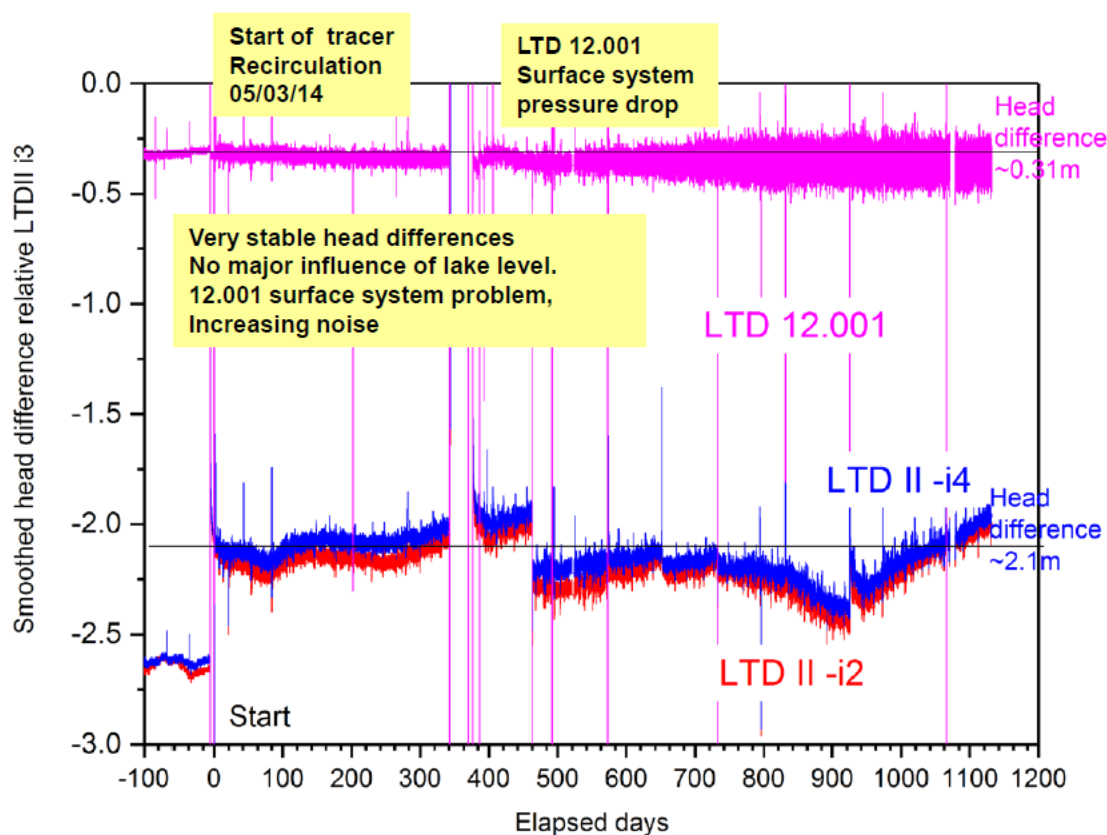
## 2.6 Nárůst aktivity stopovačů v experimentálním vrtu

Co se týče nárůstu aktivity v pozorovacím vrtu, v průběžných zprávách (Havlová et al., 2016) byla diskutována událost kolem 375 dne, která pravděpodobně vedla k urychlení pohybu  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  ve směru k pozorovacímu vrtu (podrobněji v následující kapitole). Kromě toho však i kolem cca 84. dne došlo i k výraznějšímu poklesu aktivity radionuklidů než v předcházejícím období u  $^3\text{H}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a o něco méně výrazně pro  $^{22}\text{Na}$ , tedy u nesorbujících se radionuklidů.  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  tímto jevem nebyly postiženy.



Obr. 7 Změna trendu poklesu aktivity v pozorovacím vrtu 10.001 pro nesorbující se radionuklidy  $^3\text{H}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a málo se sorbující  $^{22}\text{Na}$

K tomuto problému se vrátil Lanyon ve své prezentaci na meetingu projektu ve Wettingenu v roce 2017 (viz Obr. 8), kdy je jasně patrný problém s tlakem v systému kolem 375 dne. K žádnému jinému vysvětlení konsorcium nedošlo.



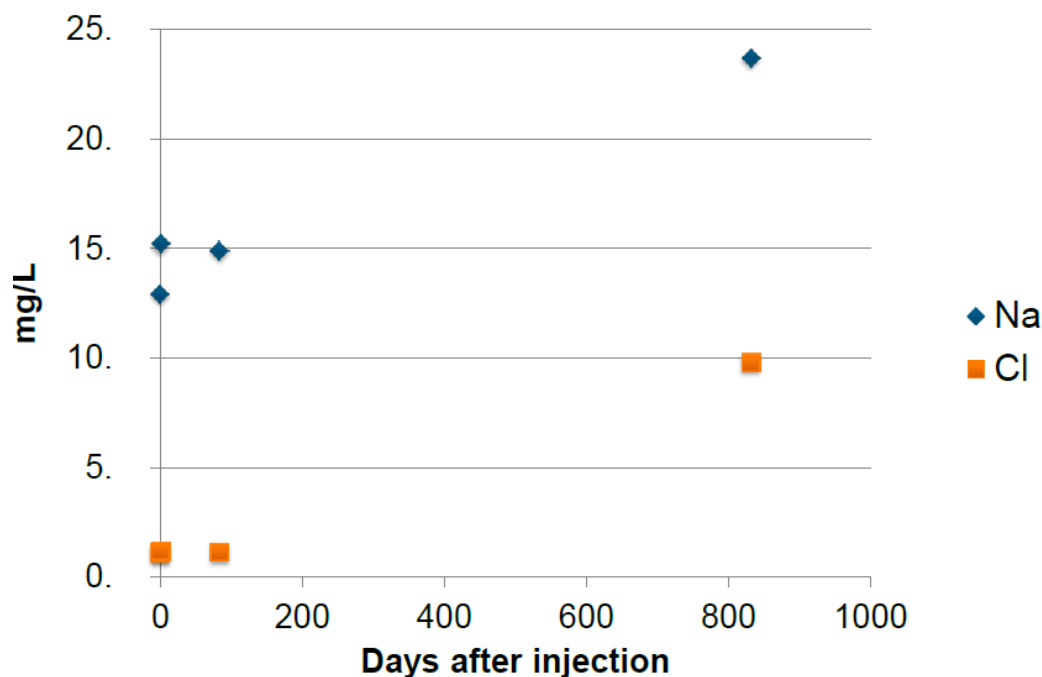
Obr. 8 Rozdíl hydraulických tlaků ve vrtech v průběhu experimentu LTD III. (prezentace Lanyon, Wettingen, 2017)

Po problematických měřeních koncentrace Se v období 2015 - 2016 (viz Havlová et al., 2015 a 2016) NAGRA ve spolupráci s PSI změnila postup stanovení Se (filtrace, upravené stanovení ICP-MS). Bohužel dle našeho názoru tato změna do výsledků, či spíše do jejich diskrepancí, nevnese příliš jasno. Bylo zjištěno, že vzorky odebrané z pozorovacího vrtu nebyly filtrovány a obsah Se pak mohl být ovlivněn přítomností koloidních částic. NAGRA rovněž předpokládala, že v průběhu roku proměří přirozenou koncentraci Se v podzemní vodě Grimsel, která doposud nebyla stanovena. Zásadní informací bylo, že po přeměření koncentrace Se dosáhla koncentrace 353  $\mu\text{g/l}$  v pozorovacím vrtu a z ní lze usuzovat, že došlo k průniku Se do pozorovacího vrtu LTD 12.001 (viz Tab. 4). Ve zcela recentních informacích ze 14.12.2017 po provedení nových analýz v jiné firmě však po Se není ani stopy (viz Tab. 4). Důvod absence Se nepodařilo zjistit.

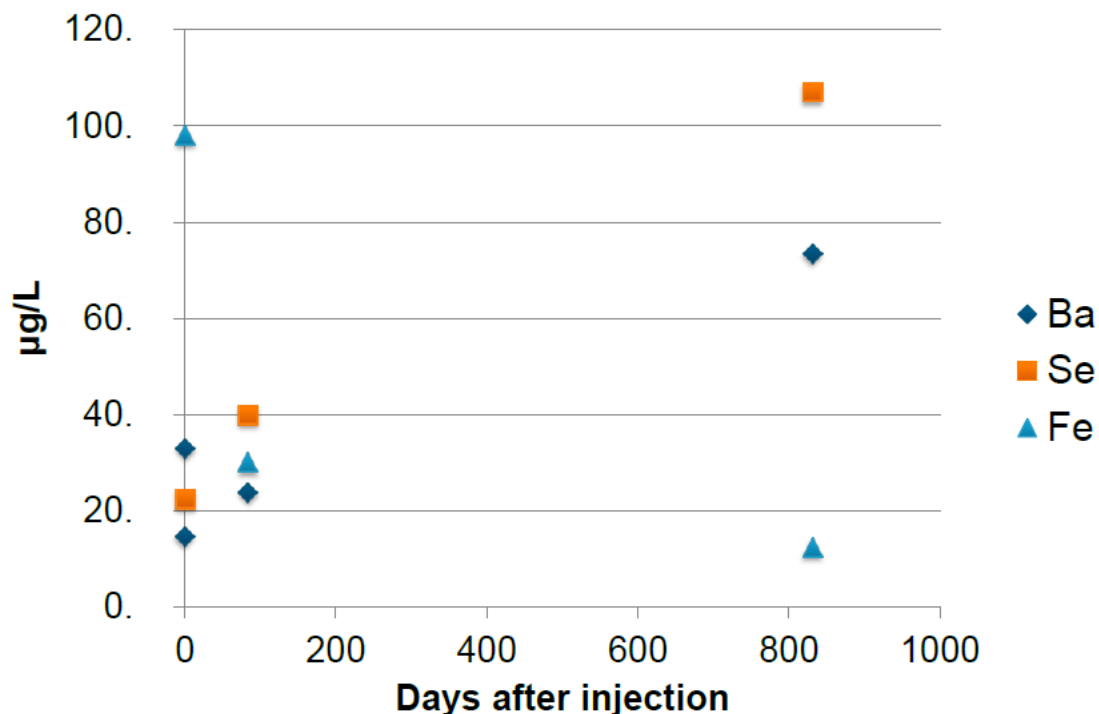
Lze se tedy domnívat, že k nejasnostem v obsahu Se přispívají především nejasnosti v analytických postupech a procedurách. NAGRA předpokládala přeměření starších vzorků a úpravu postupů. Zatím to nebylo dokladováno.

Kromě toho byly pozorovány i některé zajímavé trendy ve změně složení vzorků roztoku (stabilní prvky) odebraných z experimentálního vrtu. Došlo k nárůstu Na, Cl (viz Obr. 9), Ba, Se (viz Obr. 10), Mg, Sr, Ca a K (zde velmi výrazně, viz Obr. 9) a naopak klesá obsah Fe (viz Obr. 10) a Al vůči předchozím stanovením (viz Obr. 10). V prvním okamžiku byla diskuze

směřována k tomu, zda nemohlo dojít k nárůstu koncentrace Na vlivem nosiče pro radioaktivní  $^{22}\text{Na}$ , ale po přepočtu, kdy bylo zjištěno, že koncentrace by dosáhla 7,55 mg/l, se toto zdá nepravděpodobné. Navíc dochází k nárůstu obsahu takových prvků, jako je K a Sr (viz Tab. 4), které nebyly v žádném z nosičů obsaženy.



Obr. 9 Nárůst koncentrace Na a Cl (mg/l) v experimentálním vrtu



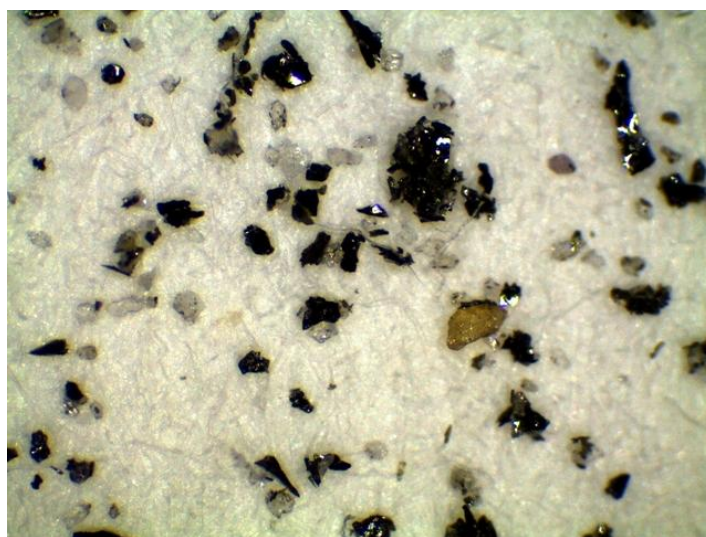
Obr. 10 Nárůst koncentrace Ba, Se a pokles koncentrace Fe (mg/l) v experimentálním vrtu

Tab. 4 Hodnoty koncentrací stabilních prvků ve vzorcích z experimentálního vrtu 10.001, včetně koncentrace Se, a koncentrace v pozorovacím vrtu červeně) 12.001 (informace Giroud, 14.12. 2017)

	Active samples				Grimsel range (2015, unpubl.data)	Observation	Observation	Observation
	LTDII-3 #####	LTDII-7 6.3.2014	LTDII-18 28.5.2014	LTDII-27 14.6.2016		LTD-II Ob9 14.6.2016	LTD-II Ob12 3.5.2017	LTD-II Ob15 6.9.2017
Na mg/L	12,9	15,2	14,9	23,7	10--12	57,2	61,5	53,
Sr µg/L	169,	184,	210,	385,	150--286	470,	630,	570,
Ba µg/L	14,6	32,9	23,8	73,5	n.d.--21	58,9	< 30	< 10
Mg µg/L	66,2	76,8	86,3	172,	n.d.--142	47,8	< 0.1	0,4
Al µg/L	54,6	57,1	60,5	23,5	1.2--88	1695,	1400,	1200,
Fe µg/L	<5	98,	30,	12,4	n.d.--980	163,	< 50	< 50
Se µg/L	<15	22,4	39,8	107,		<15	< 10	< 10
SeO <sub>4</sub> µg/L				114,		640,		
Si mg/L	5,2	5,04	5,04	6,76	2.9--5.4	6,76	15,	12,8
Li µg/L	34,4	33,2	34,8	43,7	5.6--45	16,1	10,	11,
K µg/L	579,	606,	719,	970,	11--1730	1451,	1,4	3,5
Ca mg/L	7,54	8,18	10,	20,1	4.3--9.2	9,3	23,5	21,
F mg/L	5,76	5,49	5,41	5,19	3.7--6.1	1,43	1,8	0,78
Cl mg/L	1,09	1,16	1,13	9,79	0.22--3.6	0,42	0,33	2,2
SO <sub>4</sub> mg/L	6,14	5,97	6,14	6,03	0.45--11.05	1,96	2,	1,9
TIC mg/L	6,18			15,2	4.3--7.8			
TOC mg/L	2,56			5,3				

NAGRA bohužel neměla k dispozici jiná data než z roku 2016, a to vzhledem k omezeným možnostem vzorkování roztoku pro analýzy.

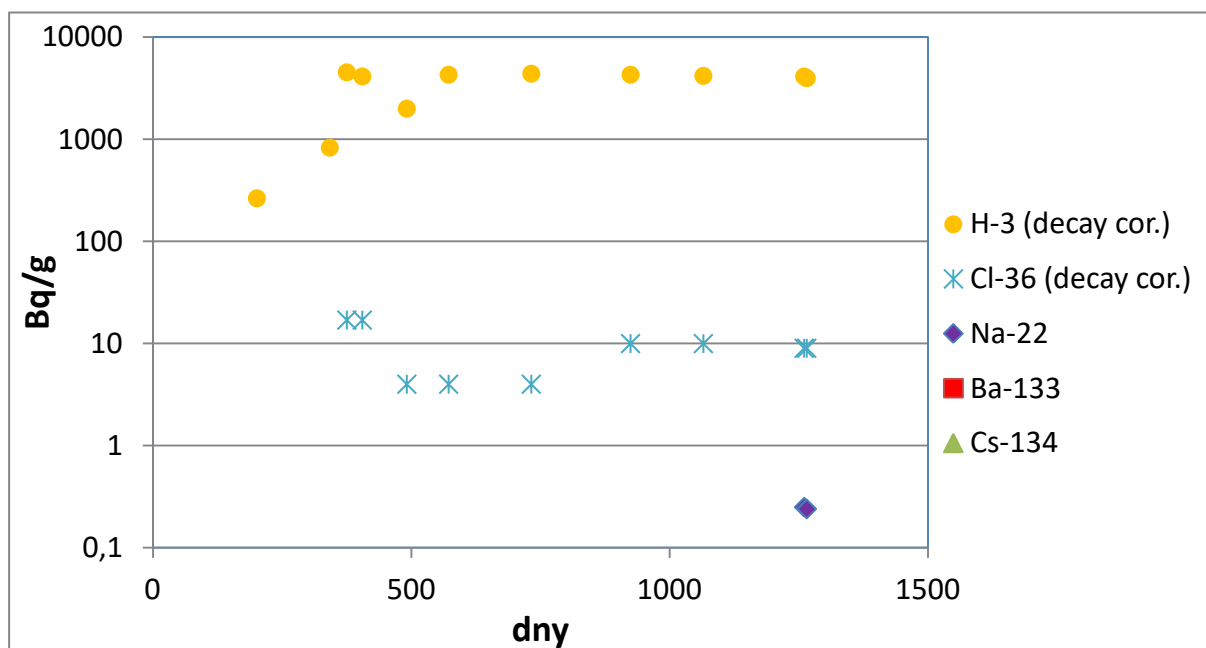
Otázkou je, zda dlouhodobým kontaktem roztoku s horninou ve vrtu nemůže docházet k vymývání koloidních částic či např. minerálů (jak např. pozorovala E. Hofmanová v průběhu experimentálních prací), čímž by mohlo docházet k nabohacení roztoku (viz Obr. 11). Jde pravděpodobně o slídy, tj. odpovídající by mohl být nárůst Mg, Ca a K, případně Sr. Nicméně nárůst Na, Cl, Ba je diskutabilní.



Obr. 11 Pevné částice, uvolněné po interakci aarského granitu s 0,1 M NaCl (identifikovala E. Hofmanová v průběhu experimentálních aktivit)

## 2.7 Měření nárůstu aktivity stopovačů v pozorovacím vrtu 12.001

Od března 2015 byla odebírána podzemní voda i z pozorovacího vrtu 12.001. Po 200 dnech od injekce radionuklidů byla ve vzorku poprvé identifikována aktivita  $^3\text{H}$  vyšší než pozadí. Po 375 dnech aktivita  $^3\text{H}$  vzrostla. Po dvou odběrech opět poklesla a více méně setrvala na konstantních hodnotách. Po 375 dnech byl v pozorovacím vrtu zjištěn i zvýšený obsah  $^{36}\text{Cl}$ , nicméně následně se jeho aktivita opět snížila na prakticky pozadovou hodnotu, která se více méně nemění, viz Obr. 12.



Obr. 12 Nárůst aktivity  $^3\text{H}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{22}\text{Na}$  v pozorovacím vrtu 12.001

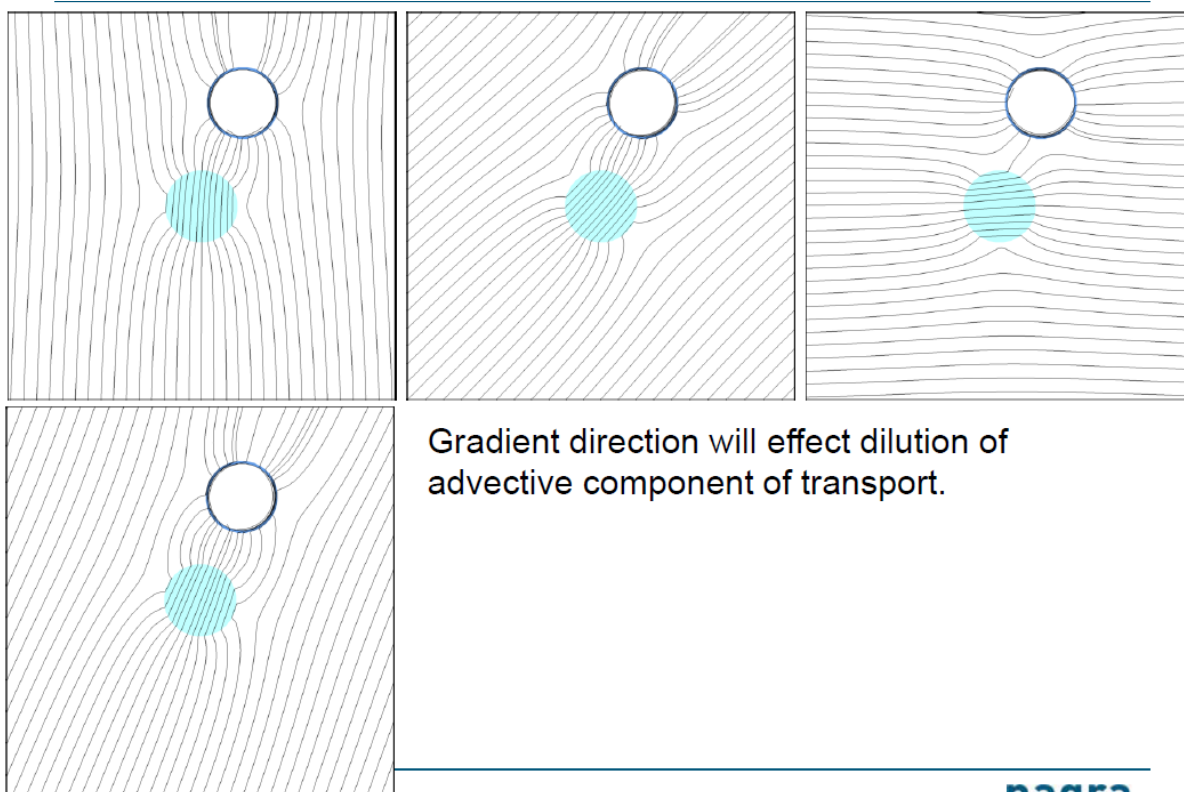
Jak již bylo uvedeno v předchozích zprávách Havlové et al. (2015 a 2016), v této době identifikoval Solexpert, zodpovědný za instalaci a obsluhu experimentu, pokles piezometrických hladin v systému a pokles tlaku i v jednotlivých sekcích multipakru. Lze se domnívat, že vlivem tlakování byl "urychlen" pohyb fronty nesorbujících se radionuklidů  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$ , kdy  $^{36}\text{Cl}$  se pravděpodobně objevil v pozorovacím vrtu předčasně a u  $^3\text{H}$  výrazněji narostla aktivita. To se potvrdilo při dalších dvou odběrech, kdy se hodnota aktivity  $^3\text{H}$  opět snížila a podstatně se neměnila. U  $^{36}\text{Cl}$  poklesla na hodnotu kolem 10 Bq/g, která se prakticky nemění.

Co však bylo nejpodstatnější, v roce 2017 byl poprvé v pozorovacím vrtu detekován i  $^{22}\text{Na}$ , sice ve velmi nízké aktivitě (0,22 Bq/g), ale vzhledem k velmi dobré měřitelnosti radionuklidu je jeho přítomnost nezpochybnitelná. Postup "mraku" stopovačů naznačovala i vysoká koncentrace Se v první analýze (viz Tab. 4), v dalších odběrech však její přítomnost nebyla potvrzena. Je tedy patrné, že nesorbující se či málo se sorbující stopovače ( $^3\text{H}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ) dosáhly pozorovacího vrtu a bude možno stanovit jejich profil v hornině mezi oběma vrtu.

Partneři bohužel nereflektovali návrh ÚJV, aby v tomto stádiu experiment ještě prodloužili a zajistili tak odebrání minimálně 2 vzorků z pozorovacího vrtu pro confirmaci průniku mraku radionuklidů. Po naléhání Helsinské univerzity byl experiment ukončen.

## 2.8 Možný vliv advektivního toku na difúzi radionuklidů z experimentálního vrtu

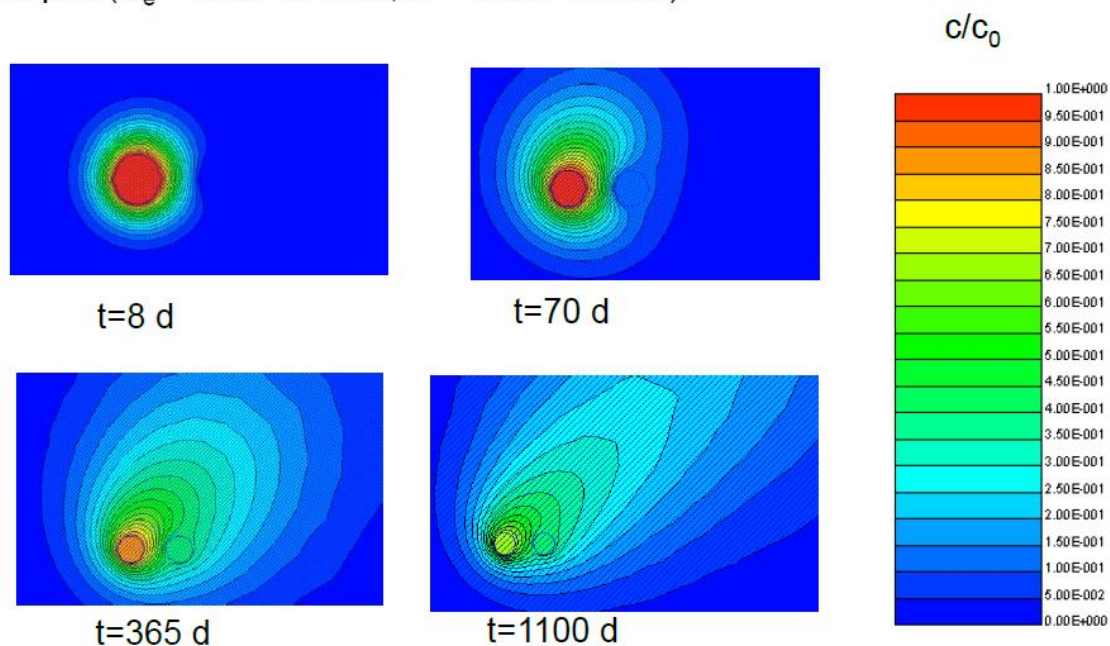
Již z průběhu experimentu in-situ bylo patrné, že difúze nemá radiální charakter, nýbrž dochází k usměrněné migraci radionuklidů do okolní horniny. Ve své prezentaci v roce 2017 se tomu věnoval B. Lanyon (2017).



Obr. 13 Hydraulický gradient mezi vrty (prezentace Lanyon, Wetingen, 2017)

Soler se ve své prezentaci na meetingu ve Wetingenu a ve svém posteru na konferenci Migration 2017 zaměřil na 2D modelování migrace radionuklidů mezi vrty (viz Obr. 14 a Příloha 1), a to i s použitím advektivní složky. Na výsledcích je patrné, že se mrak injektovaných radionuklidů s největší pravděpodobností nešíří radiálně a dochází k usměrněnému transportu



2D plot ( $D_e = 3.3e-12 \text{ m}^2/\text{s}$ ,  $K = 1.33e-11 \text{ m/s}$ )


Obr. 14 Migrace radionuklidů mezi vrtů s použitím advektivní složky (prezentace Soler, Wettingen, 2017)

Tyto předpoklady byly potvrzeny dalšími výsledky (viz dále)

## 2.9 Ukončení experimentu in-situ

Ze znalostí, získaných v experimentu LTD Phase I., mělo vyjít i převrtání experimentu LTD Phase III.

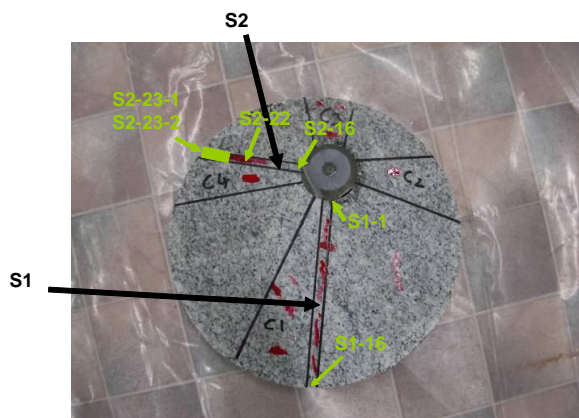
### 2.9.1 Zkušenosti z ukončení experimentu LTD Phase I.

Experiment LTD Phase I. byl ukončen v roce 2009. Roztok radionuklidů byl vypuštěn, pak vytažen a do experimentálního vrtu byla injektována pryskyřice tak, aby nedocházelo ke zpětné difúzi radionuklidů do vrtu. Následně byl zahájen převrt větším průměrem (30 mm) – viz Obr. 15.



Obr. 15 Vrtná souprava při převrtání experimentálního vrtu LTD Phase I. v roce 2009

Hornina kolem aktivního intervalu byla vyzdvižena, nařezána a rozdělena participantům dle jejich přání a plánovaných analýz (ÚJV Řež, a. s. a Helsinská univerzita; Havlová et al., 2011 – Obr. 16 a Obr. 17).



Obr. 16 Schéma rozdělení horninového intervalu z aktivní zóny experimentu ve vrtu 06.0010 (foto NAGRA)



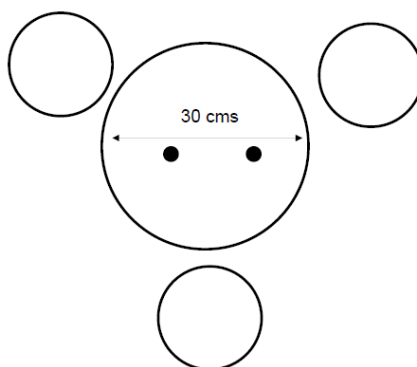
Obr. 17 Kupon z aktivního intervalu, připravený pro odeslání do ÚJV Řež, a. s. (foto NAGRA)

Ve vzorcích (kuponech) doručených do ÚJV Řež, a. s. byly analyzovány aktivity  $^3\text{H}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  a  $^{22}\text{Na}$ . Pro stanovení  $^3\text{H}$  v pórové vodě granitových vzorků byla aplikována metoda kapalinové scintilační spektrometrie po oddělení kapalně fáze ze vzorku destilací. Aktivita izotopů  $^{134}\text{Cs}$  ( $^{22}\text{Na}$ ) byla měřena gamaspektrometricky s použitím HPGe detektoru. Pro měření byly použity vzorky v původních vzorkovnicích po destilaci  $^3\text{H}$  (Havlová et al., 2013b). Z těchto dat byly následně sestaveny profily radionuklidů v jednotlivých směrech. Z naměřených dat, tedy vývoje aktivit roztoku a konečných aktivit v granitu, byla provedena celková bilance radionuklidů v systému, vztahená k datu ukončení experimentu (3. 8. 2009). Za předpokladu, že ke ztrátě aktivity mohlo dojít pouze při manipulaci se vzorky granitu a nikoli z nádrže, vychází bilance naměřeného množství (hmotnostní aktivity radionuklidů v hornině): 2,45 % pro  $^3\text{H}$ , 13 % pro  $^{22}\text{Na}$  a 67,9 % pro  $^{134}\text{Cs}$  (Havlová et al., 2013b; Soler et al., 2013).



## 2.9.2 Zhotovení pomocných vrtů pro experiment LTD Phase III.

Vzhledem ke zkušenostem z experimentu LTD Phase I. a s ohledem na vědomí, že nedochází k radiální difúzi, byl postup při převrtání LTD Phase III. mnohem náročnější. Zahrnoval i více vrtů a větší hloubku experimentálního intervalu. Již v roce 2016 bylo navrženo následující schéma převrtání (viz Obr. 18). Základem bylo převrtání obou vrtů vrtnou korunkou o větším průměru tak, aby byly zastíženy oba vrty, jak experimentální, tak pozorovací. Vzhledem k tomu, že vše nasvědčovalo tomu, že je migrace stopovačů zčásti ovlivněna advektivním tokem či usměrněním zrn horniny (nebo i oběma faktory), pak bylo naplánováno vrtání 3 pomocných vrtů, jejichž analýza (roztok, hornina) mělo umožnit stanovit směr šíření radionuklidů v horninovém prostoru.

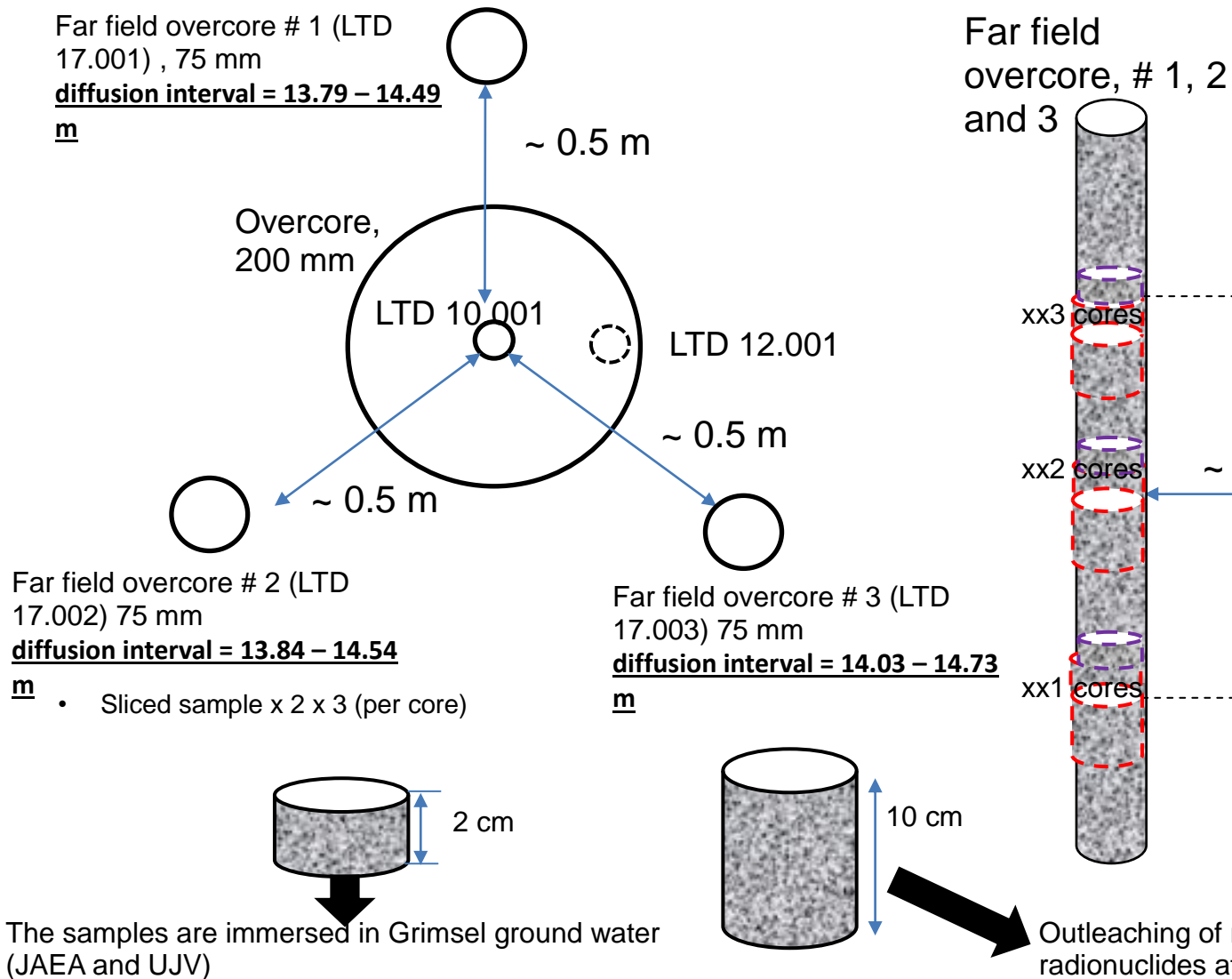


Obr. 18 Návrh na systém převrtání experimentálních vrtů 10.001 a 12.001 a jejich okolí (prezentace A. Martin, meeting projektu 2016)

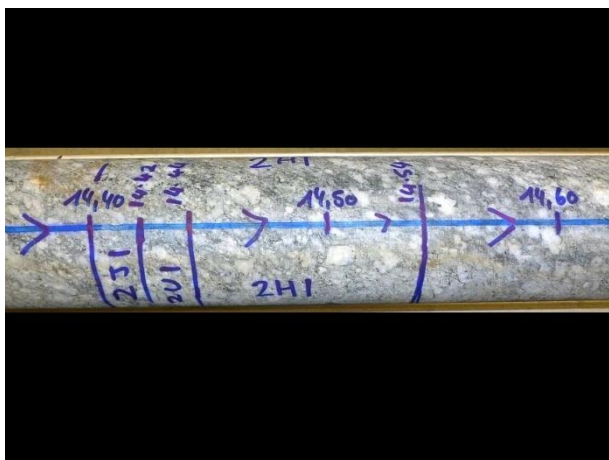
Ke zhotovení 3 pomocných vrtů dle schématu, uvedenému na Obr. 18 došlo v měsících srpnu a září 2017. Byly zhotoveny 3 vrty o průměru 75 mm až do hloubky, odpovídající cca hloubce injekčního intervalu (cca 14.5 m). Vrty byly umístěny ve vzdálenosti 0,5 m od vrtu LTD 10.001 každý - viz Obr. 19. Za předpokladu, že do této vzdálenosti mohlo proniknout  $^3\text{H}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{22}\text{Na}$ , byla jádra kontrolována na gamma aktivitu (nebyla kvantifikována) a byly odebrány vzorky pro stanovení  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  z vrtného výplachu. Vrtné jádro bylo vyzvednuto a rozděleno dle požadavků partnerů (Helsinské univerzity, JAEA a ÚJV) - viz Obr. 19.

Vzorky pro ÚJV představovaly 2cm disky horninového jádra z horní části intervalu, střední části intervalu a spodní části intervalu (fialově označeny na Obr. 19) zhotovených vrtů. Tyto disky byly v NAGRA zváženy a opět ponořeny do definovaného objemu grimselské podzemní vody. V tomto stavu byly zabaleny do uzavřených obalů a zaslány do ÚJV. ÚJV obdrželo 9 vzorků horniny v roztoku grimselské podzemní vody a 2 vzorky pouze s podzemní vodou.

Vrty byly následně zaplněny pryskyřicí z důvodu zachování hydrostatického tlaku a potenciálního vzniku hydraulického gradientu.



Obr. 19 Schéma umístění pomocných vrtů (#1 - #3 a vrtů 10.001 a 12.001; dále je uvedeno schéma rozdělení vzorků mezi jednotlivé účastníky)



Obr. 20 Schéma rozdělení vzorků z vrtného jádra vrtu #2 : vzorek 2J1 - JAEA, 2U1 - UJV, 2H1 - Helsinki; vpravo balení vzorků.

	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

### 2.9.2.1 Analýza migrace radionuklidů na základě zhotovení 3 pomocných vrtů

Už výsledné analýzy aktivity  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  ve výplaších z jednotlivých vrtů ukázaly, že pohyb radionuklidů není radiální, ale směřuje k vrtu #1 a #3. V žádném z vrtů nebylo identifikováno  $^{22}\text{Na}$ .

#2 nebyla naměřena

#1 a #3  $^{36}\text{Cl}$ : 9 Bq/l (lehce nad detekčním limitem),  $^3\text{H}$ : 23 Bq/l

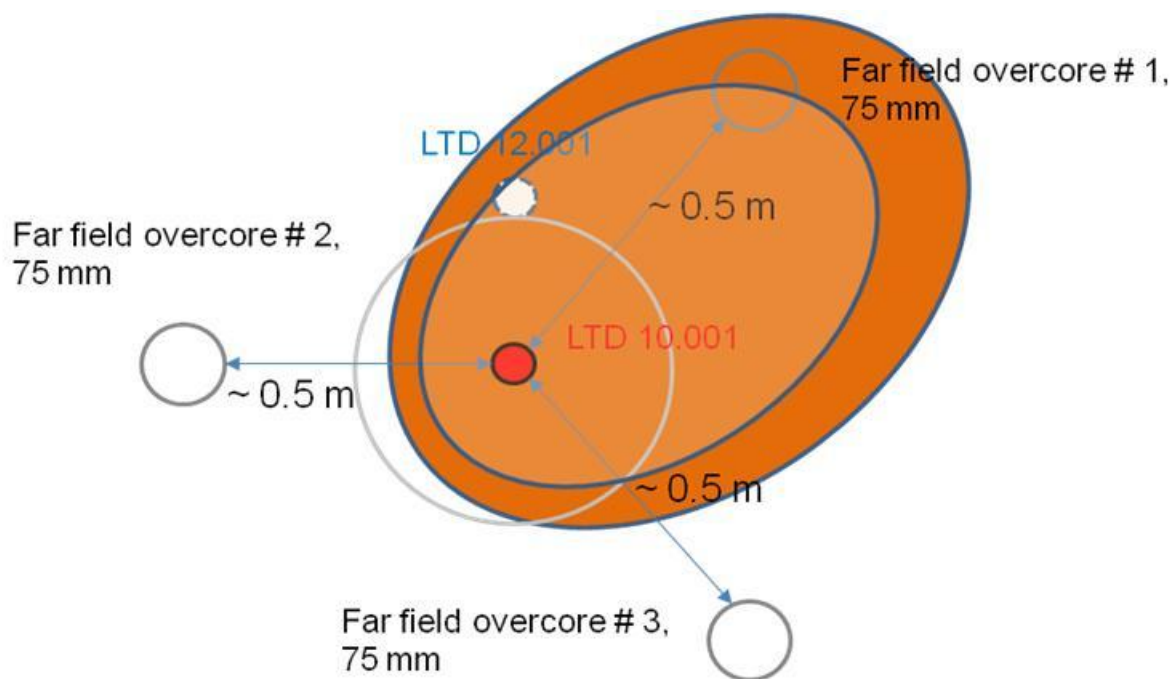
ÚJV obdrželo vzorky uzavřené v nádobkách. V zájmu upřesnění informací o obsahu radionuklidů v hornině bylo z každé nádoby (9 vzorků), v níž byly smočeny horninové vzorky z pomocných vrtů, a ze 2 vzorků podzemní vody odebráno 20 ml a bylo provedeno screeningové stanovení obsahu  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  (kapalinová scintilační spektroskopie, Hidex SL300) s cílem zpřesnit údaje o směru migrace. Výsledky měření (měřena celková aktivita v cpm) jsou uvedeny v Tab. 5. Vzorky roztoku byly rovněž proměřeny na gama aktivitu. V žádném vzorku nebyla detekována. Je tedy patrné, že do této vzdálenosti  $^{22}\text{Na}$  neproniklo.

Tab. 5 Výsledky screeningového stanovení celkové aktivity ve vzorcích vody, v níž byly louženy vzorky z pomocných vrtů #1 - #3 (kapalinové scintilační spektroskopie, přístroj Hidex SL300)

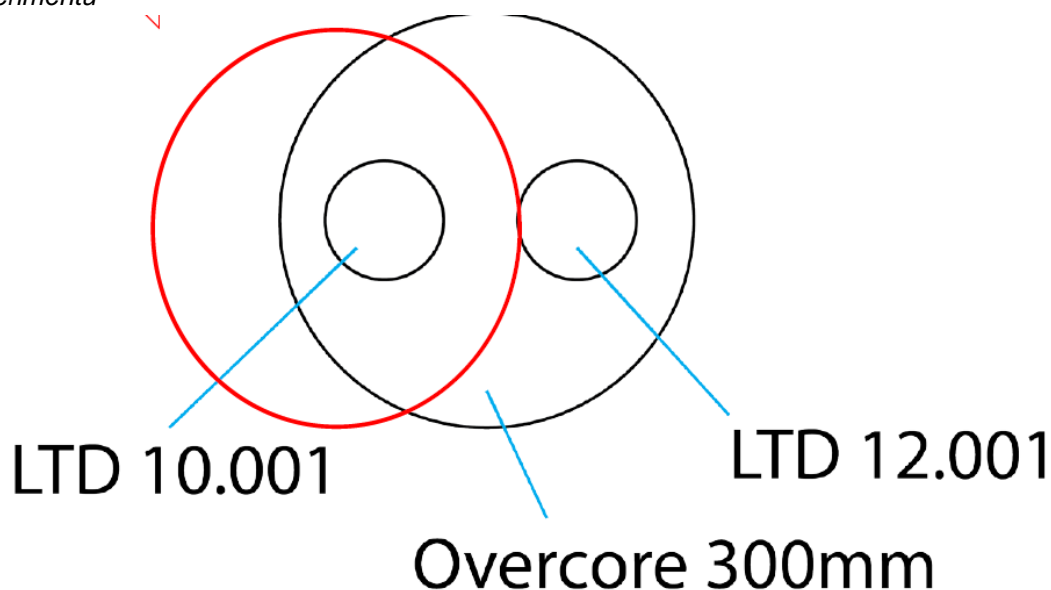
Vzorek	Blank	Blank	1U1	1U2	1U3	2U1	2U2	2U3	3U1	3U2	3U3
cpm	79	79	<b>230</b>	<b>832</b>	<b>1854</b>	81	79	117	117	172	241

Z výsledků, uvedených v této tabulce je tedy patrné, že největší aktivita stopovačů ( $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$ ) je detekována ve směru vrtu #1 (viz velmi schematický obrázek Obr. 21).

Na základě tohoto měření se předpokládalo, že převrtání intervalu mezi vrty 10.001 a 12.001 vrtným jádrem o průměru 30 mm mělo být dobrou metodou pro to, aby byl dostatečně zachycen profil mezi vrtem injekčním a pozorovacím, včetně zachycené BDZ zóny (ÚJV předpokládalo obdobný postup vzorkování a měření radionuklidů jako v předcházejícím experimentu (viz kap. 2.9.1).



Obr. 21 Schematické znázornění pohybu radionuklidů s ohledem na pozici jednotlivých vrtů v systému experimentu



Obr. 22 Schematický návrh převrtu (červeně), zohledňující i preferenční pohyb radionuklidů v systému experimentu. Srpen 2017

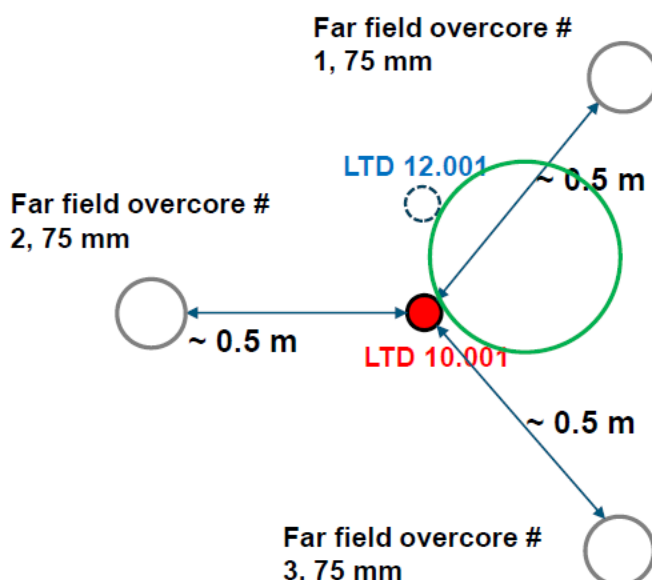
### 2.9.3 Převrtání experimentu

S výše uvedeným plánem přistoupila NAGRA v říjnu 2017 k převrtání. Prvním krokem bylo vyplnění vrtu 12.001 pryskyřicí, bezjádrové vrtání až k pakru nad pozorovacím intervalem a vyjmutí pakru. Dále měl být vyjmut pakr z vrtu 10.001.

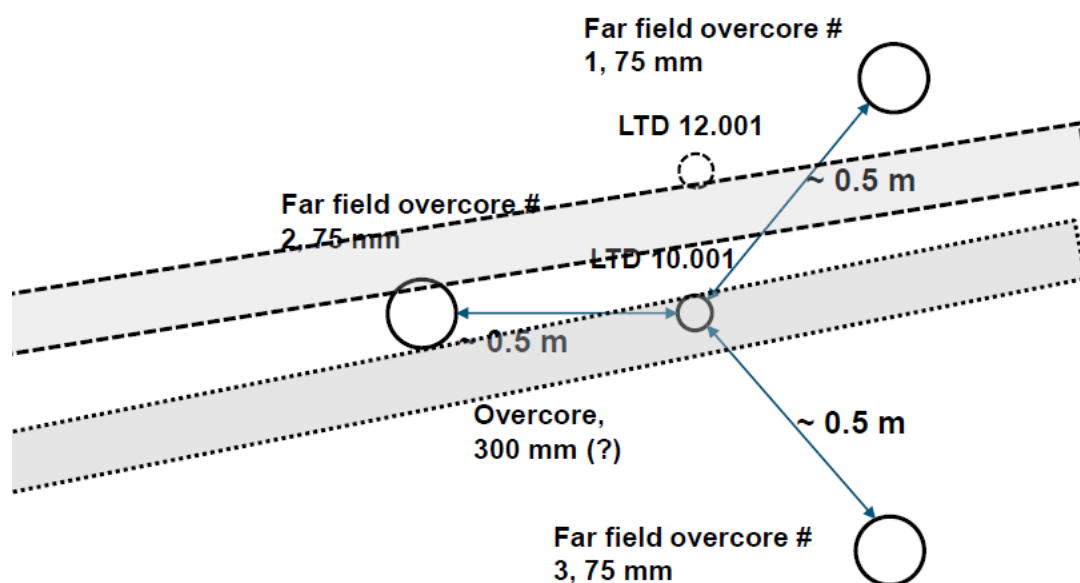
31.10. 2017 NAGRA partnerům projektu oznámila, že došlo k problémům při vyjmutí pakrů z vrtu. Ani jeden z pakrů se nepodařilo vyzvednout, což výrazně zúžilo možnost převrtání experimentální sestavy. Cirkulační interval ve vrtu 10.001 byl stabilizován injekcí pryskyřice. Proč došlo k uvěznění pakrů ve vrtu, zatím není známo a bude to objasněno až po vytažení

jader. Partneři projektu byli vybídnuti k návrhům potenciálních možností převrtu a vyjádření se k nim.

Na následujících obrázcích jsou uvedeny alternativy převrtání systému (viz Obr. 23 – 45) a jejich výhody a nevýhody jsou vyhodnoceny v Tab. 6. Návrhy hledaly kompromis v zachycení profilu mezi vrti 10.001 a 12.001, uvážením neradiálního charakteru šíření radionuklidů a pakrů uvězněných ve vrtech.

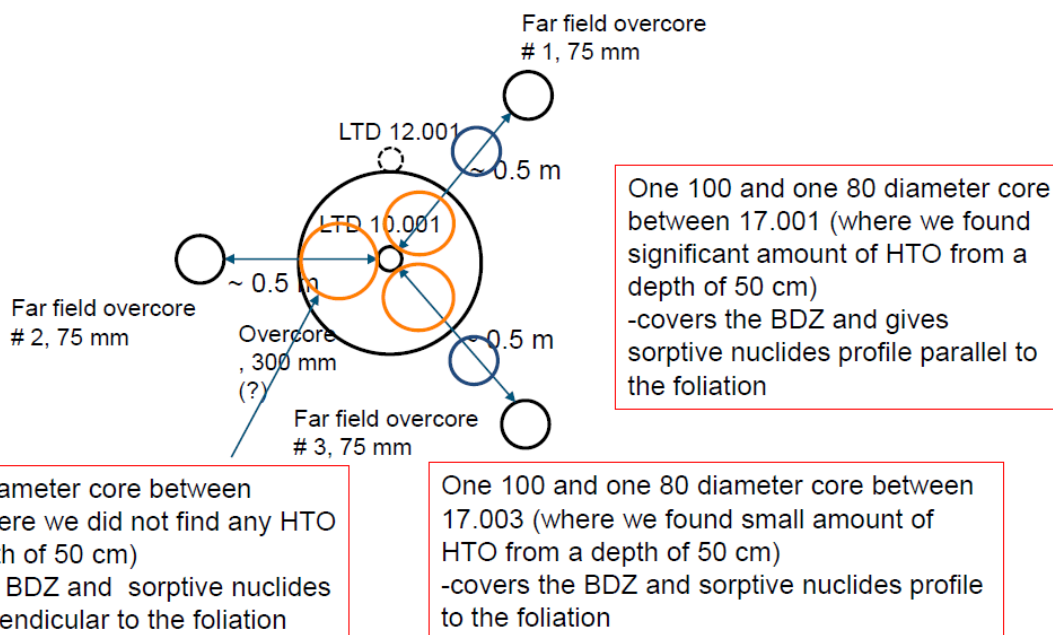


Obr. 23 Schematický návrh převrtu systému experimentu 1 (zeleně). Říjen 2017.



Obr. 24 Schematický návrh převrtu systému experimentu 2 (šedá) ze směru experimentu LTDI. Říjen 2017.

based on HYRL suggestion 2.11.2017



Obr. 25 Schematický návrh převrtů systému experimentu 3 (oranžově). Říjen 2017.

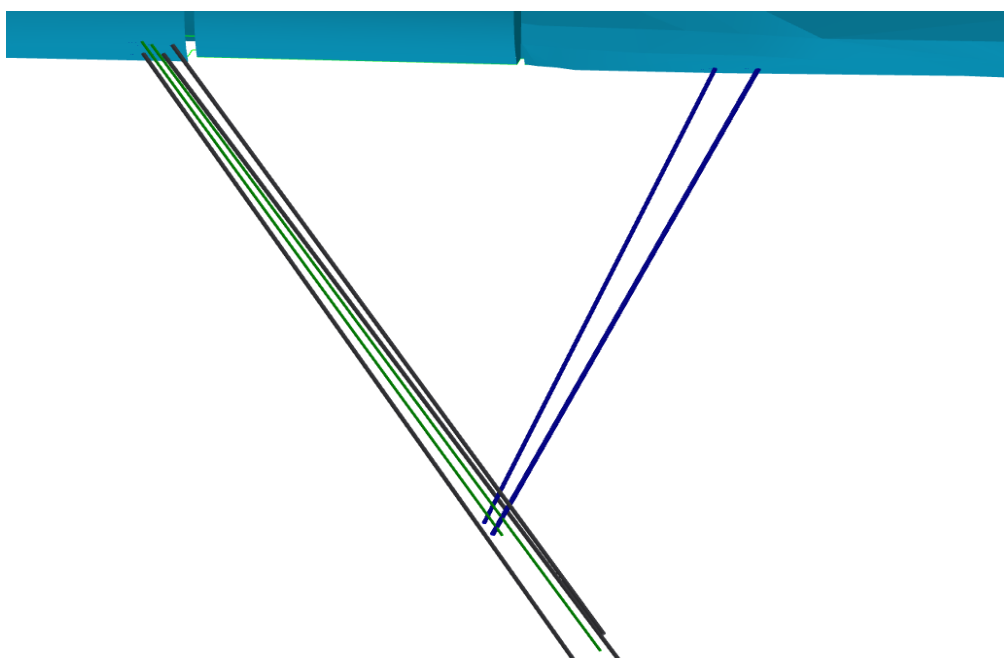
Tab. 6 Vyhodnocení výhod a nevýhod jednotlivých navrhovaných metod převrtání systému vrtů 10.001 a 12.001.

Možnost 1	Možnost 2	Možnost 3
<b>Sub-paraletní vrt o průměru 220 mm</b>	<b>Převrtání pod úhlem 30° - 90° ze strany LTD experimentu</b>	<b>Sub-paraletní vrt o průměru 80 - 100 mm</b>
+ sleduje více/méně původní plán + vrtná jádra budou obsahovat většinu Cs a Ba + velmi pravděpodobně zachytí celou vzdálenost mezi injekčním a pozorovacím vrtem + možnost lépe zachovat vzorky během vrtání	+ nejmenší riziko během vrtání + flexibilní, co se týče vzorkování	+ flexibilní + nízké riziko při vrtání + pokrývá velkou část experimentální oblasti + nejkomplexnější + umožňuje porovnat strukturu hornin
- vysoké riziko během vrtání (zachycení pakrového systému, cíl bude minút) - zřejmě nebude možno studovat foliaci	- komplexní geometrie vzorků: bude problematické sdílet porovnatelné vzorky mezi laboratořemi (zřejmě možné jen tehdy, když bude zhotovena dvojice paraletních vrtů) - pokud se vrty střetnou se zájmovým vrtem pod vysokým úhlem, bude možno vzorkovat jen zlomek injekčního intervalu	- menší kvalita vzorků vlivem menšího průměru - vrty se mohou odchýlit od směru - ovlivněno časem a rozpočtem - nezahrnuje BDZ zónu - nezahrnuje interval mezi injekčním a pozorovacím vrtem



Všechny instituce předložily své návrhy a diskutovaly výše uvedené možnosti. ÚJV se přiklání k možnosti 3.

Nicméně nakonec byla zvolena možnost 2 (viz Obr. 26), tj. systém dvou paralelních šikmých vrtů, které měly zastihnout experimentální interval mezi experimentálním 10.001 a pozorovacím vrtem 12.001 pod definovaným úhlem (a vyhnout se třem pomocným vrtům 17.001 – 17.003). Práce byly zahájeny v prosinci 2017 a jejich výsledkem bylo zhotovení vrtů 17.004 (hloubka 12,6 m) a 18.001 (13,18 m). Oba vrty úspěšně zastihly experimentální interval. Vrtná jádra byla následně rozdělena participantům projektu pro stanovení profilu radionuklidů v hornině (viz dále).



Obr. 26 Schéma 2 vrtů, směřujících k experimentálnímu a pozorovacímu vrtu (nově zhotovené vrty 17.004 a 18.001).

### 2.9.3.1 Vrtné práce pro zastižení experimentálního intervalu a zpracování vzorků z převrtu

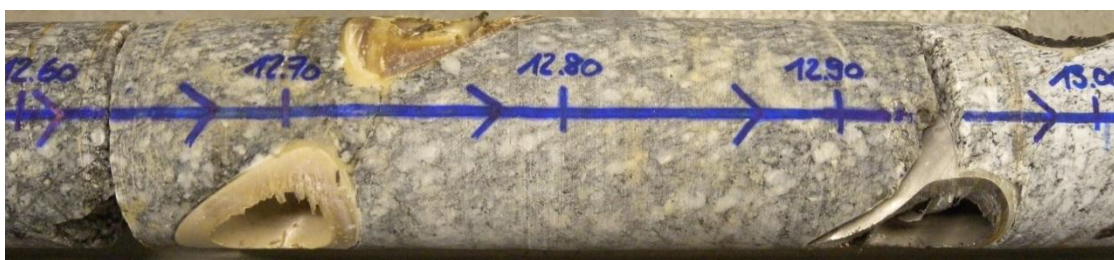
Vrtné jádro z vrtů 17.004 (hloubka 12,6 m) a 18.001 (13,18 m) úspěšně zastihlo experimentální interval (viz Obr. 27). Toto vrtné jádro bylo rozděleno participujícím institucím na projektu (Helsinská univerzita HYRL, JAEA a ÚJV) podle schématu uvedeného na Obr. 28. Vzorky pro Helsinkou univerzitu jsou označeny HYRL, pro JAEA J a pro ÚJV U. Vrtné jádro pro ÚJV a JAEA bylo rozděleno na kupony o přibližné velikosti 10x10x20 mm (viz Obr. 28 a Obr. 29). Vzorky pro HYRL představovaly celistvé kusy jádra (viz příklad na Obr. 31).

Kupony byly pečlivě uzavřeny do dvou nádobek (viz Obr. 32) a odeslány ÚJV a JAEA k analytickým měřením (únor 2018)

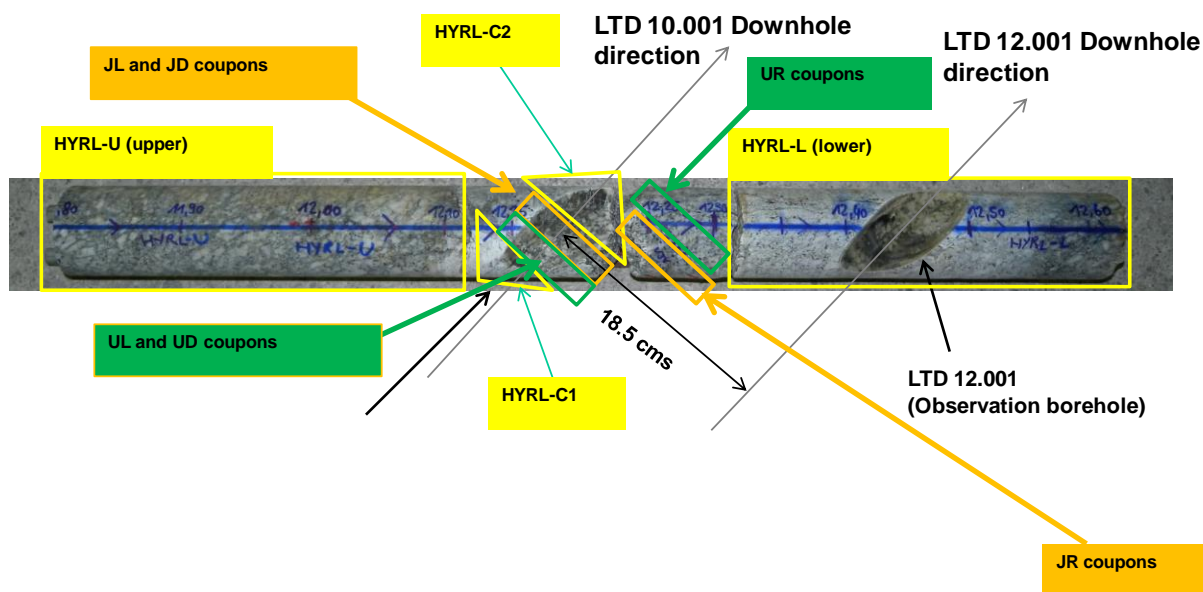
Obdobným způsobem byly připraveny vzorky z vrtu 18.001 a zaslány všem participujícím organizacím (březen 2018).

LTD 10.001  
(Circulation borehole)

LTD 12.001  
(Observation borehole)

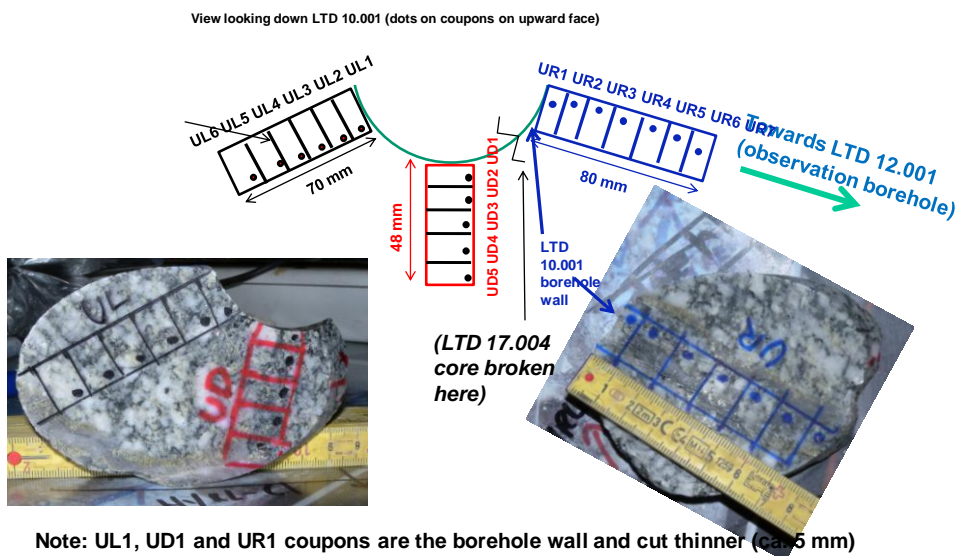


Obr. 27 Vrtné jádro 17.004 (nahore) a 18.001 (dole) se zastižením experimentálního vrtu 10.001 (vlevo) a 12.001 (vpravo).

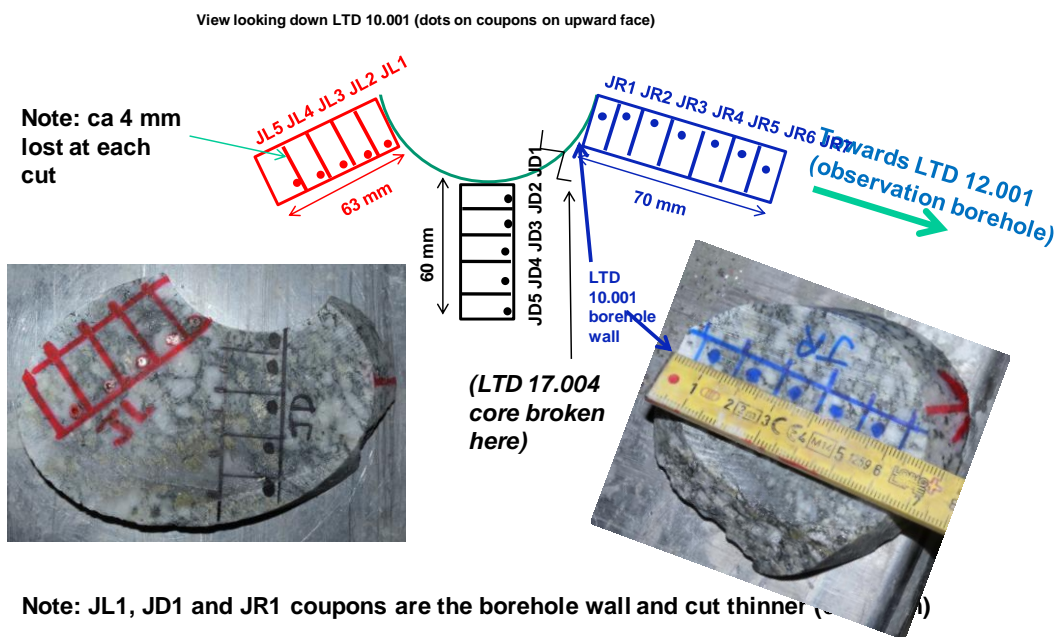


Obr. 28 Rozdělení vrtného jádra 17.004 na vzorky pro participující organizace. Vzorky pro Helsinkou univerzitu jsou označeny HYRL, pro JAEA J a pro ÚJV U. U vzorků U a J: R = vpravo, D = směr dolů, L = vlevo. U vzorků HYRL U = horní, L = dolní.





Obr. 29 Rozdělení vrtného jádra 17.004 na kupony pro ÚJV. Směr odběru vzorků od experimentálního vrtu: R = vpravo, D = směr dolů, L = vlevo.



Obr. 30 Rozdělení vrtného jádra 17.004 na kupony pro JAEA. Směr odběru vzorků od experimentálního vrtu: R = vpravo, D = směr dolů, L = vlevo.



Obr. 31 Příklady odběru vzorků z vrtného jádra 17.004 pro HYRL



Obr. 32 Balení kuponů pro ÚJV ve zdvojených nádobkách (pevně uzavřeno s cílem uchování vzniklé rovnováhy mezi vzorkem a atmosférou v nádobce). Pro obě instituce ÚJV a JAEA poskytlo ÚJV

### 3 Laboratorní vyhodnocení vzorků z převrtu in-situ experimentu

Vzorky z převrtu in-situ experimentu byly NAGRA dodány v únoru 2018 (viz kap. 2.9; vrt 17.001, okolí experimentálního vrtu 10.001). Vzorky granitu byly analyzovány v Centrálních analytických laboratořích ÚJV Řež. Nejprve byly vzorky změřeny v dodaných skleněných ampulích pomocí  **$\gamma$ -spektrometrie**. Vzorek byl sklepan tak, aby delší hrana byla na dně ampule. Byl využit HPGe detektor o relativní účinnosti měření 90 %. Na stanovení účinnosti kalibrace byl využit komerční software ISOCS (Monte Carlo simulace), kde byl nastaven vzorek o podobné geometrii a podobné hustotě. Byly nalezeny píky  $^{22}\text{Na}$  (1274,5 keV),  $^{133}\text{Ba}$  (302,9 keV, 356,0 keV) a  $^{134}\text{Cs}$  (604,7 keV, 795,9 keV) – v závorkách jsou majoritní píky.

Poté byl každá ampule otevřena, do pinzety byl vzat kupon a pomocí pipety s 10 ml směsi 1M NaOH + 30mM Na<sub>2</sub>CO<sub>3</sub> a 15mM Na<sub>2</sub>SO<sub>3</sub> (tato směs se podle normy používá na úpravu pH před stanovením  $^3\text{H}$ ) byl vzorek i ampule opláchnuty. Tento oplach označujeme v následném textu jako **kapalný podíl**. Vzorek granitu byl pak položen na přířezovou buničinu a povrchově usušen. Rozměry vzorku byly změřeny pravítkem. Poté byly vzorky zváženy a rozdrceny (označujeme jako **pevný podíl**).

Do destilační vzorkovnice (Microdist, <http://www.lachatinstruments.com/products/micro-dist/micro-dist.asp>) bylo naváženo ca. 5 g kapalného podílu, ke kterému bylo přidáno 0,2 ml 1,5M BaCl<sub>2</sub> (vytvoří se sraženina, která na sebe naváže většinu kontaminantů, které by se jinak mohly dostat do destilátu) a vzorek byl destilován 1h při 130 °C, kdy páry procházely přes Goretexovou membránu, která propouští jen páru a ne kapalnou vodu. Destilát se po zchlazení doplnil do 10 ml vodou a smísil se scintilačním koktejlem Gold Star. Vzorky se poté měřily na LSC Quantulus 1220 nebo Quantulus GCT 4h na vialku; ve spektrech nebyly pozorovány jiné radionuklidy než  $^3\text{H}$ .

1 g pevného podílu se 24h před analýzou smíchán s 5 ml směsi (stejná jako výše) a nechalo se v lednici, aby mohlo dojít k izotopové výměně vodíku a  $^3\text{H}$ . Další postup byl stejný jako s kapalným podílem. Stejným postupem byly zpracovány vzorky o známé aktivitě  $^3\text{H}$  (standarty), což umožnilo určit účinnost destilace a měření. Aktivity kapalného a pevného vzorku byly sečteny. Majoritní část aktivity  $^3\text{H}$  byla stanovena v kapalném podílu.

Stanovení  $^{36}\text{Cl}$  bylo založeno na extrakční chromatografii. Cca. 3,5 g kapalného podílu se zneutralizovalo H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> na neutrální až mírně kyselé pH, a poté bylo kvantitativně přeneseno na komerční Cl-kolonku (Cl resin, TrisKem), která byla před separací kondicionována roztokem AgNO<sub>3</sub>. Chlorid se na kolonce zachytil a po promytí od ostatních kontaminantů se eluoval roztokem NH<sub>4</sub>SCN. Eluát se poté odpařil do sucha a odparek se rozpustil v 0,1M NH<sub>4</sub>SCN. Z toho se 2 ml smísí s 18 ml ULTIMA GOLD, 0,1 ml se použilo na stanovení výtěžku separace pomocí ICP-MS (srovnání s přidáním stopovým množstvím NaCl). Pevný podíl se navážil do Ni-keřímku, ke kterému byl přidán pevný NaOH. Vzorek se taval při 650 °C v peci. Tavenina byla poté převedena do roztoku a dále se s ní pracovalo stejně jako s kapalným podílem. Vzorky byly poté změřeny na LSC Quantulus 1220 nebo Quantulus GCT 4h na vialku; ve spektrech nebyly pozorovány jiné radionuklidy než  $^{36}\text{Cl}$ . Aktivity kapalného a pevného vzorku byly sečteny. Majoritní část aktivity  $^{36}\text{Cl}$  byla stanovena v kapalném podílu.

Naměřené absolutní aktivity byly vztaženy na hmotnost vzorků. Aktivity byly přepočteny ze dne měření (20.2.2018) na datum spuštění in-situ experimentu (5.3.2014) dle Tab. 7.

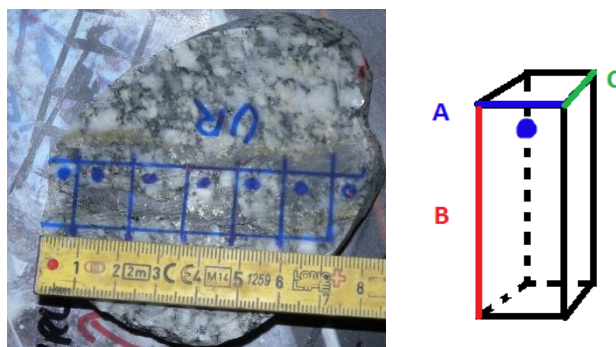


Všechny zde uvedené nejistoty byly vypočteny s použitím koeficientu  $k = 1$ , což odpovídá intervalu spolehlivosti přibližně 68 %.

Tab. 7 Přeměnové konstanty použité při přepočtu aktivit na datum spuštění in-situ experimentu

izotop	$^3\text{H}$	$^{36}\text{Cl}$	$^{22}\text{Na}$	$^{134}\text{Cs}$	$^{133}\text{Ba}$
$T_{1/2}$ , let	12,321	302 000	2,6029	2,0644	10,539
$\lambda$ , $\text{den}^{-1}$	1,54E-04	nekorigováno	7,29E-04	9,19E-04	1,80E-04

Vzdálenost pro identifikaci prostorového rozložení aktivity v hornině byla vypočtena z rozměru kuponu A pomocí pravítka ( $\pm 1$  mm) dle Obr. 33. Nutno podotknout, že vzdálenost byla měřena pouze v místě označeném tečkou. Také je nutné zmínit, že geometrie kuponu nepřestavovala kvádr (stěny nebyly vzájemně kolmé).



Obr. 33 Jednotlivé vzorky a měření vzdálenosti A v CAL

Byl uvažován prořez vzorků 4 mm (NAGRA udala **ca.** 4 mm). Vzdálenost (v mm) na následných obrázcích představuje středy daných vzorků se zohledněním prořezu. Výsledné hodnoty jsou shrnuty v Tab. 8.

 <b>SÚRAO</b>	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

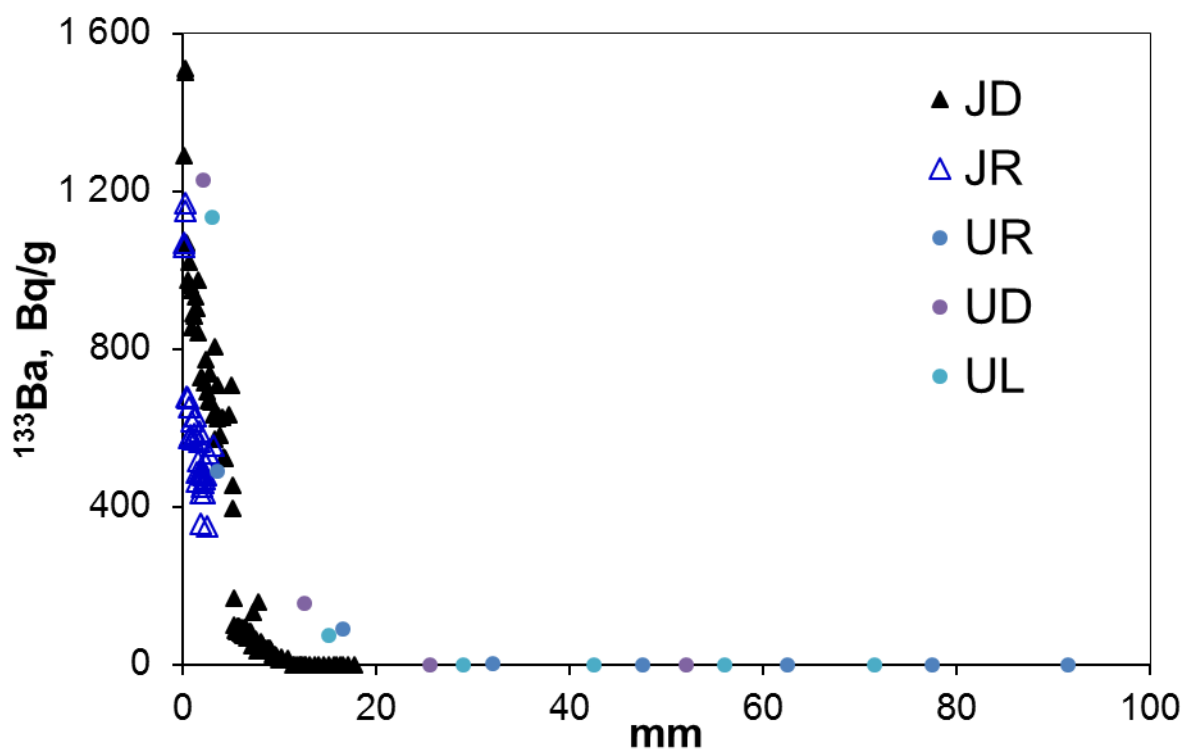
Tab. 8 Difúzní profil radionuklidů  $^3\text{H}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{122}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  – rozměry, hmotnosti a přepočtené stanovené aktivity radionuklidů na datum spuštění in-situ experimentu ( $k = 1$ ). Vzorky z vrtu 17.004, okolí experimentálního vrtu.

vzorek	A, mm	B, mm	C, mm	x, mm	m, g	$^3\text{H}$ , Bq/g	$^{36}\text{Cl}$ , Bq/g	$^{22}\text{Na}$ , Bq/g	$^{134}\text{Cs}$ , Bq/g	$^{133}\text{Ba}$ , Bq/g
UR1	7	17	9	3,5	2,5550	7,29 ± 0,24	0,491 ± 0,043	13,57 ± 0,25	211,7 ± 1,3	489 ± 14
UR2	11	16	9	16,5	4,1323	12,58 ± 0,41	0,186 ± 0,018	10,88 ± 0,19	68,03 ± 0,46	90,3 ± 2,7
UR3	12	17	9	32,0	4,5940	11,38 ± 0,37	0,142 ± 0,014	7,37 ± 0,10	0,896 ± 0,012	0,924 ± 0,028
UR4	11	17	9	47,5	4,4538	8,70 ± 0,28	0,158 ± 0,014	6,7 ± 0,094	< 0,12 Bq	0,059 ± 0,005
UR5	11	17	9	62,5	4,0513	7,86 ± 0,25	0,128 ± 0,013	4,42 ± 0,064	< 0,12 Bq	0,052 ± 0,003
UR6	11	18	9	77,5	4,4064	9,23 ± 0,30	0,112 ± 0,011	2,24 ± 0,032	< 0,13 Bq	0,053 ± 0,004
UR7	9	19	10	91,5	3,2438	0,185 ± 0,007	0,041 ± 0,007	1,722 ± 0,028	< 0,14 Bq	0,053 ± 0,007
UD1	4	14	10	2,0	1,5661	4,95 ± 0,31	0,158 ± 0,029	38,89 ± 0,55	685,0 ± 3,2	1229 ± 36
UD2	9	15	10	12,5	3,5005	13,57 ± 0,87	0,202 ± 0,023	22,16 ± 0,43	110,36 ± 0,99	154,1 ± 4,7
UD3	9	15	10	25,5	3,8226	19,3 ± 1,2	0,265 ± 0,026	16,13 ± 0,28	2,030 ± 0,063	0,220 ± 0,029
UD4	8	16	10	38,0	3,3782	9,51 ± 0,61	0,137 ± 0,017	8,24 ± 0,12	< 0,27 Bq	< 0,29 Bq
UD5	12	19	10	52,0	4,9624	1,311 ± 0,085	< 0,018 Bq	0,460 ± 0,008	< 0,12 Bq	0,080 ± 0,004
UL1	6	16	11	3,0	2,3005	2,93 ± 0,25	0,399 ± 0,034	30,11 ± 0,63	399,6 ± 3,3	1133 ± 34
UL2	10	16	11	15,0	4,5316	27,3 ± 1,5	0,335 ± 0,032	24,46 ± 0,45	81,11 ± 0,75	72,4 ± 2,1
UL3	10	17	11	29,0	4,2290	29,5 ± 1,8	0,439 ± 0,040	18,88 ± 0,27	0,571 ± 0,010	0,116 ± 0,014
UL4	9	17	11	42,5	4,5661	17,54 ± 0,82	0,197 ± 0,017	11,90 ± 0,17	< 0,095 Bq	0,054 ± 0,004
UL5	10	17	11	56,0	4,2295	27,6 ± 1,6	0,453 ± 0,039	10,50 ± 0,15	< 0,13 Bq	0,108 ± 0,006
UL6	13	18	11	71,5	5,3845	18,1 ± 1,2	0,783 ± 0,069	4,985 ± 0,071	< 0,14 Bq	0,081 ± 0,005

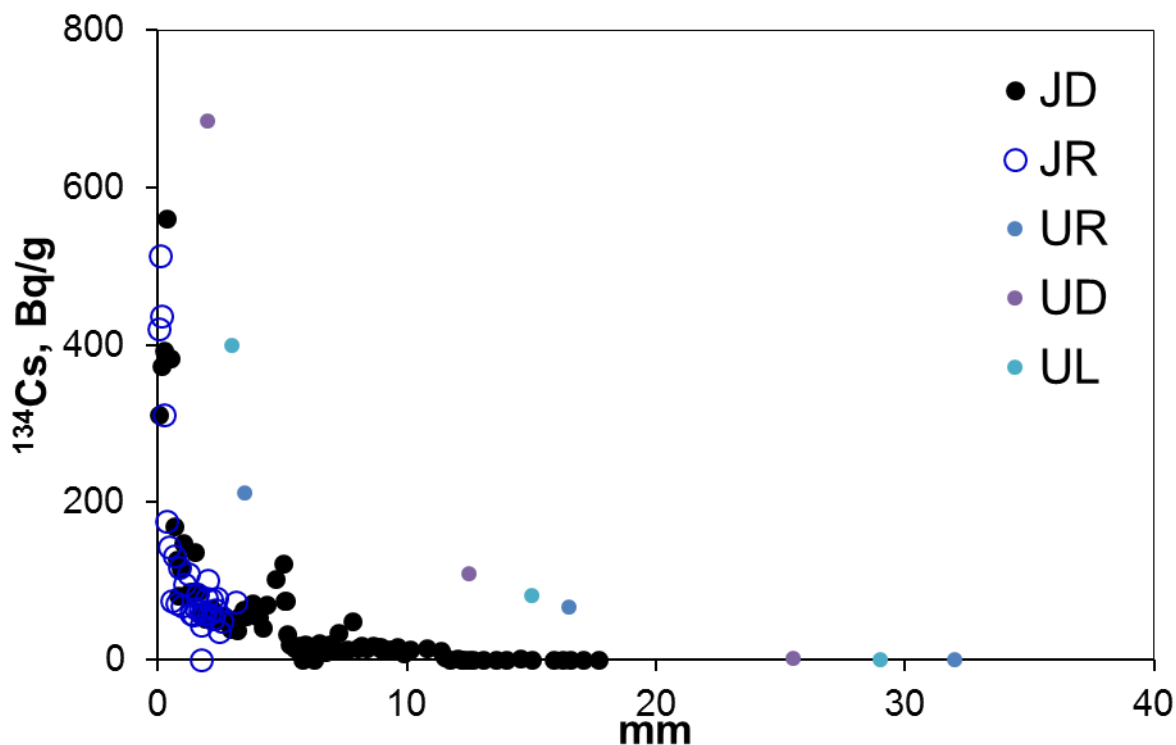
Analýzu druhé série vzorků z vrtu 18.001 nebylo možno vzhledem k časové náročnosti analýz a pozdnímu doručení vzorků dokončit do termínu odevzdání této zprávy.

Výsledky analýz ÚJV byly porovnány s výsledky JAEA (data poskytnuta na meetingu projektu). V JAEA však zvolili jako analytický postup obrušování jednotlivých kuponů s cílem získat jemný profil gama emitorů od stěny experimentálního vrtu. Stanovením aktivity  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  se nezabývali. Porovnání výsledků stanovení aktivit gama emitujících radionuklidů ( $^{22}\text{Na}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$ ) jsou uvedeny na Obr. 34 - Obr. 36.

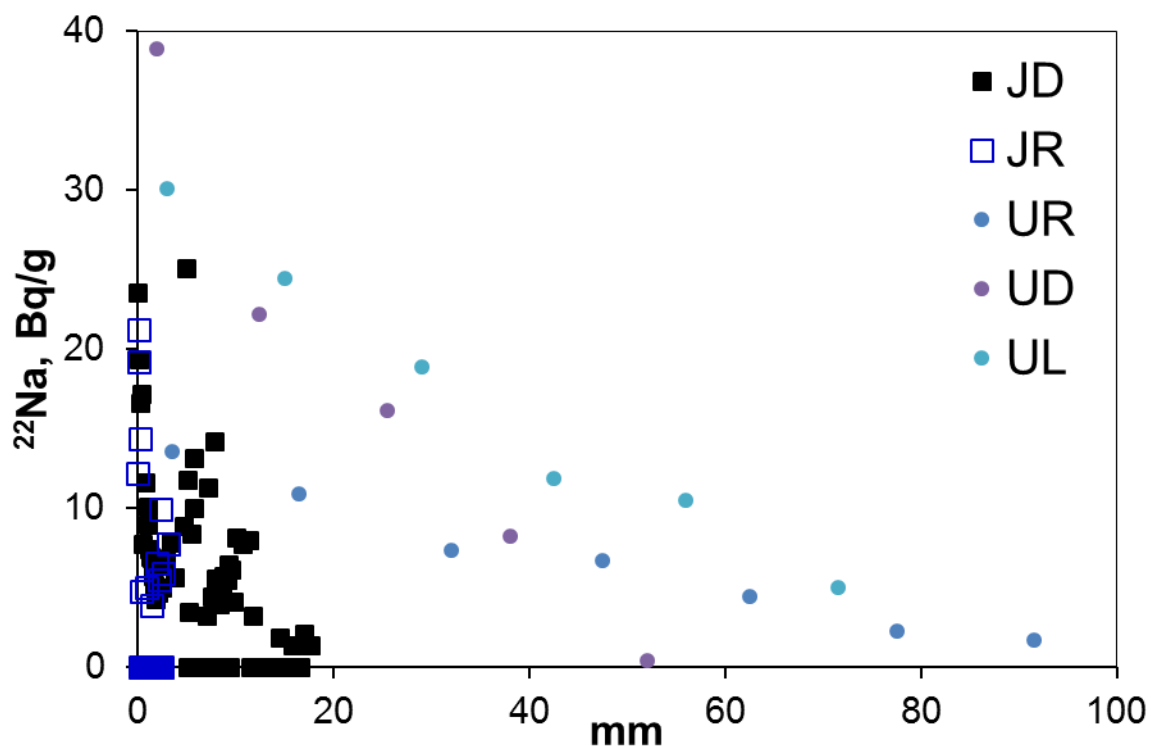
Aktivity  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  změřené v ÚJV lze srovnat pouze řádově s HYRL, které zde pro úplnost uvádíme (zejména vzorky UL, LL1, LL2; Tab. 8). Vzorky pro HYRL byly odlišné (větší válečky, více vzdálené od stěny injekčního vrtu, viz Obr. 37). Aktivitu  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  určili ze sledování vydifundovaných aktivit z válečků do 0,5 l vody a ze stanovené hodnoty porozit válečků vysušením do konstantní hmotnosti (ca 1 %), jejich výsledky jsou shrnuty v Tab. 9.



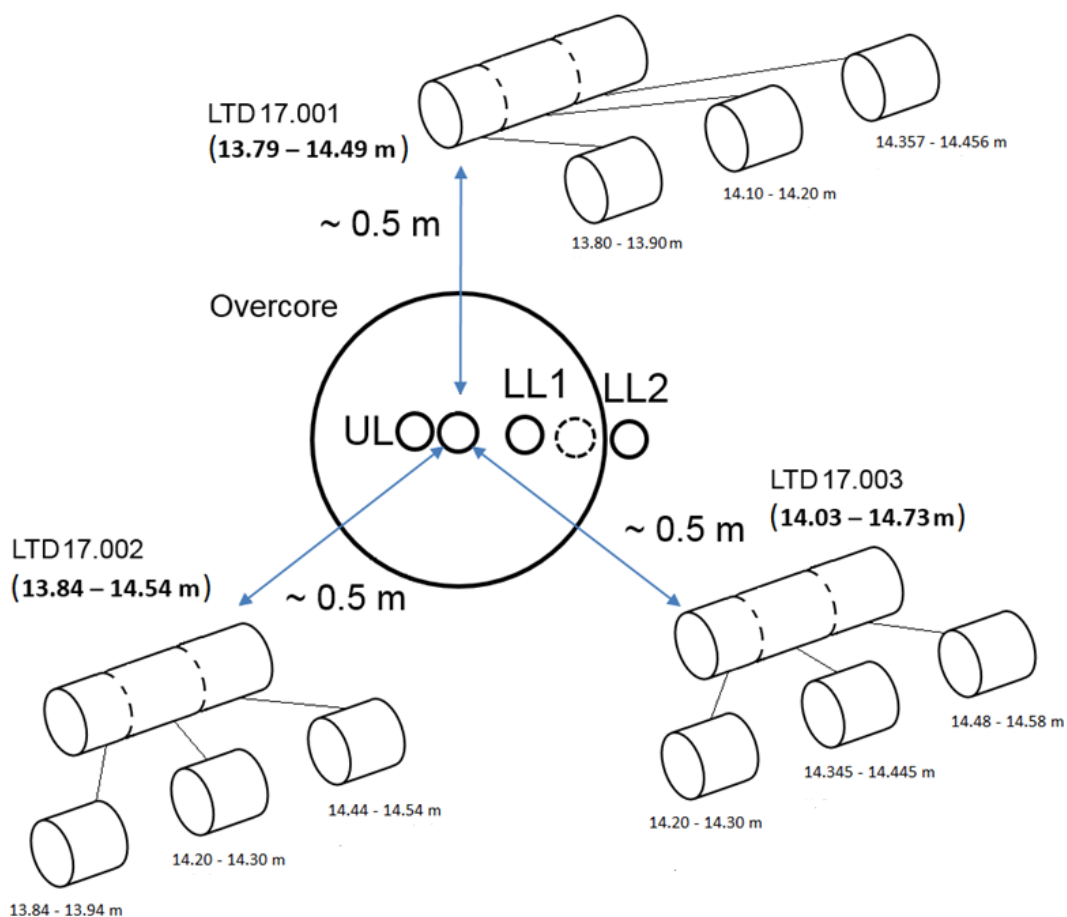
Obr. 34 Přepočtené měrné aktivity  $^{133}\text{Ba}$  na start in-situ experimentu stanovené CAL ÚJV Řež (vzorky U) a JAEA (vzorky J)



Obr. 35 Přepočtené měrné aktivity  $^{134}\text{Cs}$  na start in-situ experimentu stanovené CAL ÚJV Řež (vzorky U) a JAEA (vzorky J).



Obr. 36 Přepočtené měrné aktivity  $^{22}\text{Na}$  na start in-situ experimentu stanovené CAL ÚJV Řež (vzorky U) a JAEA (vzorky J).



Obr. 37 Shrnutí vzorků analyzovaných v HYRL pomocí sledování vydifundování  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$ .

Tab. 9 Výsledky stanovení specifických aktivit  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  na HYRL

Označení vzorku	Difúzní interval	Interval vzorku, m	$^3\text{H}$ , Bq/g	$^{36}\text{Cl}$ , Bq/g
LTD 17.001	13.79 - 14.49 m	13,80 – 13,90	7,1	0,06
		14,10 – 14,20	4,6	0,03
		14,357 – 14,456	0,9	0,006
LTD 17.002	13.84 - 14.54 m	13,84 – 13,94	0,001	0,0008
		14,20 – 14,30	0	0,00007
		14,44 – 14,54	0,002	0
LTD 17.003	14.03 - 14.73 m	14,20 – 14,30	0,7	0,002
		14,345 – 14,445	0,38	0,001
		14,48 – 14,58	0,15	0,0009
UL		~ 14,50 m	16	0,5
LL1		~ 14,50 m	18	0,5
LL2		~ 14,50 m	5	0,02



### 3.1.1 Shrnutí výsledků stanovení profilu radionuklidů v hornině z vrtu 17.004

Jak je patrné z Tab. 8 a Obr. 34 - Obr. 36, u nesorbujících se radionuklidů  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$  se projevuje největší rozptyl hodnot a ovlivnění procesy v experimentálním a pozorovacím vrtu a při zpracování vzorků. Aktivita v bodech nejbližší k intervalu injekce je nižší (ztráta v průběhu ukončování experimentu?, vytažení pakru? ztráty tlaku?) a ve většině případů roste směrem od experimentálního vrtu. Pro oba radionuklidy lze přibližně definovat následující sekvenci výše aktivity:

$^3\text{H}$ : UL > UD > UR

$^{36}\text{Cl}$ : UL > UD > UR

Z výsledků analýz je patrné, že jak  $^3\text{H}$ , tak  $^{36}\text{Cl}$  prakticky dosáhly celé vzdálenosti profilu, tj. cca 98 mm u profilu UR. Stanovení vzdálenosti je ovlivněno nejistotou délky prořezu.

Při porovnání stanovených aktivity v profilu s výsledky HYRL je patrné, že aktivity stanovené v ÚJV Řež, a.s. jsou vyšší (max. aktivita stanovená ve vzorku v ÚJV je 29,5 Bq/g pro  $^3\text{H}$ , 0,783 Bq/g pro  $^{36}\text{Cl}$  - Tab. 8 v porovnání s 18 Bq/g  $^3\text{H}$  a 0,5 Bq/g pro  $^{36}\text{Cl}$ , měřeními v HYRL, Tab. 9), rozdíl však není řádový. Vzhledem k rozdílným geometriím vzorků a postupům měření jsou výsledky analýz jen problematicky porovnatelné. JAEA se bohužel nesorbujícími radionuklidy nezabývala.

U slabě sorbujícího  $^{22}\text{Na}$  je patrné, že jeho aktivita je podobná v profilech UD a UL (zejména v prvních bodech profilu) a nižší v profilu UR:

$^{22}\text{Na}$ : UL ~ UD > UR

Ve srovnání s detailním profilem JAEA jsou hodnoty naměřené v ÚJV a.s. výrazně vyšší (Obr. 36). Vzhledem k tomu, že vzorky U byly měřeny gammaspektrometricky bez vyjmutí z ampulí a tedy bez jakékoli úpravy, lze usuzovat, že při broušení dochází k uvolnění  $^{22}\text{Na}$  a jeho ztrátě (ad deficit aktivity v porovnání se vzorky U na Obr. 36). Konzistence dat ze všech profilů U tomu napovídá. I zde je patrné, že  $^{22}\text{Na}$  difundoval do vzdálenosti nejméně 98 mm, což podporuje identifikovaný průnik  $^{22}\text{Na}$  v posledním odběru in-situ experimentu (viz Obr. 12).

U sorbujících se radionuklidů  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  bylo nejlepší shody dosažení u  $^{133}\text{Ba}$  jako u radionuklidu, který se z vybrané skupiny radionuklidů sorbuje nejvíce (92,5 % viz kap. 2.5) – viz Obr. 34. Aktivita  $^{133}\text{Ba}$  klesá v řadě:

$^{133}\text{Ba}$ : UL ~ UD > UR

a radionuklid byl analyzován pouze v prvních třech intervalech profilu, tj. přibližně do vzdálenosti 18 mm.

Trend  $^{134}\text{Cs}$  je obdobný, ve vzorcích U klesá aktivita v sekvenci UL > UD > UR, nicméně shoda s analýzami JAEA už není tak výrazná, co se týče absolutních aktivit. Opět je patrné že Cs difundovalo pouze do části profilu (první 3 body, přibližně vzdálenost do 20 mm). Vliv může mít heterogenita vzorků a obsah slíd (biotitu).

Obecně je jednoznačně patrné nesymetrické šíření radionuklidů – aktivity v profilech UR, UD a UL se liší, a rozdíl je patrný zejména u méně se sorbujících radionuklidů ( $^{22}\text{Na}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^3\text{H}$ ),

 <b>SÚRAO</b>	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

ale i u  $^{134}\text{Cs}$ . Výrazně preferovaný směr je směr UL (viz Obr. 29). Tento neradiální typ šíření byl již indikován předchozími analýzami (analýzy vzorků z pomocných vrtů apod. - 2.9.2.1), nicméně pro konečné definování směru preferenčního šíření a identifikaci, jak významně by se mohla na migraci radionuklidů podílet i advektivní složka, je nutné především prostorové umístění analyzovaného profilu do 3D modelu experimentu a následně identifikace směrů šíření. Předpokládané provedení těchto prací je na konci roku 2018 ve spolupráci s partnery.

 <b>SÚRAO</b>	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

## 4 Laboratorní experimenty s horninovou maticí

### 4.1 Charakterizace horninových vzorků pro laboratorní experimenty

Laboratorní experimenty byly prováděny především s horninovým materiálem z podzemní laboratoře Grimsel (vzorky z experimentálního úseku vrtů 10.001 a 12.001). Tento horninový materiál byl rozdělen na několik částí, z nichž byly zhotoveny disky pro difúzní experimenty (kap. 4.3), část byla nadrcena na frakce s definovanou velikostí zrn (kap. 4.2). Charakterizace horninových vzorků aarského granitu z vrtu 10.001 byla provedena již v práci Havlová et al. (2013a). Aarský granit je světlý metagranit, středně až hrubě zrnitý, s mírně paralelní texturou, stáří cca 300 milion let (viz Obr. 38 a Obr. 39). Mineralogické a chemické složení horniny z roku 2013 a provedeného v rámci tohoto projektu je uvedeno v

Tab. 10 a v Tab. 11. Pro srovnání jsou uvedena i data pro grimselský granodiorit, v němž probíhal experiment LTD Phase I. – Havlová et al. (2016).



Obr. 38 Vzorek GR 1 z vrtu 10.001 podzemní laboratoře Grimsel (experiment II.): aarský granit



Obr. 39 Pro srovnání vzorek z vrtu 006.010 (experiment LTD I.): grimselský granodiorit,

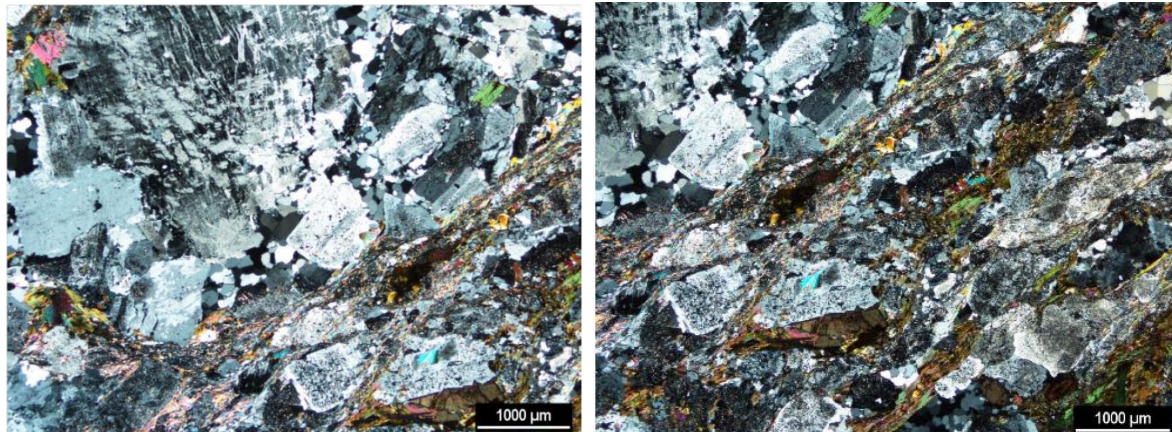
Tab. 10 Minerální složení hornin (%), studovaných v projektu LTD: horniny z podzemní laboratoře Grimsel, grimselský granit (vrt 06.010, experiment I.), aarský granit (vrt 10.001, experiment II.) – Havlová et al. (2013a); E (experimentální vrt 10.001) a M (monitorovací vrt 12.001) – zrnitostní frakce C (0,125-0,63 mm), D (0,63-0,8 mm) a E (nad 0,8 mm)

	křemen	plagioklas (albit)	K-živec (mikroklin)	slídy		chlorit	jiné
				muskovit	biotit		
<b>Grim. granodiorit (vrt 06.010, LTD I.)</b> Havlová et al. (2013a)	34	40	5	17	-	4	-
<b>Aar. granit (vrt 10.001)</b> Havlová et al. (2013a)	26	34	22	-	11	5	2 (epidot)
<b>E-C</b>	56	26	12	2	4		kaolinit, chlorit
<b>E-D</b>	30	46	14	4	7		kaolinit, chlorit, epidot
<b>E-E</b>	50	32	11	2	5		kaolinit, chlorit, epidot
<b>M-C</b>	58	21	14	2	4		chlorit
<b>M-D</b>	23	51	15	4	7		kaolinit, chlorit, epidot
<b>M-E</b>	27	45	17	4	7		kaolinit, chlorit, epidot

Tab. 11 Chemické složení hornin (%), studovaných v daném projektu: horniny z podzemní laboratoře Grimsel, grimselský granit (vrt 06.010, experiment I.) a aarský granit (vrt 010.001, experiment II.) – Havlová et al. (2013a)

	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	FeO	MgO	MnO	CaO	Li <sub>2</sub> O	Na <sub>2</sub> O	K <sub>2</sub> O	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	F
<b>Grim. granodiorit (vrt 06.010, LTD I.)</b> Havlová et al. (2013a)	73,50	0,33	12,92	1,07	1,13	0,52	0,06	1,97	0,01	3,83	3,49	0,09	0,08
<b>Aar. granit (vrt 10.001)</b> Havlová et al. (2013a)	70,35	0,34	15,00	1,20	1,39	0,65	0,07	1,86	0,01	4,50	3,33	0,10	0,09

Horninová struktura je poněkud odlišná od hornin Českého masivu, a to především vzhledem k postižení výraznými deformacemi vlivem alpínské orogeneze. Podrobná petrograficko-mineralogická charakteristika aarského granitu je uvedena v práci Staše et al. (2016).



Obr. 40 Mikroskopický obraz aarského granitu s porfyrickou strukturou (qtz, plg, kfs, bt, chl, ep). Intenzivní duktilní deformace mění primární porfyrickou texturu na mylonitickou. Alterované velké krystaly K živce jsou nahrazeny světlou slídou a jílovými minerály.

Centrální aarský granit je středně zrnitý biotitový metagranit s ekvigranulární nebo porfyritickou strukturou. Obsahuje plagioklas (38 - 42 %), křemen (28-33 %), K-živce (19-27 %), biotit (5-11 %) a epidot a allanit (3 %), s akcesorickými minerály včetně titanitu, apatitu, zirkonu, ilmenitu a někdy magnetitu. Fenokrysty plagioklasy a / nebo K-živce vykazují křehké deformační vlastnosti. Křemen často vyazuje i rekystalizaci. Foliace je definována především preferenční orientací biotitových agregátů a někdy i jemně zrnitými bílými slídami. Biotitová zrna jsou částečně změněna na světle zeleně-hnědý chlorit. Sekundární sfingitická světlá slída se vyskytuje jako jemnozrné krystaly lamel (obr. 28) nebo jako inkluze v živci (Staš et al. 2016).

## 4.2 Stanovení sorpčních vlastností hornin experimentálního intervalu

První experimentální práce byly provedeny v rámci aktivit shrnutých ve zprávě Havlová et al. (2013a). Tyto experimenty probíhaly za aerobních podmínek a jejich výsledky jsou uvedeny v Tab. 12. Sorpčním materiálem byl aarský granit, roztokem syntetická podzemní voda GGW. Sorpční experimenty se Se(VI) za anaerobních a aerobních podmínek jsou podrobně popsány ve zprávě Havlová et al. (2015) a výsledek je uveden rovněž v Tab. 12. Pro ty byly využity vody GGW1 a GGW2. Použity byly nadrcené vzorky aarského granitu z vrtu 10.001 (experimentální interval). Složení všech použitých vod je shrnuto v Tab. 13. Podle původního plánu měly být migrační experimenty se selenanem provedeny pouze při pH 9 (voda GGW1) a za anaerobních podmínek, které odpovídá pH podzemní vody Grimsel (Havlová et al. 2013a). V průběhu in-situ experimentu v roce 2013 byl ovšem pozorován pokles pH v in-situ experimentu na hodnoty mezi 7,5-8, který zatím nebyl uspokojivě vysvětlen. Z tohoto důvodu bylo rozhodnuto, že migrační experimenty s redox senzitivními stopovači budou provedeny rovněž při nižším pH, aby bylo možno sledovat možné ovlivnění stopovače změnou podmínek v systému (Havlová et al. 2015). Tyto experimenty byly vzhledem k nulovému obsahu CO<sub>2</sub> a nárůstu pH v anaerobním boxu provedeny v aerobním prostředí ve vodě GGW2.



Tab. 12 Výsledné hodnoty  $K_d$  ( $\text{ml}\cdot\text{g}^{-1}$ ) pro  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  a 5 zrnitostních frakcí aarského granitu z vrtu 10.001 (Havlová et al. 2013a) a  $\text{Se(VI)}$  (Havlová et al. 2015); podmínky experimentů - AN anaerobní, AE aerobní.

$K_d$ , $\text{ml}\cdot\text{g}^{-1}$	$^{22}\text{Na}$	$^{133}\text{Ba}$	$^{134}\text{Cs}$	Se(VI)	Se(VI)
podmínky	GGW AE	GGW AE	GGW AE	GGW1 AN	GGW2 AE
A (< 0,063 mm)	3,04	593,1	200,4	-	-
B (0,063-0,125 mm)	0,59	218,4	141,9	-	-
C (0,125-0,61 mm)	0,51	179,5	235,2	-	0,3
D (0,63-0,8 mm)	0,53	103,1	608,2	0,2	0,4
E (nad 0,8 mm)	0,25	90,0	352,6	0,0	-

Tab. 13 Porovnání složení syntetických podzemních vod pro experimentální práce na vzorcích aarského granitu: N.A. znamená: nebylo analyzováno. Celkový křemík stanoven metodou ICP-MS.

složka, stanovená koncentrace v $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$	GGW (Havlová et al., 2013a)	GGW1	GGW2
$\text{Na}^+$	12,1	14,9	17,0
$\text{K}^+$	0,5	0,33	0,51
$\text{Ca}^{2+}$	5,2	5,91	5,51
$\text{Mg}^{2+}$	0,1	0,021	0,069
$\text{Cl}^-$	2,3	3,7	4,41
$\text{SiO}_3^{2-}$	N.A.	3,34 jako $\text{Si}_{\text{tot}}$	6,33
$\text{SO}_4^{2-}$	4,3	5,27	5,31
$\text{HCO}_3^-$	N.A.	N.A.	N.A.
pH	9,7	9,7-9,9	6,6-7,1

Hodnoty  $K_d$  pro  $^{22}\text{Na}$  dosahují hodnot maximálně prvních jednotek  $\text{ml/g}$  (maximální hodnota 3,04  $\text{ml/g}$  pro nejjemnější frakci A), zatímco maximální hodnoty pro  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  dosahují několika stovek  $\text{ml/g}$ . Pro tyto dva stopovače je tedy míra sorpce vyšší o více než 2 řády. Vzhledem k nízkým hodnotám sorpčního koeficientu  $K_d$  jsou výsledky pro  $^{22}\text{Na}$  výrazně zatíženy vysokou mírou nejistoty – pro hrubší frakce dosahuje míra nejistoty téměř 100 % a sorpci je možno považovat prakticky za nulovou.

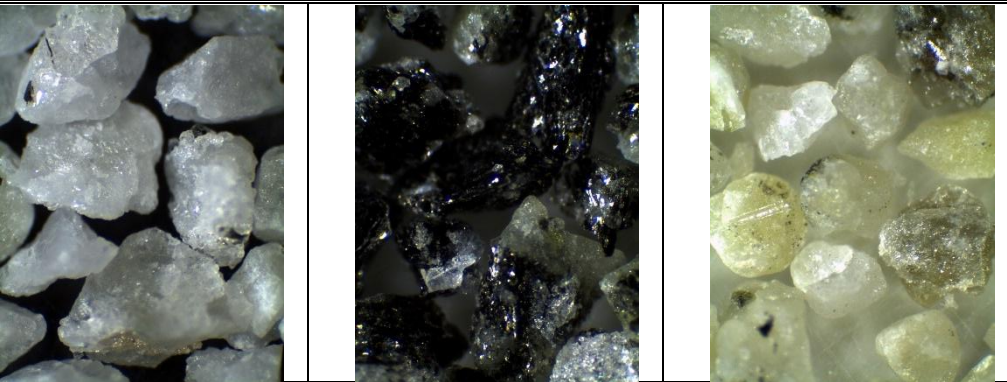
I v sorpci  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  je patrný rozdíl. Zatímco pokles aktivity  $^{133}\text{Ba}$  v roztoku je velmi rychlý, sorpce  $^{134}\text{Cs}$  probíhá pomaleji. Sorpce  $^{133}\text{Ba}$  je výrazně závislá na velikosti zrn.

Ačkoli je  $^{133}\text{Ba}$  považováno za spíše slabě se sorbující stopovač, v daném případě sorpční distribuční koeficient  $K_d$  na nejjemnější frakci dosáhl až 593  $\text{ml/g}$  pro aarský granit z GTS. Pokud vezmeme v úvahu koncentraci nosiče v roztoku se  $^{133}\text{Ba}$  a speciální stopovače v roztoku ( $10^{-7}$   $\text{mol/l}$ ), pak je nutno uvažovat i precipitaci pevného  $\text{BaCO}_3$  a jeho vypadávání z roztoku pro podzemní vodu GGW. Tato skutečnost je diskutována v práci Havlové et al. (2013a).



Tyto sorpční experimenty byly nakonec doplněny o sorpční experimenty v aerobním prostředí s vodou GGW1, s materiály E-C, E-D a E-E (příp. M-). Byla studována sorpce  $^{85}\text{Sr}$  (jako analogu Ba),  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$ . Také byly z frakce D ručně vytřídněny minerály, viz Tab. 14, a s nimi provedeny sorpční experimenty. Vzhledem k tomu že fáze nebyly stoprocentně čisté a vzhledem k nízké navážce materiálu (20-200 mg) jde pouze o orientační stanovení vlivu jednotlivých minerálních fází na celkové  $K_d$ , stanovené na frakci D.

Tab. 14 Výsledné hodnoty  $K_d$  ( $\text{ml}\cdot\text{g}^{-1}$ ) pro  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  a  $^{133}\text{Ba}$  na frakci D a z ní ručně vytřídněných minerálních fází – zleva křemen, slída a chlorit .

$K_d$ , ml/g	E-D			
		Křemen	Slída	Chlorit
$^{134}\text{Cs}$	402	15	426	36
$^{85}\text{Sr}$	10	4	17	7
$^{133}\text{Ba}$	116	33	60	90

### 4.3 Difúzní experimenty

V průběžných zprávách Havlová et al (2015, 2016 a 2017) byly prezentovány výsledky laboratorních podpurných experimentů: včetně průnikových difúzních experimentů všech použitých stopovačů ( $^3\text{H}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ , Se(VI),  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{134}\text{Cs}$  a  $^{133}\text{Ba}$ ). Celkem bylo k dispozici 21 vzorků (12 z experimentálního, 9 z monitorovacího). Nad rámec projektu bylo také studováno migrační chování jodidu, technecianu (Havlová et al. 2016) a stroncia (Havlová et al. 2017). Dále bylo studováno, zda má orientace zrn granitu vliv na migraci HTO,  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{22}\text{Na}$  (Havlová et al. 2017).

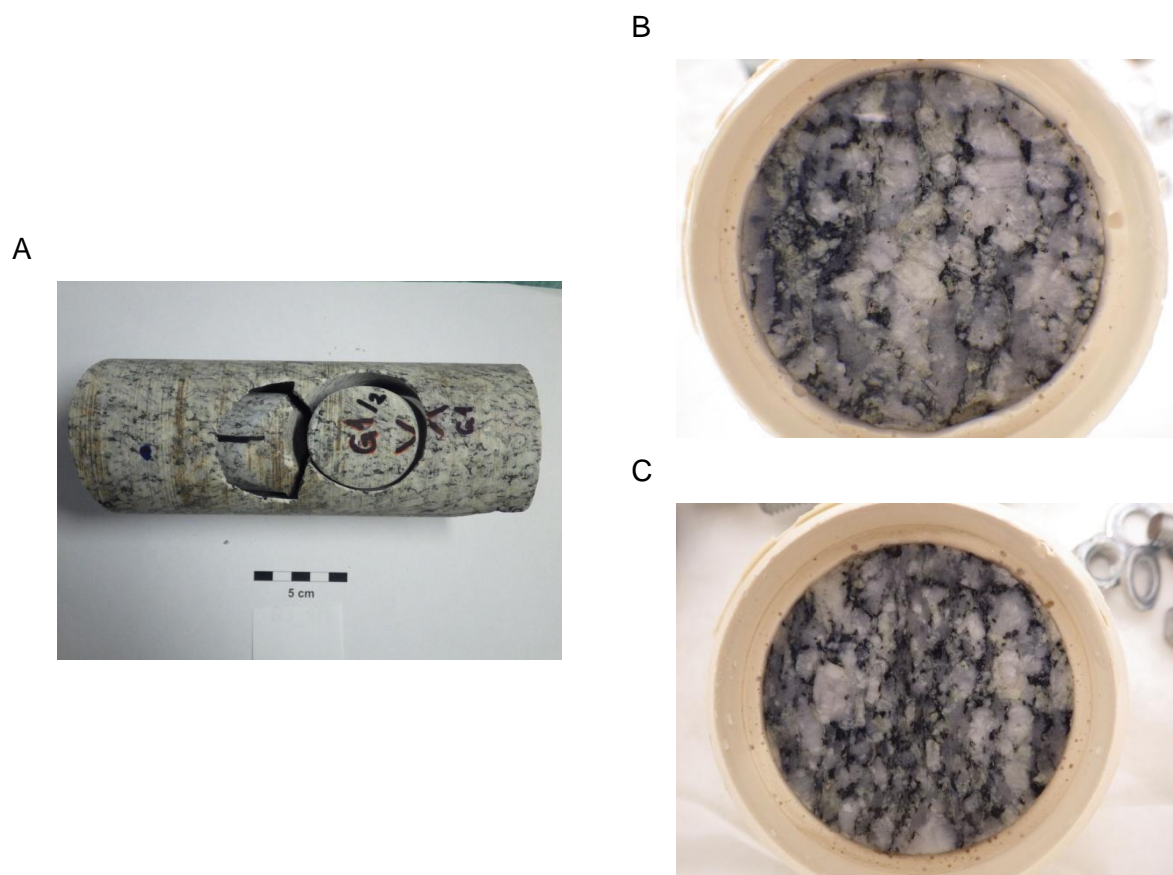
Podrobný popis obecného přístupu metodiky difúzních experimentů a jejich vyhodnocení je uveden v průběžné zprávě (Havlová et al., 2014). Shrnutí výsledků difúzních experimentů i s identifikací původu vzorků a experimentálních podmínek je uvedeno v Tab. 18.

V této zprávě doplňujeme výsledky studia difúze kationtů, zejména  $^{22}\text{Na}$  a  $^{133}\text{Ba}$ , které proběhly v roce 2018 – výsledky a komentář jsou uvedeny v Příloze 1.

#### 4.3.1.1 Vliv usměrnění zrn granitu na proces difúze radionuklidů

V aarském granitu, v porovnání s českými granitickými horninami,  $^3\text{H}$  migruje rychleji (viz Obr. 44), ačkoli na první pohled porozita není významně vyšší, což zřejmě souvisí s rozdílným uspořádáním zrn, deformací alpinským vrásněním. Orientace experimentálního a pozorovacího vrtu je zatím neznáma. Proto byla zajištěna vrtná jádra aarského granitu z rozrážky 15.001 (projekt MaCoTe), z kterých byly připraveny vzorky (paralelní a kolmé

na foliaci), viz. Obr. 41. V roce 2017 na nich byly provedeny difúzní experimenty HTO a  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$ .



Obr. 41 Odvrtání vzorků ke studiu vlivu usměrnění zrn z vrtného jádra 15.001 (A), vzorek kolmý (B) a paralelní (C).

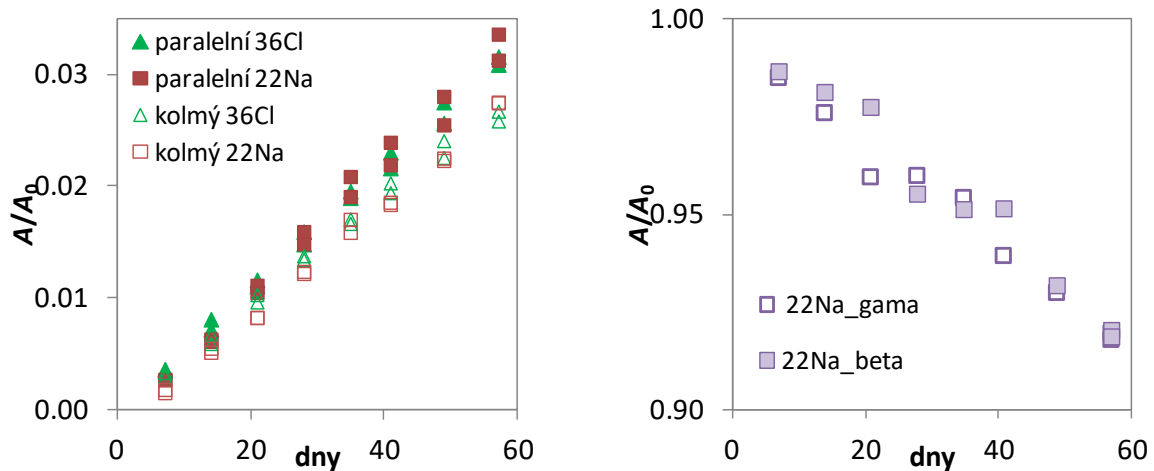
Při stanovení porozity metodou osychání se kolmé a paralelní vzorky nelišily v průběhu osychání ( $\epsilon$ ), ani v hodnotě výsledné porozity stanovené z osychání ( $\epsilon_{0,\text{bod}}$ ). Byly stanoveny velmi blízké hodnoty  $\epsilon = 0,22\%$  a  $\epsilon_{0,\text{bod}} = 0,91\%$  vzorků z experimentálního a monitorovacího vrtu. Vyhodnocení HTO experimentů bylo provedeno stejným postupem jako v případě vzorků z experimentálního a monitorovacího vrtu (Havlová et al. 2015 a 2016). Výsledky shrnuje Tab. 15. Je vidět, že vzorky z experimentálního a monitorovacího vrtu mají spíše paralelní orientaci zrn. V datech, poskytnutých ČGS (projekt LASMO) lze vidět lehkou anizotropii (1,05-1,18).

 <b>SÚRAO</b>	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

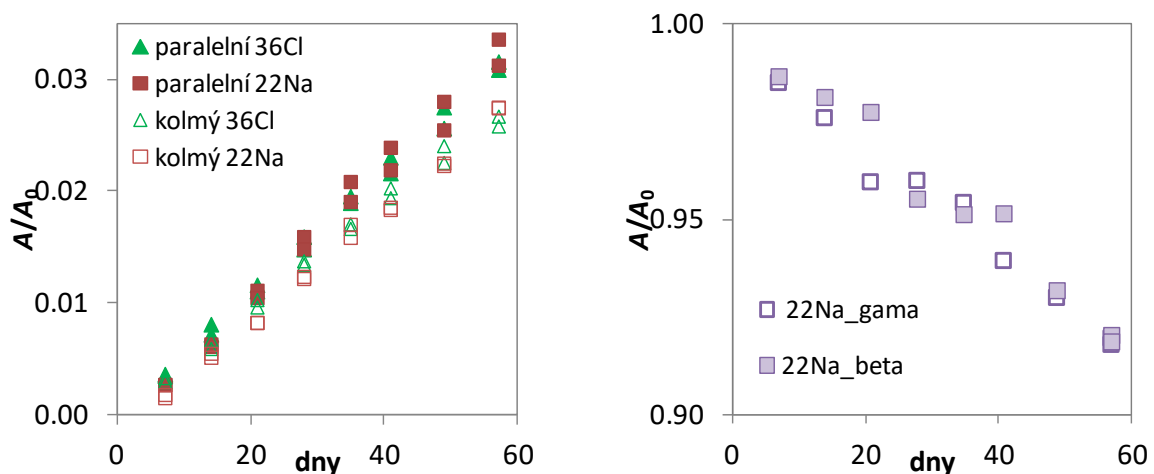
Tab. 15 Výsledky HTO difúzních experimentů na vzorcích z experimentálního, monitorovacího vrtu a orientovaných vzorků

označení vzorku	experimentální vrt	monitorovací vrt	paralelní1	paralelní2	kolmý1	kolmý2
$D_e \cdot 10^{12} \text{ (m}^2\text{/s)}$	$3,41 \pm 0,29$	$3,37 \pm 0,24$	3,68	3,35	3,87	3,96

Po vydifundování HTO ze vzorků byla spuštěna difúze  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$ , aby byla získána informace o tom, zda a jak usměrnění zrn ovlivňuje migraci aniontů a kationtů (Havlová et al. 2017). Díky tomu, že  $^{36}\text{Cl}$  je čistý beta zářič, bylo možné experiment provést s oběma radionuklidy zároveň. Vzorek  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$  byl měřen spolu se standardem na gama counteru. Poté byly vzorky změřeny na kapalinovém scintilačním spektrometru (LSC). Pomocí přepočítávacího faktoru stanoveného ze standardu  $^{22}\text{Na}$  na obou přístrojích, byla vypočtena aktivita příslušející pouze  $^{36}\text{Cl}$ . Průnikové křivky  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$  experimentů a srovnání obou metod detekce pro sodík jsou zobrazeny na Obr. 42.



Obr. 42



Obr. 42 Průnikové křivky  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$  na orientovaných vzorcích (vlevo), pokles  $^{22}\text{Na}$  aktivity ve zdrojovém rezervoáru pro paralelně orientované vzorky; srovnání metod detekce  $^{22}\text{Na}$  (vpravo).

Z Obr. 42 je vidět, že zde dochází k rychlejší difúzi v paralelně orientovaných vzorcích, na rozdíl od HTO (srov. Tab. 15). Zajímavé také je, že difúze kationtu je stejná jako difúze aniontu. Při studiu difúzního chování každého radionuklidu zvláště na vzorcích z experimentálního a monitorovacího vrtu byl pozorován rozdílný průběh difúze. Sodík (Havlová et al. 2017; Tab. 18) migroval výrazně rychleji než chlorid. Vysvětlení poskytlo závěrečné měření vodivosti zdrojového roztoku. Byla odhadnuta koncentrace NaCl 0,012 mol/l. Oproti salinitě GGW1 vody byla salinita u experimentů s  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$  cca. 3x větší. Značné množství NaCl tedy muselo pocházet z roztoku radionuklidu  $^{36}\text{Cl}$ , byla odhadnuta koncentrace nosiče na 3 mol/l. Vyšší salinita zdrojového roztoku tedy patrně způsobila srovnatelné difúzní chování sodíku a chloridu. Zatímco vyšší iontová síla vede k vyšším  $D_e$  pro anionty, u kationtů se  $D_e$  snižuje.

Difúzní experimenty  $^{36}\text{Cl}$  byly vyhodnoceny pomocí fitování průnikových křivek modelovými křivkami z difúzního modulu. Výsledky difúzních experimentů jsou uvedeny v Tab. 16., přičemž je nutné zmínit, že předchozí experimenty byly provedeny s jiným zásobním roztokem  $^{36}\text{Cl}$ , který neobsahoval významné množství nosiče NaCl.

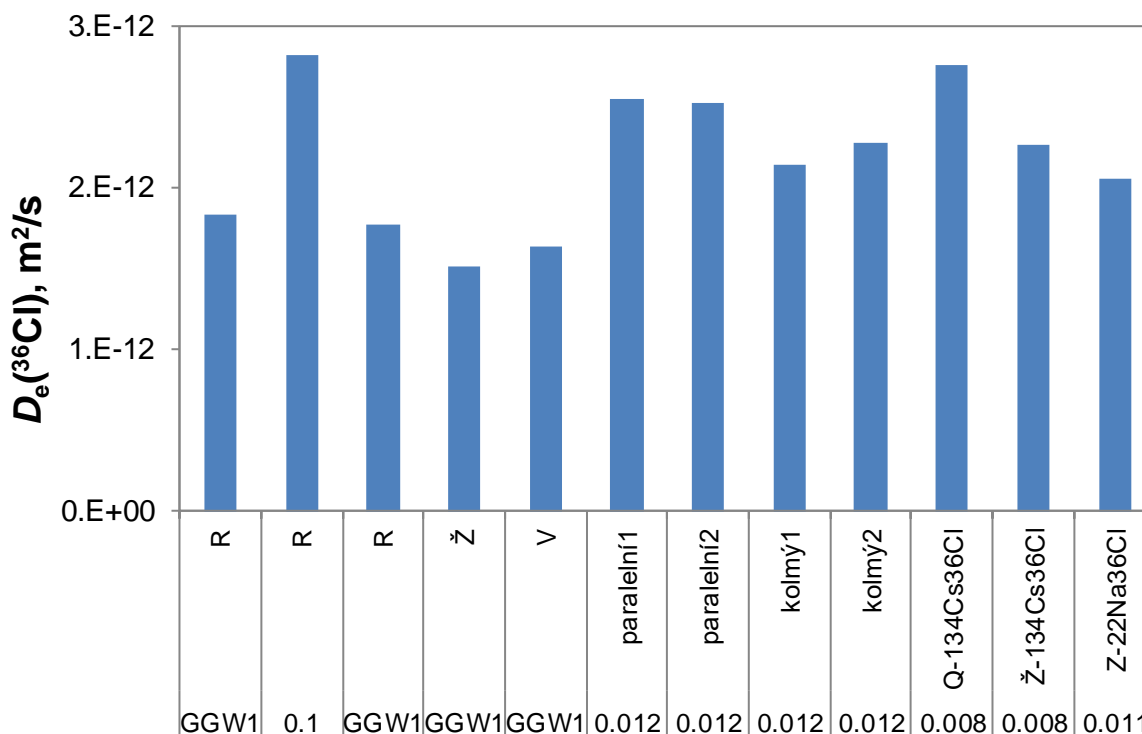
Tab. 16 Výsledky efektivních difúzních koeficientů z průnikových difúzních experimentů s  $^{36}\text{Cl}$  a  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$  na vzorcích z experimentálního a monitorovacího vrtu a na orientovaných vzorcích z rozrážky 15.001 (Havlová et al. 2017)

označení vzorku	experimentální vrt	monitorovací vrt	paralelní1	paralelní2	kolmý1	kolmý2
$D_e \cdot 10^{12} \text{ (m}^2\text{/s)}$	1,55 ± 0,18	1,65 ± 0,37	2,56	2,53	2,15	2,29

V souladu s předpokladem vlivu salinity na difúzi aniontů jsou  $D_e$  z orientovaných vzorků vyšší. Větší aniontová exkluze je u vzorků kolmých (tedy efektivní porozita je u kolmých vzorků menší než u paralelních).

V roce 2017 (Havlová et al. 2017) byly ukončeny experimenty s anionty za použití 0,1 mol/l NaCl jako kapalné fáze s cílem porozumět difúzi aniontů a aniontové exkluzi. Zatímco pro selenan a technecistan nebyl efekt oproti GGW1 vodě významný, u jodidu a chloridu došlo k významně rychlejší difúzi aniontu do cílového rezervoáru. U všech studovaných vzorků v 0,1 mol/l NaCl došlo k vyplavení černých částic do rezervoárů (viz výše). Proto byla poté stanovena porozita vzorku a znovu proveden experiment v GGW1 vodě. Ačkoliv došlo k mírnému poklesu hmotnosti vzorku a mírnému zvýšení porozity, získané difúzní koeficienty byly srovnatelné s hodnotami získanými při prvním experimentu v GGW1 vodě.

Protože se ověřilo, že vedení experimentu s dvěma radionuklidy je možné, byly dále spuštěny experimenty na dalších vzorcích z monitorovacího vrtu. Například na vzorku Z byl použit roztok po difúzi  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$  na orientovaných vzorcích; na vzorcích Q a Ž byly spuštěny experimenty s  $^{134}\text{Cs}^{36}\text{Cl}$ , kde bude koncentrace NaCl určena po skončení obou experimentů. U těchto vzorků je však nutné počítat s vyšší iontovou silou. Výsledky všech  $^{36}\text{Cl}$  experimentů o různých salinitách jsou zobrazeny na Obr. 43.



Obr. 43 Grafické znázornění výsledných  $D_e(^{36}\text{Cl})$  na vzorcích z monitorovacího vrtu a na orientovaných vzorcích za různých koncentrací NaCl (mol/l; Tab. 16); koncentraci Cl v GGW1 je uvedena v Tab. 13

V Tab. 17 jsou pak shrnuty výsledky efektivního difúzního koeficientu sodíku pro orientované vzorky, vypočtené z rovnovážného toku. Podobně jako u chloridu, difúzní koeficienty jsou nižší u kolmo orientovaných vzorků.

Tab. 17 Výsledky efektivních difúzních koeficientů z průnikových difúzních experimentů s  $^{22}\text{Na}$  a  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$  na vzorcích z experimentálního a monitorovacího vrtu a na orientovaných vzorcích z rozrážky 15.001 (Havlová et al. 2017)

označení vzorku	experimen- tální vrt	monitro- vací vrt- vzorek W	paralelní1	paralelní2	kolmý1	kolmý2
$D_e \cdot 10^{12}$ (m <sup>2</sup> /s)	5,5 ± 1,3	4,79	3,08	2,85	2,62	2,59
$D_e(\text{Na})/D_e(\text{HTO})$	1,53 ± 0,44	1,45	0,84	0,85	0,68	0,65

Tyto experimenty nepotvrdily významný vliv usměrnění zrn aarského granitu, které by způsobilo usměrněnou difúzi, jak se lze domnívat z průběhu in-situ experimentu. Také se ukázalo, že iontová síla může mít významný vliv na průběh difúze kationtů. Za nízké salinity (podzemní voda GGW1) je difúze  $^{22}\text{Na}$  rychlejší než difúze neutrální tritiované vody. Za vyšší salinity je  $D_e$  sodíku menší než pro HTO. Pro tyto efekty se vžilo pojmenování povrchová difúze. Lze předpokládat, že tyto efekty budou pozorovány i v prostředí české granitické vody. Srovnáním průběhu in-situ experimentu (nezaznamenání  $^{22}\text{Na}$  současně s HTO v monitorovacím vrtu, ale mnohem později než  $^{36}\text{Cl}$ ) a laboratorních experimentů lze také dovodit, že salinita v injekčním vrtu mohla být větší než salinita vody GGW1, se kterou byly provedeny laboratorní experimenty, viz níže.

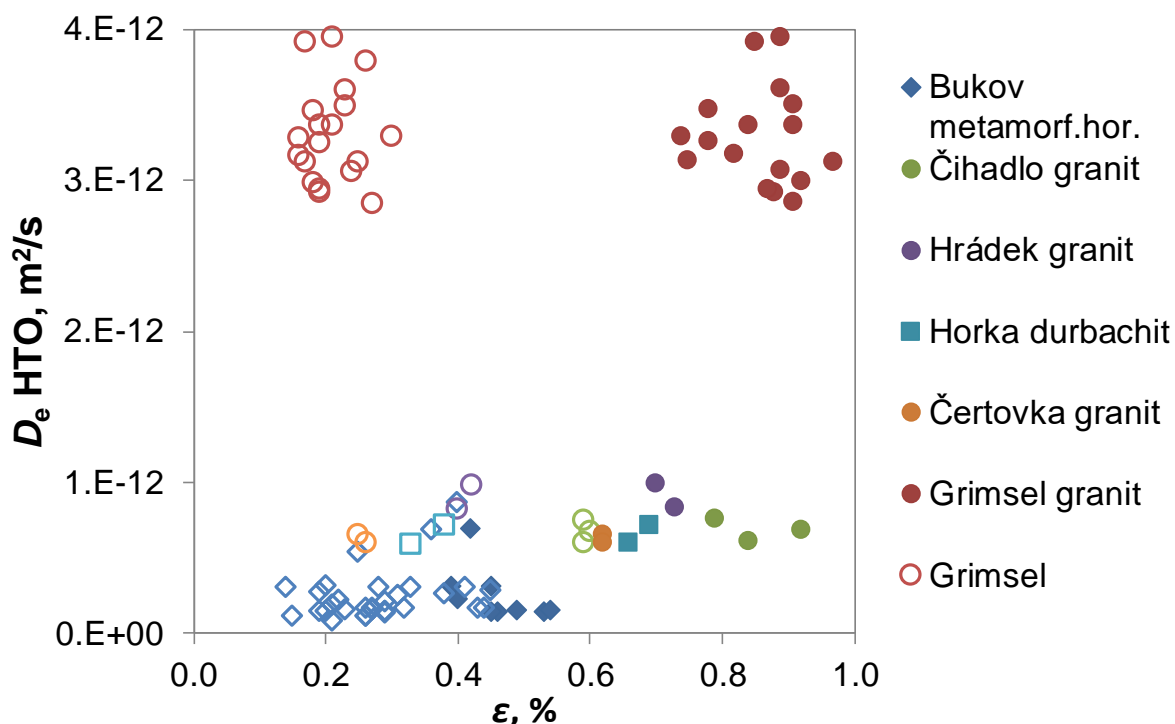


### 4.3.2 Vyhodnocení a shrnutí výsledků difúzních experimentů

V Tab. 18 jsou shrnuty hodnoty všech efektivních difúzních koeficientů získaných vyhodnocením průnikových difúzních experimentů se všemi stopovači za definovaných experimentálních podmínek.

Obecně lze konstatovat, že radionuklidy difundují v horninách aarského granitu rychleji než je tomu u granitoidů českého masivu. Ačkoli jsou hodnoty porozity stanovené z osychací křivky srovnatelné (0,14-0,60 %; u hornin Českého masivu se doporučená hodnota pohybuje kolem 0,4 %), efektivní difúzní koeficient pro  $^3\text{H}$  je téměř o řád vyšší. Problematické vysvětlení je dáno nejistotami v měření porozity u takto málo porézních materiálů (metodika, odvozená od metodiky Melnyk a Skeet (1986) versus měření metodou Hg porozimetrie či z objemu vody ku objemu vzorku), která v určitých případech nedokáže postihnout a kvantifikovat zastoupení a propojení všech typů pórů. V daném okamžiku probíhá studie, která by měla optimalizovat měření porozity u granitových vzorků a umožnit zpřesněná měření, jejichž výsledkem by byla i distribuce pórů.

Velkou roli hraje pravděpodobně specifická vnitřní struktura aarského granitu (viz Obr. 40), ve které se vytvořily vlivem alpínské deformace propojené „pásy“ alterovaného biotitu, který pravděpodobně vytváří preferenční cesty pro migraci radionuklidů.



Obr. 44 Srovnání hodnot efektivních difúzních koeficientů HTO pro aarský granit a vybrané české granitické horniny při porozitě určené z 0.bodu osychací křivky vzorku (plné symboly) a z průsečíku asymptot osychací křivky (otevřené symboly); data pro české horniny pochází z projektu Výzkumná podpora bezpečnostního hodnocení HÚ, financovaného SÚRAO.

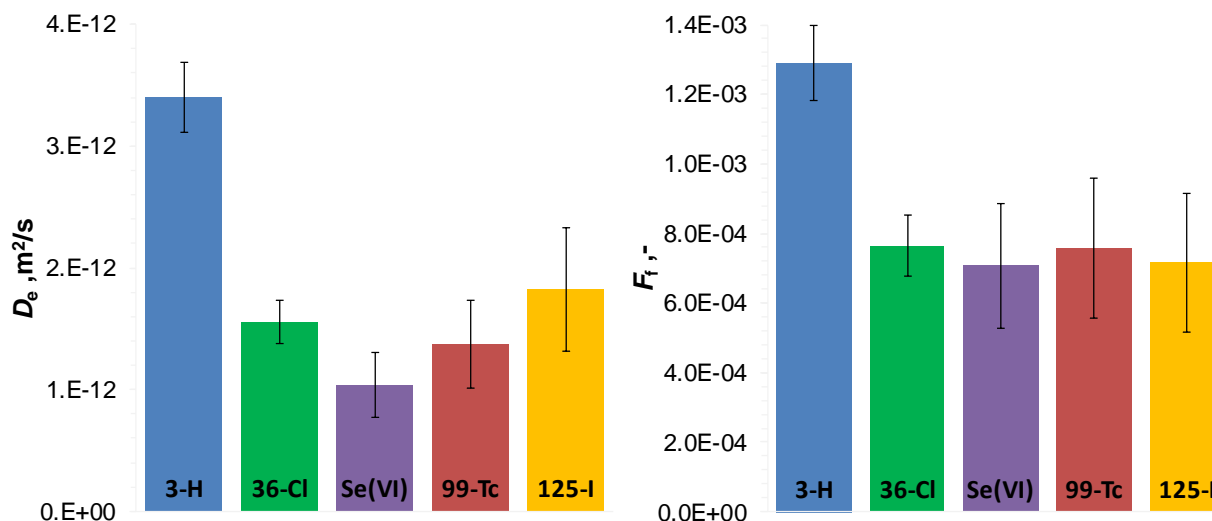
Trend efektivních difúzních koeficientů pro HTO a aniontové specie odpovídal:  $\text{HTO} > \text{I} > \text{Cl} > \text{Tc} > \text{Se}$ . Pro následný rozbor dat, konkrétně zda formační faktor či efektivní porozita je



shodná či rozdílná pro studované anionty, byly provedeny průnikové difúzní experimenty na skleněných fritách s cílem ověřit hodnoty referenčních difuzivit. Při znalosti efektivních difúzních koeficientů a referenčních difuzivit v prostředí použité syntetické vody GGW1 lze interpretovat formační faktory daných specií (součin porozity a geometrického faktoru).

Referenční difuzivity byly stanoveny z efektivních difúzních koeficientů na porézních fritách a úvahy, že formační faktor frity je shodný pro všechny specie (tedy, že na fritě nedochází k elektrostatickým ani retardačním efektům). Formační faktor frity byl stanoven z efektivního difúzního koeficientu chloridu a referenční difuzivity  $2,03 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ ). Pomocí formačního faktoru frity a efektivních difúzních koeficientů na porézních fritách byly vypočteny tyto referenční difuzivity: HTO  $2,64 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ , Se  $1,47 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ , Tc  $1,81 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  a I  $2,54 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ . Tyto referenční hodnoty byly použity pro výpočet formačních faktorů HTO a aniontů v aarském granitu. Souhrnné výsledky efektivních difúzních koeficientů a formačních faktorů v aarském granitu jsou zobrazeny na Obr. 45. Je vidět, že formační faktory jsou pro všechny anionty srovnatelné. Rozdíl v difúzním chování není tedy způsoben nábojem či velikostí aniontu, je dán pouze rozdílnou difúzí ve volné vodě. Vyšší formační faktory pro HTO lze vysvětlit několika způsoby. Prvním důvodem vyšších formačních faktorů HTO oproti aniontům je tzv. aniontová exkluze představující elektrostatické odpuzování aniontu a negativního povrchu minerálů. Formační faktor HTO je vyšší, protože efektivní porozita HTO je vyšší než pro aniont. S rozdílnou porozitou patrně souvisí i jiná hodnoty geometrického faktoru HTO a aniontu. Je nutné zdůraznit, že zatím nikdo nepodal experimentální důkaz, že přístupné pórové objemy jsou různé pro různé specie. To samé platí pro geometrické faktory. Pro horninové vzorky neexistují (zatím) metody (na rozdíl od bentonitu), pomocí nichž by bylo možné určit další difúzní parametr nezávisle (např. efektivní porozita, zdánlivý difúzní koeficient).

Druhým vysvětlením je duální charakter pórového prostoru, kdy specie difundují jednak intergranulárními, jednak intragranulárními póry, jejichž vlastnosti se liší. Porozita intragranulárních pórů v takových minerálech jako jsou slídy je patrně vyšší než porozita intergranulárních pórů. Obě komponenty mají patrně rozdílný geometrický faktor (vrstevnaté minerály vs. mezizrný prostor). V případě HTO není difúze ovlivněna žádnými elektrostatickými či retenčními mechanismy. Zatímco v případě aniontů pravděpodobně dochází k elektrostatickým efektům (patrně v intragranulární síti pórů zodpovědných minerálů za aniontovou exkluzi) a v případě kationtů k zpomalení retardačním mechanismem (nejčastěji kationtovou výměnou v intragranulární porozitě na příslušných minerálech). Takový multiporozitní systém může vést k charakteru migrace přes vzorek, který jsme pozorovali hlavně u silně sorbující kationtů. Pokud jsou kationty postiženy různým chováním v obou typech pórů, je jasné, že anionty by tím měly být postiženy také.



Obr. 45 Výsledky difúzních experimentů s HTO a s anionty (vlevo efektivní difúzní koeficienty, vpravo formační faktory).

Z výše diskutovaných výsledků experimentů a z Tab. 18 je patrné, že difúze sodíku byla v porovnání s HTO rychlejší (Havlová et al. 2016). Měřitelný průnik <sup>22</sup>Na byl zaznamenán již po týdnu. Otázkou je, proč v in-situ experimentu byla zaznamenána dlouhá doba k průniku <sup>22</sup>Na do monitorovacího vrtu v porovnání s HTO. Vysvětlením mohou být následující faktory: odlišná salinita a pH vstupního roztoku, odlišná salinita a pH pórové granitické vody, která není známa, a usměrněný pohyb radionuklidů v horninovém masivu. Vliv mohla mít i nízká aktivita <sup>22</sup>Na ve zdrojovém rezervoáru. Vezmeme-li údaj z analytické laboratoře PSI, pak objemová aktivita <sup>22</sup>Na po spuštění in-situ experimentu byla 812 Bq/ml.

U silně se sorbujících specií je průběh poklesu <sup>133</sup>Ba ve zdrojovém rezervoáru průnikových difúzních experimentů pro všechny vzorky srovnatelný (podobně jako chování <sup>22</sup>Na), průběh <sup>134</sup>Cs je však odlišný. Je to s největší pravděpodobností způsobeno jedinečností jednotlivých vzorků, zejména množstvím biotitu. U barya je rapidní pokles aktivity pozorován první dva týdny experimentu s následným pozvolným poklesem, podobně jako v in-situ experimentu. Ačkoliv se jedná o silně sorbující se specie, u některých vzorků byl pozorován průnik do cílového rezervoáru (vzorky 134Cs\_B, 133Ba\_D), viz Příloha 1.

Duální charakter porozity je za nejpravděpodobnější důvod pro nesnadné fitování difúze cesia a barya. Při vyhodnocování difúze cesia, i pro baryum není možné fitovat oba vývoje objemové aktivity zároveň s použitím relevantních existujících dat (tj. hodnota porozita blízké 1 % a geometrický faktor od 0 do 1). Nabízí se rozdělit difúzní proces na dvě komponenty, popisující migraci v *intergranulárních* a *intragranulárních pórech* (Havlová et al. 2016 a Havlová et al. 2017). Protože zastoupení jednotlivých komponent není známé, a ani jejich transportní vlastnosti, nelze tyto experimenty v současné době plnohodnotně vyhodnotit.

Tab. 18 Souhrnná tabulka s výsledky difúzních experimentů se vzorky z vrtů 10.001 a 12.001 v prostředí syntetické podzemní vody GGW1 za aerobních podmínek (jiné podmínky jsou označeny u příslušného experimentu; AN anaerobní, 7 pH = 7, 9 pH = 9, IS iontová síla, Cs/Sr přidány stabilní nosič ve formě chloridu o koncentraci 0,01 mM.

Označení vzorku	Vrt	Porozita stanovená z 0.bodu osychací křivky (%)	Porozita stanovená z osychací křivky (%)	HTO $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>36</sup> Cl $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	Se(VI) $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>125</sup> I- $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>99</sup> TcO <sub>4</sub> <sup>-</sup> $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>22</sup> Na $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>85</sup> Sr $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>134</sup> Cs	<sup>133</sup> Ba
A	10.001	0,91	0,27	2,85		0,65 (AN)	1,78				proběhl (Cs)	
B	10.001	0,92	0,18	2,99	1,57						proběhl	
C	10.001	0,89	0,24	3,06		1,11 (AN)			4,43			
D	10.001	0,89	0,21	3,95		0,78 (7)		1,30				proběhl
F	10.001	0,97	0,25	3,12		0,78 (AN)					proběhl	
G	10.001	0,89	0,23	3,60	1,39		1,71	1,25	5,39			
I	10.001	0,88	0,19	2,92	1,64						proběhl (Cs)	
K	10.001	0,94	0,25	4,14		1,33 (AN)						běží
L	10.001	0,85	0,17	3,92		0,94	2,27	1,22	6,22			
M	10.001	0,84	0,19	3,36		1,60 (7)						běží
N	10.001	1,0 (0,73; 1,31)	0,26 (0,24;0,27)	3,79		1,12 (AN)	1,52	1,71	5,99			
O	10.001	0,82	0,16	3,17	1,61							
<b>průměr ± nejistota</b>	<b>10.001</b>	<b>0,90 ± 0,04</b>	<b>0,22 ± 0,02</b>	<b>3,41 ± 0,29</b>	<b>1,55 ± 0,18</b>	<b>1,04 ± 0,27</b>	<b>1,82 ± 0,51</b>	<b>1,37 ± 0,36</b>	<b>5,5 ± 1,3</b>	-	-	-
Q	12.001	1,0	0,27	4,09	2,76 ( <sup>134</sup> Cs <sup>36</sup> Cl; IS ~ 11 mM)	1,09 (7)					proběhl ( <sup>134</sup> Cs <sup>36</sup> Cl)	
R	12.001	1,2	0,30	3,30	1,84; 1,77 2,82 (IS ~ 0,1 M NaCl)						běží	
S	12.001	0,91	0,23	3,50		1,0 (7)				14		běží
T	12.001	0,91	0,21	3,37								



**Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu  
v Grimsel Test Site**

Evidenční označení:

**ZZ 345/2018**

Označení vzorku	Vrt	Porozita stanovená z 0.bodu osychací křivky (%)	Porozita stanovená z osychací křivky (%)	HTO $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>36</sup> Cl $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	Se(VI) $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>125</sup> I- $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>99</sup> TcO <sub>4</sub> <sup>-</sup> $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>22</sup> Na $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>85</sup> Sr $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	<sup>134</sup> Cs	<sup>133</sup> Ba
V	12.001	0,87	0,19	2,94	1,64					12 (Sr)		
W	12.001	0,74	0,16	3,31		0,7			4,79			
X	12.001	0,78	0,19	3,25								běží
Z	12.001	0,75	0,17	3,15	2,06 ( <sup>22</sup> Na <sup>36</sup> Cl; IS ~ 15 mM)				2,87 ( <sup>22</sup> Na <sup>36</sup> Cl; IS ~ 14 mM)			
Ž	12.001	0,78	0,18	3,46	1,51 2,26 ( <sup>134</sup> Cs <sup>36</sup> Cl; IS > SGGW)	0,6					proběhl ( <sup>134</sup> Cs <sup>36</sup> Cl)	
<b>průměr ± nejjistota</b>	<b>12.001</b>	<b>0,88 ± 0,11</b>	<b>0,21 ± 0,04</b>	<b>3,37 ± 0,24</b>	<b>1,65 ± 0,37</b>	<b>0,84 ± 0,38</b>	-	-	-	-	-	-

## 5 Modelování in-situ experimentu

Další součástí programu projektu LTD Phase III. je simulace in-situ experimentu, probíhající v několika fázích:

- predikční modelování (Havlová a Landa, 2012),
- vytvoření modelu experimentu v prostředí Goldsim
- průběžná verifikace modelu, vytvořeného ve fázi predikce in-situ experimentu, na základě poklesu aktivity radionuklidů v experimentálním vrtu a nárůstu aktivity v pozorovacím vrtu a laboratorních experimentech
- post mortem modelování, kde je model verifikován na základě údajů aktivity radionuklidů z profilu v hornině, zjištěného na základě převrtání experimentálního vrtu (dle původního plánu 2018).

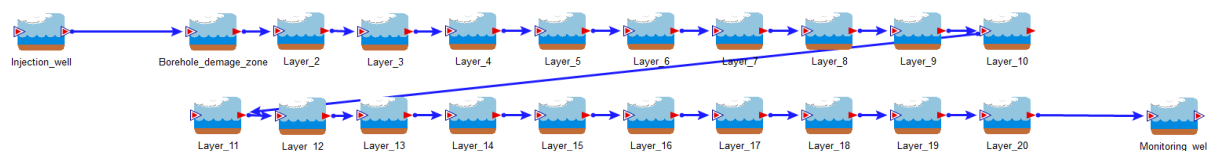
V rámci LTD Phase I. byl pro modelování použit 1D transportní model v cylindrických koordinátách (Soler et al., 2015), zhotovený v prostředí FORTRAN. Vzhledem ke změně přístupu ze strany zadavatele, ale i návaznosti na další projekty, bylo rozhodnuto o změně použitého programu ve prospěch projektu. Obdobný experimentální koncept má i experiment REPRO TDE (Retention Processes, Through Diffusion Experiment), řešený v rámci projektu Task Force Groundwater Flow and Transport of Solutes (TF GWFTS), kterého se řešitel rovněž účastní v rámci projektu Výzkumná podpora hodnocení bezpečnosti HÚ. Propojení řešení obou experimentů umožní získat nezastupitelné know-how při řešení in-situ experimentů simulujících procesy migrace radionuklidů v reálných podmínkách HÚ.

### 5.1 Konceptní model

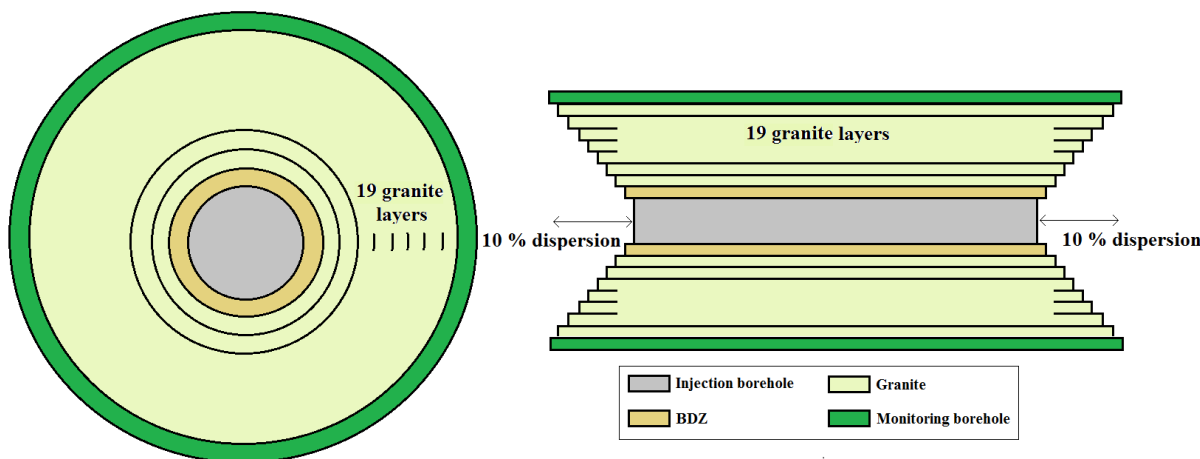
Pro řešení průběhu experimentu LTD Phase III. byl použit program GoldSim, jako hlavní komponenta byla použita komponenta „buňka“ (*cell*).

Horninové prostředí bylo rozděleno na 20 modelových vrstev (Obr. 46), které představují horninové prostředí mezi experimentálním a pozorovacím vrtem. Pozorovací vrt je umístěn ve vzdálenosti 10 cm od experimentálního vrtu (vzdálenost mezi osami vrtů), vrtný poloměr je 2,8 cm, mocnost horninové matrice mezi dvěma vrty je tedy 4,4 cm. V současném nastavení modelu jsou pro všechny modelové vrstvy nastaveny stejné materiálové parametry, není rozlišena horninová matrice a BDZ zóna.

V matematickém modelu je předpokládán izotropní radiální transport radionuklidů od stěny vrtu, jediným uvažovaným transportním procesem je proces difúze. Disperze 10 % je do modelu začleněna pomocí zvětšujícího se objemu modelových vrstev simulujících horninové prostředí (Obr. 47). Z retardačních procesů byla uvažována pouze sorpce radionuklidů na horninovou matici, radioaktivní rozpad byl zanedbán z toho důvodu, že poskytnuté měřené výsledky jsou opraveny tak, aby radioaktivní rozpad neovlivňoval měřené výsledky (tzv. decay corrected, měřené aktivity jsou přepočtem navýšeny o pokles aktivity, ke kterému dochází díky radioaktivnímu rozpadu).



Obr. 46 Rozdělení simulovaného prostředí do 20 modelových vrstev.

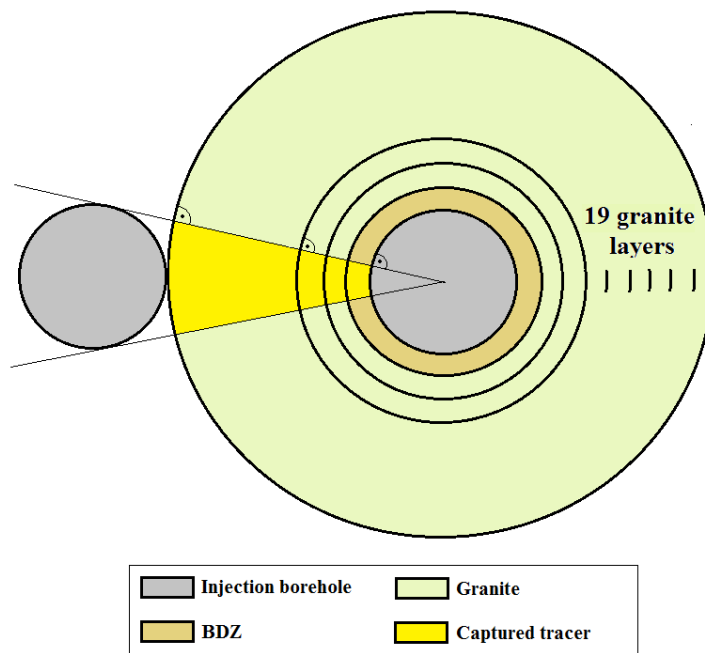


Obr. 47 Rozdělení simulovaného prostředí do 20 modelových vrstev (vlevo), zobrazení způsobu zahrnutí disperze do matematického modelu (vpravo).

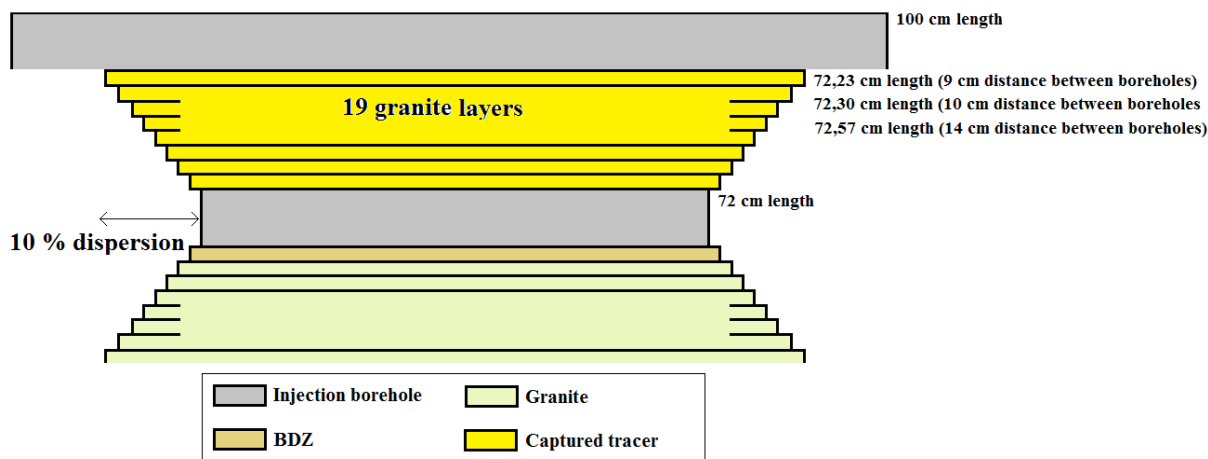
Do matematického modelu byl přidán vedle experimentálního vrtu i pozorovací vrt. Pozorovací vrt je simulován jako souvislý volný prostor kolem celé poslední buňky představující horninové prostředí (Obr. 47), je v něm tedy zachycena veškerá aktivita daná transportními parametry v uvažovaném časovém horizontu. Pozorovací vrt však ve skutečnosti zachytává pouze určité procento radionuklidů, vzhledem k radiálnímu charakteru šíření radionuklidů od stěny experimentálního vrtu je velká část radionuklidů transportována mimo pozorovací vrt. Z toho důvodu je aktivita v pozorovacím vrtu úměrně snížena, míra snížení odpovídá poměru obvodu vrtného pláště, který přísluší transportnímu směru, k celkovému obvodu pláště experimentálního vrtu (Obr. 48). Matematický model tak předpokládá izotropní šíření radionuklidů od experimentálního vrtu, ačkoli v in-situ může docházet k anizotropnímu transportu, kdy v jednom transportním směru bude transport rychlejší než ve směrech ostatních. Vliv anizotropie ale není možný postihnout jedním pozorovacím vrtem.

Matematický model dále předpokládá, že zapakovaná část pozorovacího vrtu zachytává veškeré radionuklidy příslušné danému transportnímu směru (Obr. 49), model neuvažuje možnou šikmou foliaci horniny, která by mohla způsobit, že část radionuklidů příslušných danému transportnímu směru bude transportována pod zapakovaný interval v pozorovacím vrtu.





Obr. 48 Zobrazení míry snížení aktivity v pozorovacím vrtu, kdy aktivita v pozorovacím vrtu je daná záchytem pouze určitého množství radionuklidů transportovaná v daném transportním směru od experimentálního k pozorovacímu vrtu

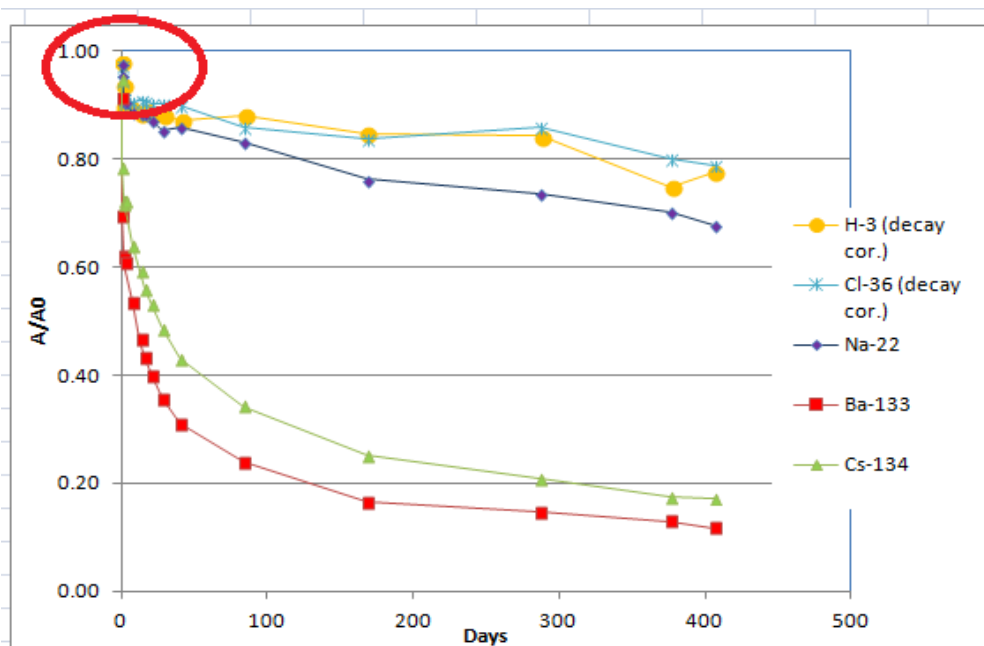


Obr. 49: Zobrazení rovnoměrného šíření radionuklidů od experimentálního k pozorovacímu vrtu.

## 5.2 Primární kalibrace materiálových parametrů

Principem kalibrace matematického modelu byla změna vybraných materiálových parametrů s cílem dosáhnout shody mezi měřeními a modelovými výsledky, měřený interval byl cca 1 266 dní.

Ke kalibraci byla použita jak data z experimentálního vrtu (vývoj aktivity  $^3\text{H}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{133}\text{Ba}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ ), tak data z pozorovacího vrtu (nenulové hodnoty vykazují pouze nesorbující se  $^3\text{H}$  a  $^{36}\text{Cl}$ ) – Havlová et al. (2017). Strmý pokles aktivity v experimentálním vrtu v průběhu prvního dne měření byl oříznut z toho důvodu, že tento pokles přisuzujeme rozředění aktivity v injekčním systému při zahajování experimentu (Obr. 50). Obdobným způsobem k tomuto problému přistupují i ostatní modelující v rámci projektu, JAEA a CSC (NAGRA).



Obr. 50 Oříznutí strmého poklesu aktivity během prvního dne měření.

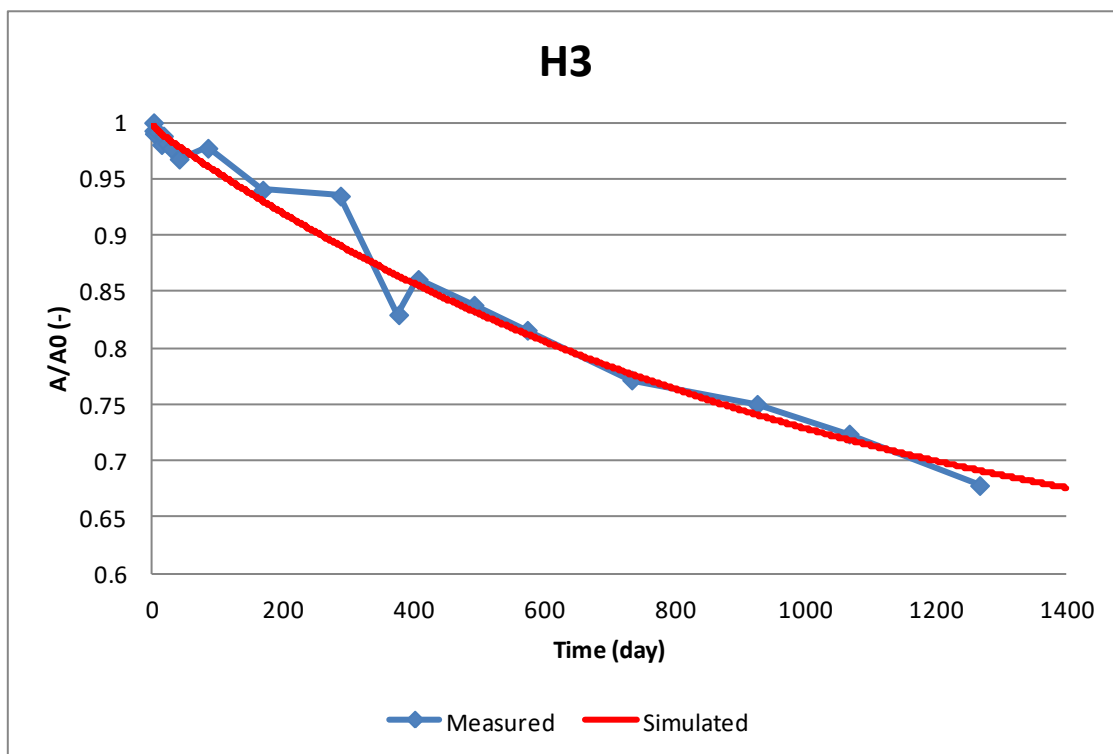
V průběhu kalibrace byly měněny nejprve pouze parametry  $D_e$ , ostatní parametry byly brány jako konstantní z důvodu zvýšení počtu volnosti matematického řešení (Tab. 19). Hodnota  $K_d$  byla převzata z výsledků laboratorního měření (Havlová et al., 2015, zrnitostní frakce E, > 0,8 mm). Vzhledem k velmi malé shodě mezi měřeními a modelovými výsledky u  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  byl ve druhé fázi kalibrován u těchto radionuklidů i parametr  $K_d$ .

Tab. 19 Konstantní modelové parametry

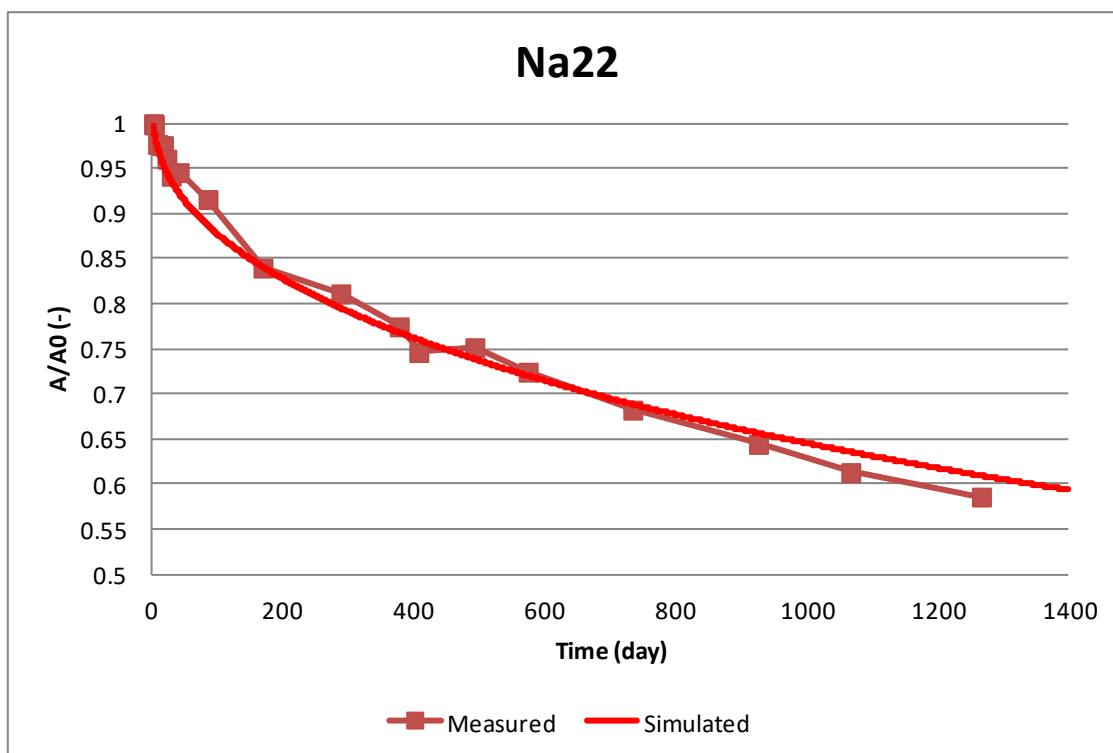
Nuklid	Porozita (-)	Objemová hmotnost ( $\text{kg/m}^3$ )	$D_w$ ( $\text{m}^2/\text{s}$ )
$^3\text{H}$	0,004	2670	$2,3 \cdot 10^{-9}$
$^{22}\text{Na}$	0,004	2670	$1,3 \cdot 10^{-9}$
$^{36}\text{Cl}$	0,004	2670	$2,0 \cdot 10^{-9}$
$^{133}\text{Ba}$	0,004	2670	$1,7 \cdot 10^{-9}$
$^{134}\text{Cs}$	0,004	2670	$2,1 \cdot 10^{-9}$

### 5.3 Výsledky primární kalibrace matematického modelu

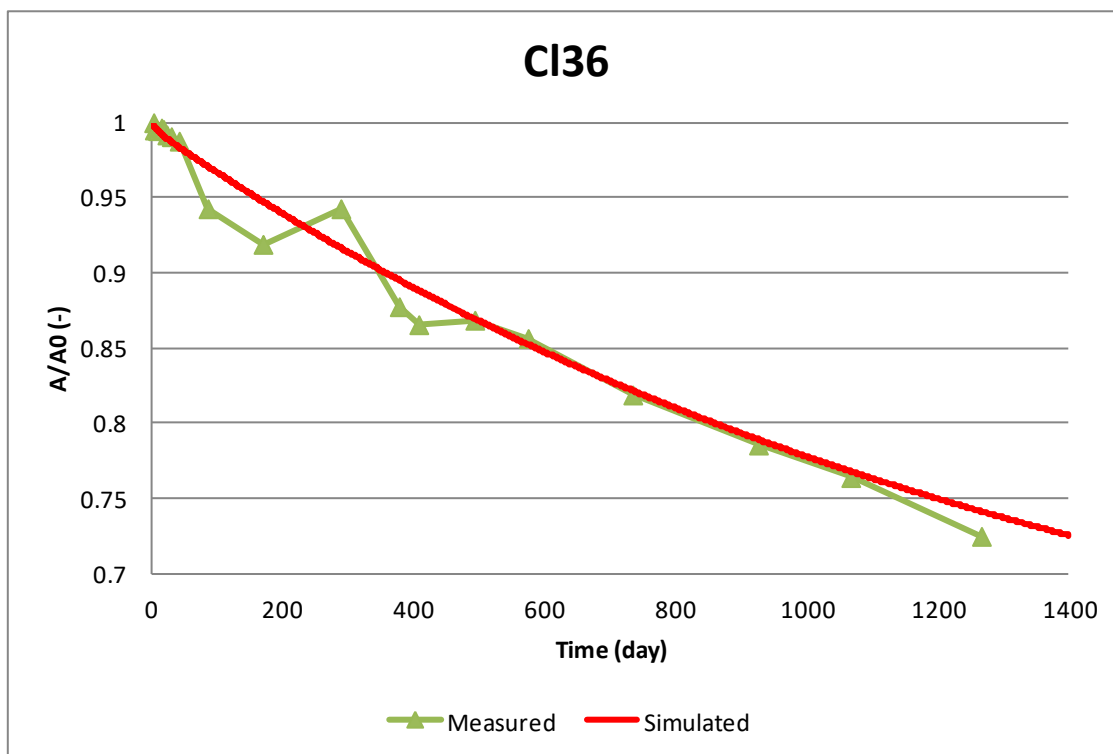
Shoda mezi modelovými a měřeními hodnotami poklesu aktivity v experimentálním vrtu bez kalibrace parametru  $K_d$  je uvedena na Obr. 51 - Obr. 55, shoda mezi modelovými a měřeními hodnotami poklesu aktivity v experimentálním vrtu při kalibraci parametru  $K_d$  u  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  je zobrazena na Obr. 56 a Obr. 57. Shoda mezi měřením a modelovým vývojem aktivity v pozorovacím vrtu je uvedena na Obr. 58 a Obr. 59. Výsledné hodnoty kalibrovaných materiálových parametrů jsou pak uvedeny v Tab. 20 a Tab. 21.



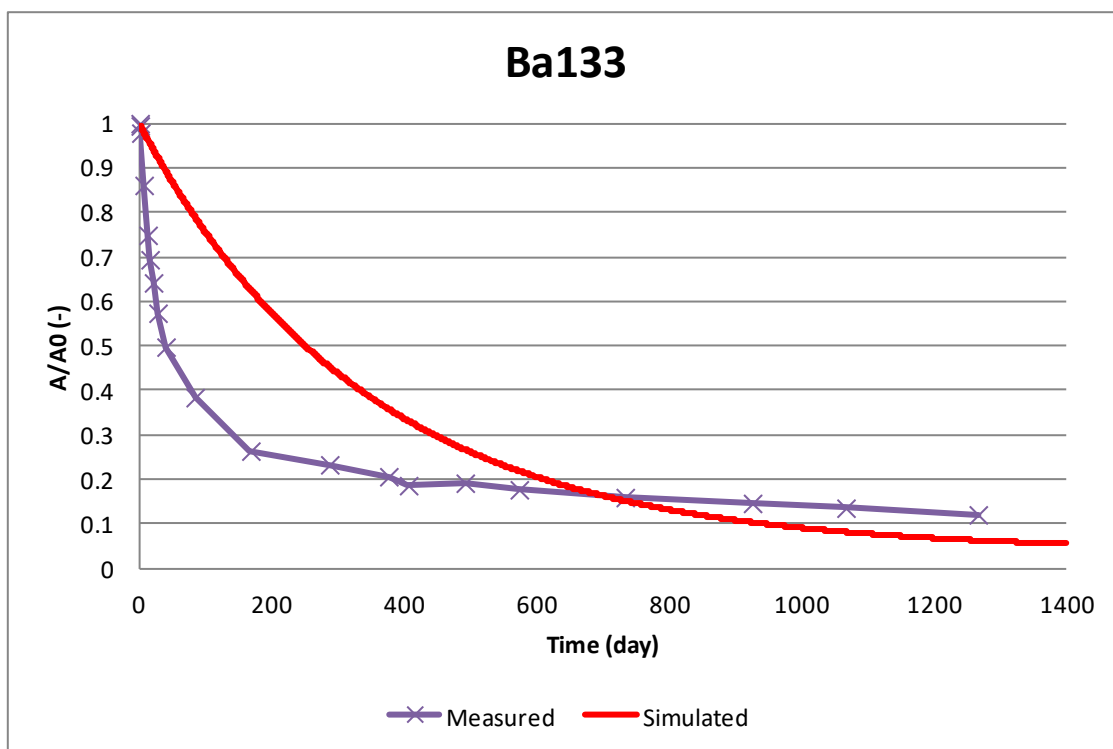
Obr. 51 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^3\text{H}$  v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech).



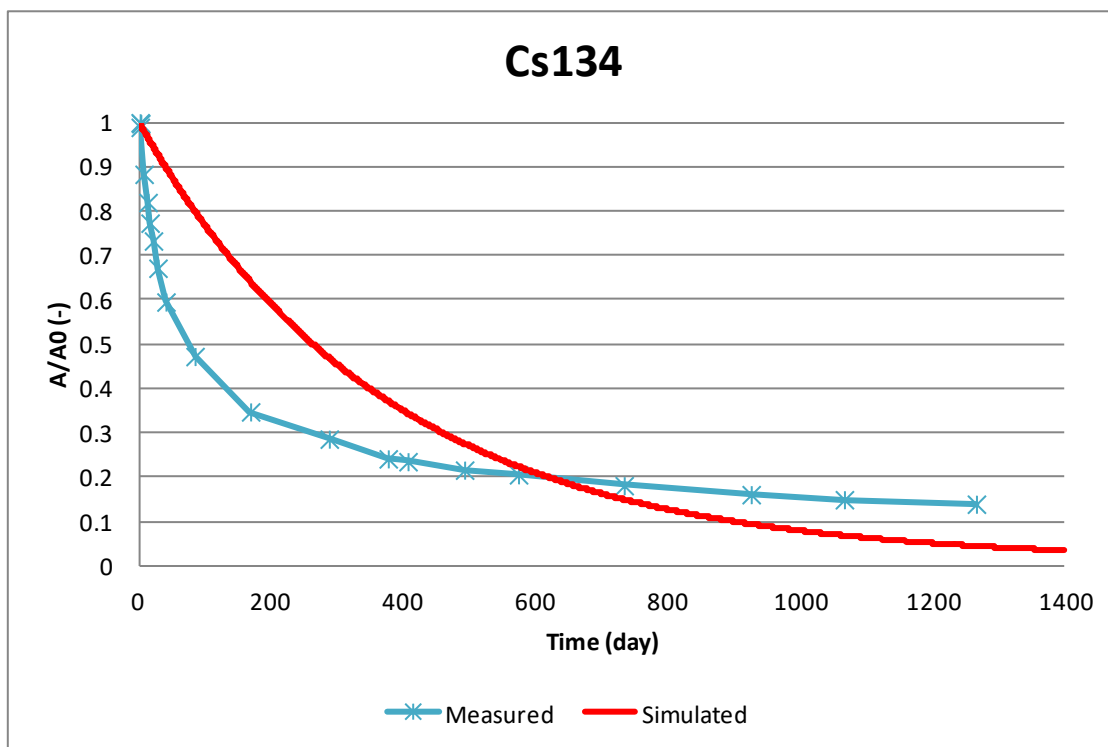
Obr. 52 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^{22}\text{Na}$  v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech).



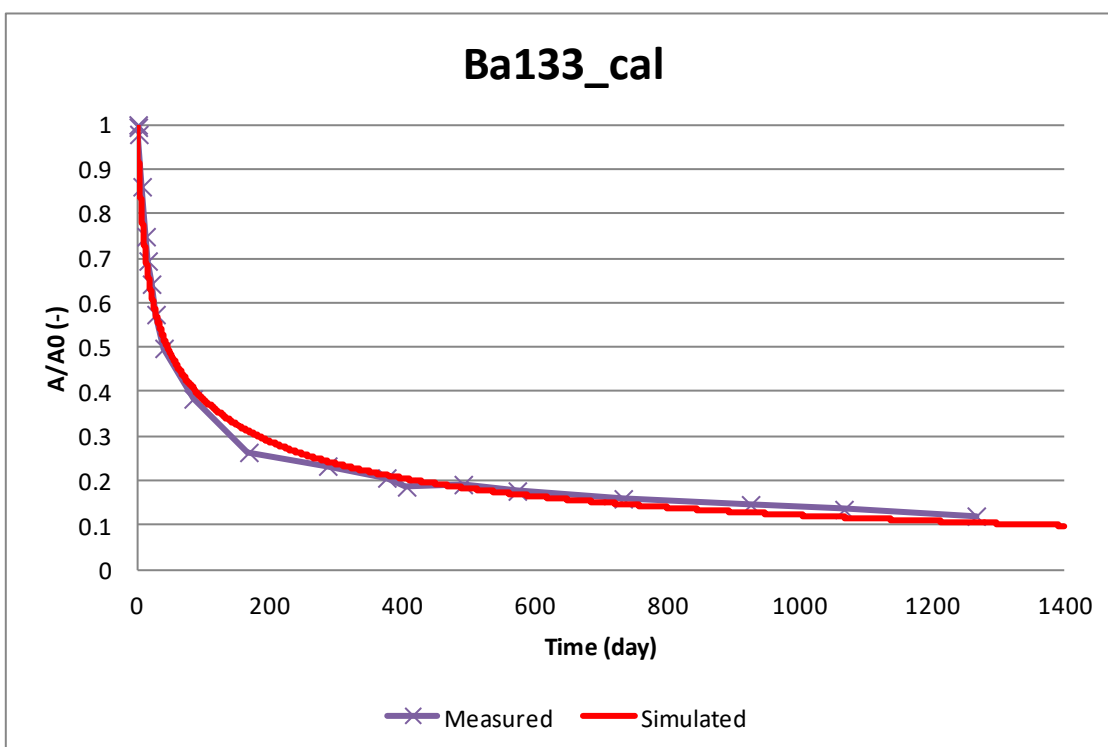
Obr. 53 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^{36}\text{Cl}$  v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech).-



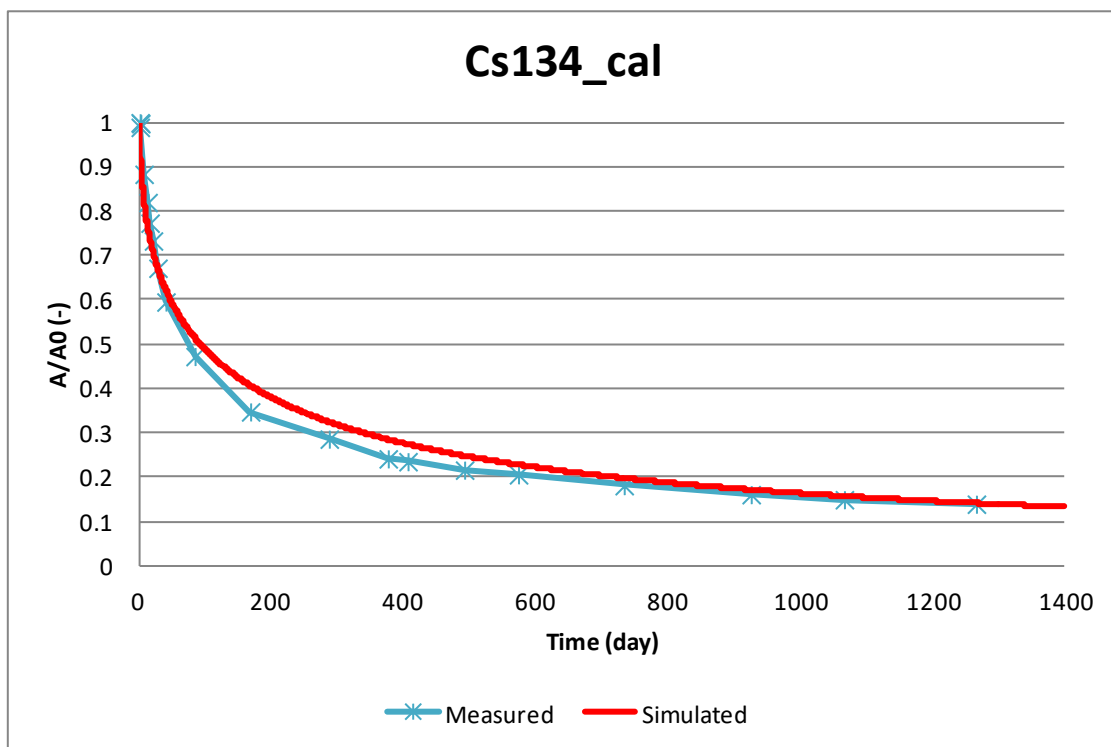
Obr. 54 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^{133}\text{Ba}$  v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech). Byl kalibrován pouze parametr  $D_e$ , parametr  $K_d$  byl vzat z laboratorního měření (Havlová et al., 2015, frakce  $E > 8 \text{ mm}$ ).



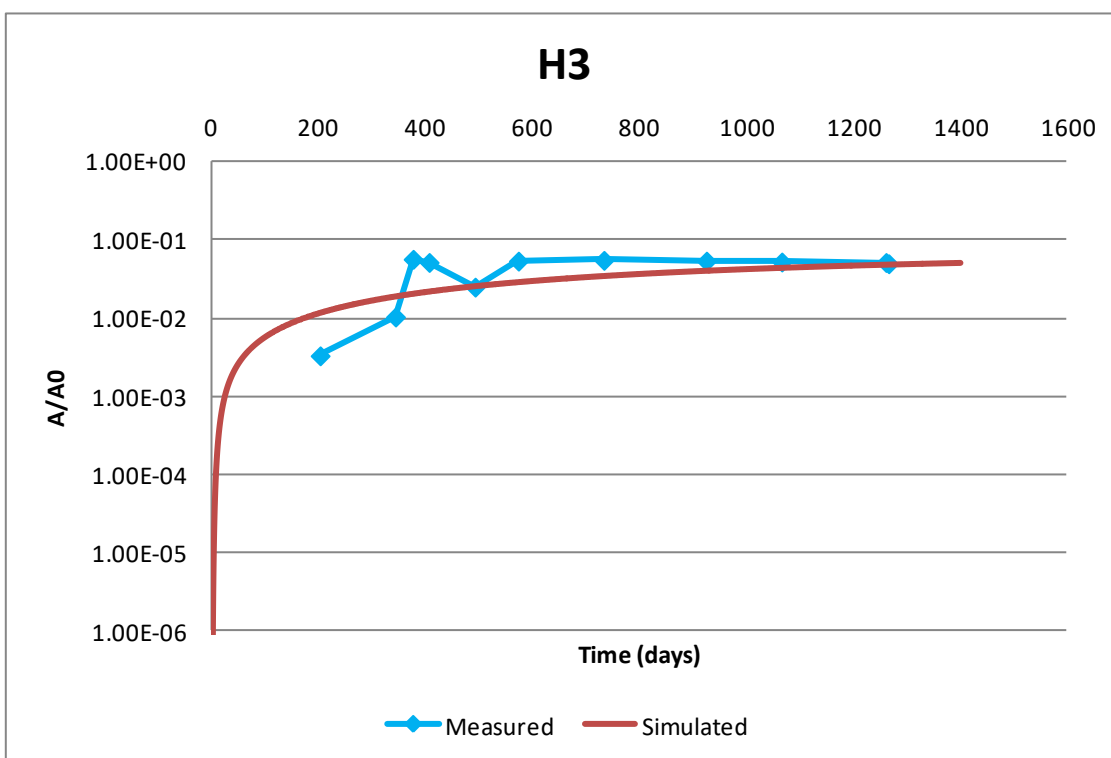
Obr. 55 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^{134}\text{Cs}$  v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech). Byl kalibrován pouze parametr  $D_e$ , parametr  $K_d$  byl vzat z laboratorního měření (Havlová et al., 2015, frakce  $E > 8 \text{ mm}$ ).



Obr. 56 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^{133}\text{Ba}$  v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech), vedle parametru  $D_e$  byl kalibrován i parametr  $K_d$ .

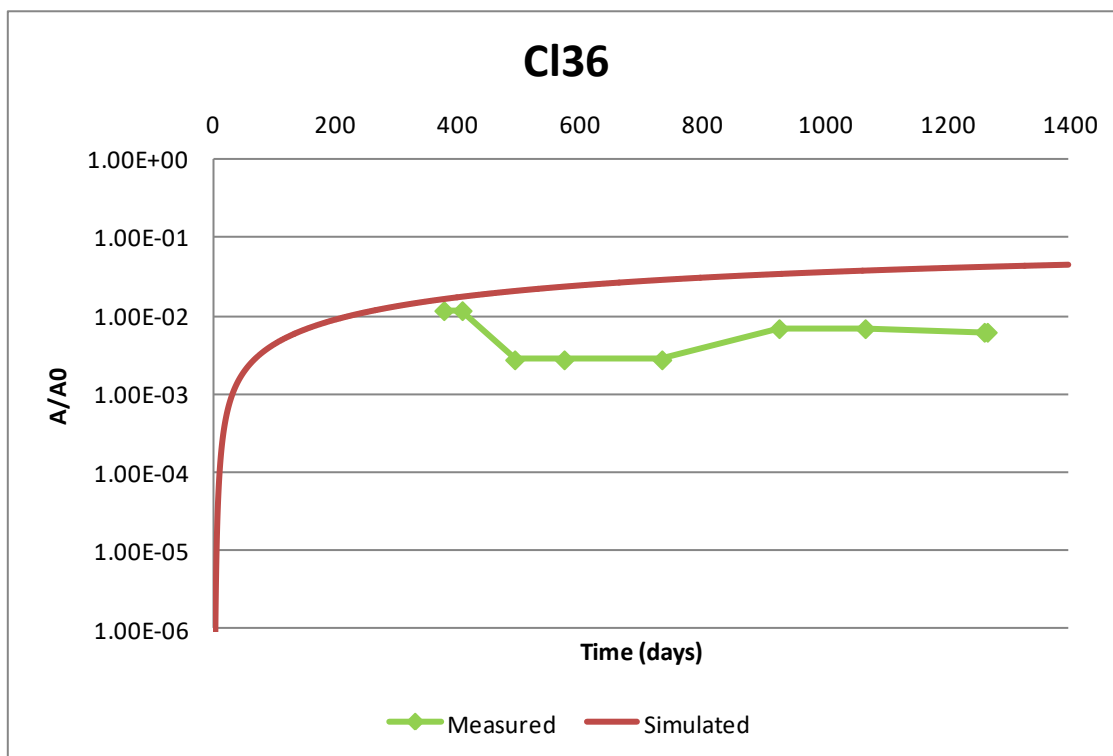


Obr. 57 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^{134}\text{Cs}$  v experimentálním vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech), vedle parametru  $D_e$  byl kalibrován i parametr  $K_d$



Obr. 58 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^3\text{H}$  v pozorovacím vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech).





Obr. 59 Porovnání simulovaného a měřeného vývoje aktivity  $^{36}\text{Cl}$  v pozorovacím vrtu (pokles relativní aktivity v experimentálním vrtu vs. čas ve dnech).

Tab. 20 Výsledné kalibrované parametry po kalibraci matematického modelu na měřená data bez úpravy parametru  $K_d$

Nuklid	Porozita (-)	$K_d$ ( $\text{m}^3/\text{kg}$ )	$D_e$ ( $\text{m}^2/\text{s}$ )
$^3\text{H}$	0,004	0	$3,0 \cdot 10^{-12}$
$^{22}\text{Na}$	0,004	0,00025	$1,3 \cdot 10^{-12}$
$^{36}\text{Cl}$	0,004	0	$2,2 \cdot 10^{-12}$
$^{133}\text{Ba}$	0,004	0,090	$8,5 \cdot 10^{-13}$
$^{134}\text{Cs}$	0,004	0,352	$8,0 \cdot 10^{-13}$

Tab. 21 Výsledné kalibrované parametry po kalibraci matematického modelu na měřená data s úpravou parametru  $K_d$  u radionuklidů  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$ .

Nuklid	Porozita (-)	$K_d$ ( $\text{m}^3/\text{kg}$ )	$D_e$ ( $\text{m}^2/\text{s}$ )
$^{133}\text{Ba}$	0,004	0,0025	$1,2 \cdot 10^{-11}$
$^{134}\text{Cs}$	0,004	0,001	$1,3 \cdot 10^{-11}$

Z výsledků je patrné, že se modelové výsledky pro  $^3\text{H}$ ,  $^{22}\text{Na}$  a  $^{36}\text{Cl}$  se poměrně dobře shodují s reálnými měřeními výsledky in-situ. V porovnání s výsledky laboratorními výsledky je však shoda dobrá pouze u  $^3\text{H}$  – pro  $^{36}\text{Cl}$  byl v laboratoři naměřen nižší difúzní koeficient (viz Tab. 18), pro  $^{22}\text{Na}$  naopak vyšší (dtto).

V případě  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  bylo dosaženo dobré shody pouze za předpokladu poměrně nízkých hodnot sorpčních koeficientů (Tab. 21) ve srovnání s reálnými výsledky laboratorních

experimentů (Tab. 12) a poměrně vysokých hodnot pro efektivní difúzní koeficienty. Tato vysoká hodnota je vysvětlitelná např. tzv. povrchovou difúzí pro sorbující se látky (jnapř. Ohlsson a Neretnieks, 1995; Löfgren a Neretnieks, 2002; Jakob, 2004). Tato teorie předpokládá, že část adsorbovaných prvků je mobilní a mohou difundovat podél pevného povrchu, čímž přispívají k celkovému difúznímu toku v horninové matici. Míra toku je popisována pomocí *povrchového difúzního koeficientu*  $D_s$  (Ohlssons a Neretnieks, 1995):

$$D_e = \varepsilon_t D_p + D_s \rho K_d$$

Za rovnovážného stavu pak bude celková míra transportu rovna sumě difúze v pórech a povrchové difúze (Ohlssons a Neretnieks, 1995). Celková míra transportu za ustálených podmínek je pak sumou transportu difúzí v pórech a povrchové difúze (Neretnieks, 1990).

Kalibrované parametry u  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  nejsou jedinou možnou kombinací, tato kombinace však nejlépe popisuje odezvu experimentu při daném nastavení modelu (Havlová et al. 2017). K finálnímu upřesnění výsledků výpočtu a kompletnímu vyhodnocení mělo dojít po převrtání experimentu a získání informací z vývoje koncentrace/aktivity v horninových vzorcích (jaro 2018).

### 5.3.1 Post-mortem modelování (zahrnutí profilu aktivity z experimentu in-situ)

Podle původního plánu řešení projektu byly na poslední rok řešení plánovány následující práce:

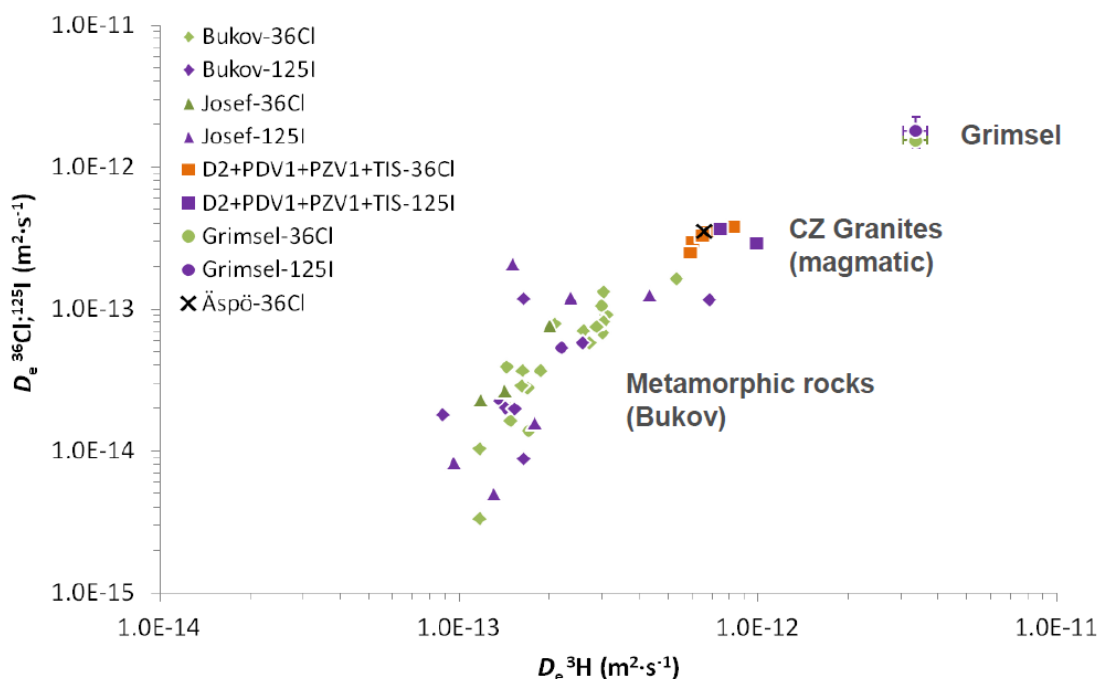
- Úprava modelu s použitím laboratorních hodnot (porozita)
- Změna okrajové podmínky na straně monitorovacího vrtu
- Zvětšení modelové oblasti za monitorovací vrt, aby okrajová podmínka byla v dostatečné vzdálenosti a neovlivňovala sledované parametry v injekčním a monitorovacím vrtu
- Zařazení advekčního členu do modelu
- Doplnění nově naměřených dat z in-situ experimentu jako další

Zatímco první tři body byly připraveny pro finální řešení, vzhledem k zpoždění průběhu experimentálních prací (prakticky o rok) nebylo možno do termínu odevzdání závěrečné zprávy zahrnout výsledky stanovení aktivity radionuklidů v difúzním profilu z experimentu in-situ do výpočtů a provést závěrečné vyhodnocení prací. Tyto výpočty budou dokončeny v navazujícím projektu.

## 6 Význam výsledků experimentu LTD Phase III. pro český program vývoje HÚ

Pokud shrneme doposud dosažené výsledky projektu (projekt bude finálně dokončen na konci roku 2018)

- v granitické matici může docházet k usměrněnému pohybu („difúzi“) radionuklidů; šíření difúzí není radiální a může docházet i příspěvku advektivního toku; původ advektivní složky není zatím v případě experimentu in-situ objasněn (vliv ostatních experimentů, gradient směrem k tunelu? atd.). Na druhou stranu k plnému potvrzení této teorie je nutno 3D vmístění vzorků do prostoru, které objasní směřování migrace radionuklidů. Tyto práce nebylo možno dokončit z důvodu pozdního poskytnutí 3D modelu ze strany NAGRA do doby ukončení tohoto projektu a práce budou pokračovat a budou dokončeny v rámci jiného úkolu
- difúzi radionuklidů v granitických horninách nelze generalizovat a přejímat data bezmyšlenkovitě: ačkoli je aarský granit obdobného stáří, difúzní koeficienty pro  $^3\text{H}$  i anionty jsou o řád vyšší než v horninách české provenience (viz Obr. 60). Je to pravděpodobně způsobeno přeměnou původní porfyrické struktury na mylonitizovanou vliv alpínské deformace a s ní spojenou přeměnou biotitu a živců na sekundární (jílové) minerály typu chlorit či sericit. Pórová struktura těchto minerálů je patrně odlišná od pórové struktury původních minerálů (biotit, živce) a vede k vyšším hodnotám difúze. To, že jsou u aarského granitu a hornin českých měřeny podobné hodnoty porozity, je dáno nedostatkem v měření porozity nízko porézních materiálů (viz dále)
- aniontová exkluze se v aarském granitu vyskytuje v obdobném rozsahu, jako u jiných magmatických hornin Českého masivu (tj. poměr  $D_e(\text{HTO})/D_e(\text{aniont}) \sim 2$ ), nicméně zřejmě vlivem vnitřní struktury horniny dochází k difúzi HTO o cca řád rychleji než v těchto horninách Českého masivu (viz výše)
- doporučili bychom po zkušenostech se soubory dat difúzních koeficientů pro magmatické horniny a metamorfované horniny, že tento soubor dat z podzemní laboratoře Grimsel je možno použít pro horniny, jejichž porozita se pohybuje kolem cca 1 %; tj. teoreticky pro rozvolněnější části horninového masivu (s předpokladem, že porozita hornin Českého masivu se pohybuje kolem 1 %) a bude tvořit horní hranici hodnot  $D_e$ .
- pro migraci Cs je významný obsah biotitu, který může ovlivnit hodnoty  $K_d$  i  $D_e$  ( $D_a$ ) u jednotlivých vzorků
- difúze radionuklidů může být ovlivněna iontovou silou pórové vody v pórech; povědomí o složení granitové pórové vody je však velmi chabé vzhledem k těžkosti, které jsou spojeny s jejím získáním
- z laboratorních experimentů vyplynulo, že usměrnění horniny nemá velký význam pro rychlost difúze radionuklidů; rozdílly jsou v rámci poloviny řádu; z výzkumu pro vzorky z PVP Bukov vyplynulo, že spíše než usměrnění má na hodnotu  $D_e$  vliv typ horniny, kdy nejnižší hodnoty  $D_e$  dosahují metamorfované horniny z PVP Bukov (Obr. 60)



Obr. 60 Hodnoty  $D_e$  pro různé typy hornin: všechny analýzy kromě vzorků z Grimselu byly provedeny v rámci projektu Výzkumná podpora (prezentace V. Havlové na konferenci Migration 2017).

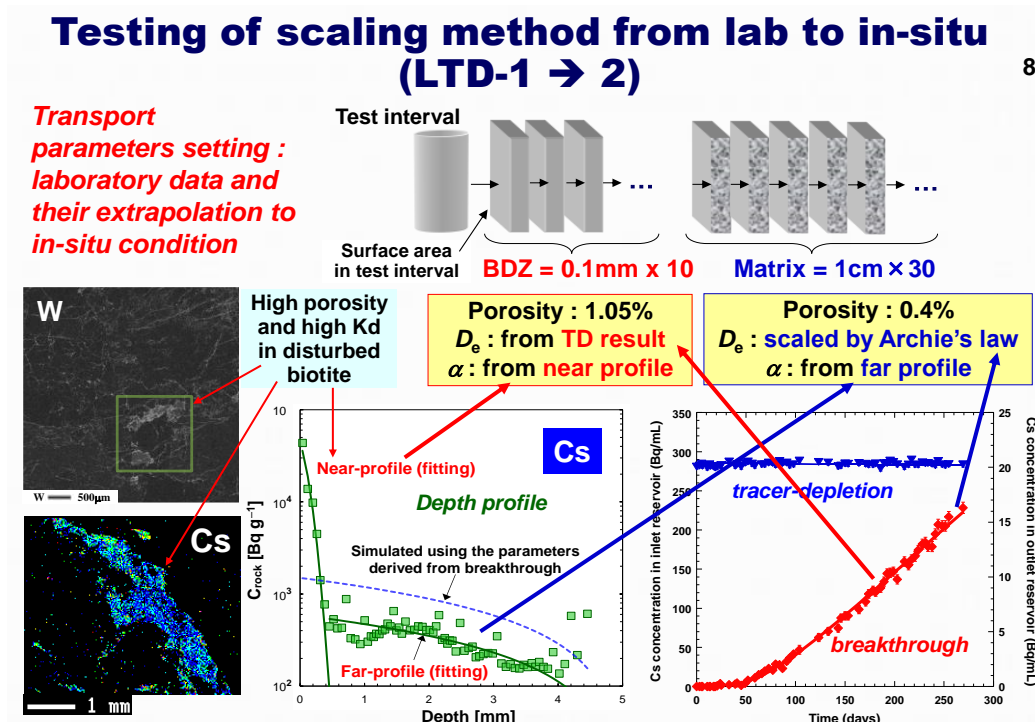
- baryum se obvykle v literatuře uvádí jako analog Ra a uvádí se jako slabě se sorbující radionuklid; v případě těchto experimentů, a to jak in-situ, tak laboratorních, bylo prokázáno, že se sorbuje silně (v in-situ experimentu došlo k sorpci až 92 % aktivity; hodnoty  $K_d$  z laboratorního experimentu dosahují hodnot více než 200 ml/g; maximální hodnota  $K_d$  593 ml/g pro nejjemnější frakci pod 0,063 mm)
- je patrné, že v popisu procesu difúze existuje celá řada nejasností a extrapolace jednoduchého vztahu pro efektivní difúzní koeficient se zdá ne zcela dostačující po popis pohybu částic v heterogenním systému pórů krystalických hornin; podobné náznaky se objevují i při vyhodnocení jiných obdobných experimentů (LTD-SE v Švédsku nebo i LTD I). Tento problém by však potřeboval ještě další řešení.
- zkušenost se set-upem difúzního experimentu v podzemní laboratoři: dipól není dostačujícím rozestavením pro identifikaci, zda jde či nejde o radiální šíření radionuklidů; ideální jsou nejméně 3, spíše však 4 vrty (rozestavené do kříže)
- pro in-situ experiment je nutno použít vhodné aktivity (vyšší u některých radionuklidů, např.  $^{22}\text{Na}$ , než byly použity v tomto experimentu)
- vzhledem ke zpoždění prací na experimentu in-situ, které byly ještě umocněny problémy při převrtání experimentu, nebylo možno dokončit finální vyhodnocení experimentu s využitím modelu v prostředí Goldsim. Tyto činnosti budou dokončeny následně. Nicméně bylo provedeno velké množství doplňujících experimentů, i s jinými stopovači, které mohou vhodně doplnit naše znalosti o migraci radionuklidů v horninovém prostředí grafitických hornin

Laboratorní výzkum i nadále otevírá celou řadu otázek:

- jaký vliv na difúzi radionuklidů má salinita roztoku při všeobecně rozšířené představě, že pórová voda granitu je roztok o vyšší salinitě, který je výsledkem rovnovážné interakce mezi

povrchem pórů a roztokem. Nicméně pokud se podíváme do zprávy Eichingera et al. (2008), kde byl loužen roztok z pórů grimselského granodioritu, pak výsledná voda nebyla o mnoho koncentrovanější než podzemní voda z GTD. Je však otázkou, zda je tento metodický postup správný.

- je možno průběh experimentů popsat modelem duální porozity, která předpokládá různou afinitu zejména u kationtů pro různé minerály? Tato přístup předpokládá, že existuje dvojí typ cest pórovým prostorem - první typ jsou póry zejména v biotitu, kde dochází i k interakci s povrchovými místy a k sorpci. Druhý typ jsou póry mezi minerály, se kterými radionuklid nereaguje, a difunduje jimi do dalších částí prostoru. Podobným způsobem přistupuje k modelování JAEA (prezentace z roku 2015, Obr. 61). V příštím roce bychom se chtěli pokusit o zohlednění tohoto přístupu v modelování a rozdělit křivky na dvě části, první, která popisuje interakci kationtu s povrchem a difúzi a druhou, která popisuje pouze difúzi. Tuto otázku bude řešit aplikace modelu  $\mu$ DFN, vyvíjeného v rámci projektu Výzkumná podpora hodnocení bezpečnosti.



Obr. 61 Extrapolace výsledků laboratorních experimentů do reálného systému (Tachi, meeting partnerů 2015)

## 7 Závěr

Tato závěrečná zpráva shrnuje výsledky projektu „Realizace a vyhodnocení LTD etapa III. experimentu v Grimsel Test Site“ v letech 2014-2018. Cílem projektu bylo posoudit míru reprodukovatelnosti výstupů laboratorního studia difúze do neporušené horninové matrice v porovnání s výsledky experimentu v reálném prostředí a možnost následné implementace do reálných podmínek hostitelské horniny a do modelů, vyhodnocujících difúzi radionuklidů do horniny.

Projekt samotný od počátku řešení nabral prakticky dva roky zpoždění, které bylo umocněno ještě navíc v problémy při převrtání experimentu in-situ v podzemní laboratoři Grimsel na konci roku 2017. Některé z prací proto nemohly být dokončeny, včetně finálního vyhodnocení a definování, jak postupovat při scale up efektu dat, která jsou získávána v laboratoři, pro prostředí reálného horninového masivu.

Obecně lze průběh projektu do následujících etap

### Experiment in-situ

- Příprava experimentu in-situ do roku 2014
- Injekce radionuklidů do experimentálního vrtu: 2014
- Difúzní experiment in-situ: 2014 – 2017
- Ukončení experimentu a převrtání in-situ experimentu: 2017
- **Analýza vzorků z převrtu: do 06/2018**
- **Vyhodnocení všech výsledků 2018**

**Laboratorní experimenty:** 2014 – 2018

### Modelování:

- Predikční modelování: 2011 – 2013
- Vývoj modelu a průběžná kalibrace 2014 – 2017
- **Post-mortem modelování 2018**

Červeně označené části nebylo možné vzhledem ke zpoždění mezinárodního projektu dokončit.

Průběh projektu velmi významně poukázal na některé aspekty experimentů in situ a laboratorních prací. Difúze může být ovlivněna advektivní složkou i v horninové matrici bez puklin. Foliace horniny však pro tento jev s největší pravděpodobností nemá velký význam. Set up experimentu in-situ pak tento neradiální charakter difúze musí odrážet a musí být kombinována nejméně ze 3 vrtů. Na migraci radionuklidů má spíše vliv charakter horniny a její struktura, včetně deformací, které ji postihly v průběhu geologického vývoje, a míra přeměny minerálů primárních na sekundární či místa „stlačení vnitřní struktury vlivem metamorfních či horotvorných procesů. Pro tento typ hornin není aniontová exkluze tak významným fenoménem, jako je tomu u metamorfovaných hornin.

Klasický koncept efektivního difúzního koeficientu se jeví jako ne zcela schopný popsat difúzi jako proces v heterogenním prostředí, který je ovlivněn s největší pravděpodobností intergranulárními a intragranulárnímú póry v různých minerálech granitu, a to zejména u sorbujících se radionuklidů.

Projekt lze jednoznačně hodnotit pozitivně. I negativní aspekty, jako byla například příliš dlouhá příprava experimentu, problémy s ustavením rovnováhy ve vrtech před injekcí radionuklidů, prodloužení průběhu experimentu, zhotovení 3 dodatečných vrtů, problémy při



 <b>SÚRAO</b>	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

vyjmutí pakru) lze použít jako zpětnou vazbu pro potenciální přípravu experimentů v podzemní laboratoři Bukov.

Co lze pro podzemní laboratoř Bukov navrhovat a brát v úvahu

- Nutnost zhotovení alespoň 4 vrtů pro zajištění hodnověrného sledování experimentu
- Nutnost precizní vrtné práce
- Neradiální šíření stopovačů vzhledem k porušení matrice na daném místě
- Aniontovou exkluzi

Vzhledem ke zpoždění prací v podzemní laboratoři Grimsel nebylo do konce projektu dokončit následující části projektu

- Analýzy vzorků z převrtu 18.001 (okolí experimentálního vrtu)
- Post mortem modelování, zahrnující výsledky z profilů z převrtu (profily vrtů 17.004 a 18.001)
- Finální vyhodnocení, včetně hodnocení scale-up efektu (srovnání výsledků z laboratorních experimentů a výsledků in-situ)

Tyto práce budou dokončeny v rámci pokračujících projektů.

## 8 Citace a seznam literatury

- BYEGARD M., JOHANSSON H., SKALLBERG M., TULLBORG E. L. (1998): The interaction of sorbing and non-sorbing tracers with different Äspö rock types. Sorption and diffusion experiments in the laboratory scale. SKB TR-98-18, Svensk Kärnbränslehantering AB, Stockholm, Sweden.
- EICHINGER F., RUEDI J., WABER H., MORI A. (2008): Characterisation of matrix pore water - Diffusion profile in GTS rock matrix. NAGRA Project Report NPB 08-16. NAGRA, Switzerland.
- HAVLOVÁ V. A LANDA J. (2010): Experimentální výzkum difúze radionuklidů v granitoidních horninách: Průběžná zpráva č 2. ÚJV Řež, a. s. pro SÚRAO.
- HAVLOVÁ V., GONDOLLI J., VIDENSKÁ K., HOFMANOVÁ E. (2014): Realizace a vyhodnocení LTD etapa III. experimentu v Grimsel Test Site. Průběžná zpráva projektu za rok 2014. ÚJV Řež, a. s.
- HAVLOVÁ V., HOFMANOVÁ E., KOLOMÁ K., TRPKOŠOVÁ D. (2015): Realizace a vyhodnocení LTD etapa III. experimentu v Grimsel Test Site. Průběžná zpráva projektu za rok 2015. ÚJV Řež, a. s.
- HAVLOVÁ V., HOFMANOVÁ E., TRPKOŠOVÁ D. (2016): Realizace a vyhodnocení LTD etapa III. experimentu v Grimsel Test Site. Průběžná zpráva projektu za rok 2016. ÚJV Řež, a. s.
- HAVLOVÁ V., LANDA J. (2012): Experimentální výzkum difúze radionuklidů v granitoidních horninách: Průběžná zpráva č 4. ÚJV Řež, a. s. pro SÚRAO.
- HAVLOVÁ V., LANDA J., LENGYEL J., SUS F. (2011): Experimentální výzkum difúze radionuklidů v granitoidních horninách: Průběžná zpráva č 3. ÚJV Řež, a. s. pro SÚRAO.
- HAVLOVÁ V., LANDA J., VIDENSKÁ K. (2013a): Experimentální výzkum difúze radionuklidů v granitoidních horninách: Závěrečná zpráva projektu. ÚJV Řež, a. s. pro SÚRAO.
- HAVLOVÁ V., VIDENSKÁ K., GONDOLLI J., VEČERNÍK P. (2013b): Studium retenčních vlastností horninového prostředí vzdáleného pole hlubinného úložiště VOA a VJP. Závěrečná zpráva projektu. ÚJV Řež, a. s. pro SÚRAO. Zpráva ÚJV Řež, a. s. Z3989, 2013.
- Jakob, A. (2004): Matrix diffusion for performance assessment - experimental evidence, modelling assumptions and open issues. PSI Report Nr. 04-08.
- LANYON W. (2015): GTS Phase VI - LTD III. Model Geometry. Aktennotiz AN 15 - 576. NAGRA, Switzerland.
- Lanyon W. (2017): Hydraulic update draft. Presentation on partner meeting, 24.-25.4.2017, Wettingen, Švýcarsko.
- Löfgren, M. and Neretnieks, I. (2002): Formation factor logging in-situ by electrical method 114 background and methodology. SKB Technical Report TR-02-07.
- Neretnieks, I. (1990): Solute transport in fractured rock - Applications to radionuclide waste repositories. SKB Technical Report TR 90-38, Sweden.
- Ohlssons, Y., Neretnieks, I. (1995): Literature survey of matrix diffusion theory and of experiments and data including natural analogues. SKB Technical Report TR 95-12, Sweden..

 <b>SÚRAO</b>	<b>Realizace a vyhodnocení LTD III. experimentu v Grimsel Test Site</b>	Evidenční označení:
		<b>ZZ 345/2018</b>

SOLER J. (2016): In-situ diffusion experiment Monopole 2. Modelling. Presentation on partner meeting, 11.-14.10.2016, Honorobe, Japan.

SOLER J. (2017): In-situ diffusion experiment Monopole 2. Modelling. Presentation on partner meeting, 24.-25.4.2017, Wettingen, Švýcarsko.

SOLER J., LANDA J., HAVLOVA V., TACHI Y., EBINA T., SARDINI P., SIITARI-KAUPPI, EIKENBERG J., MARTIN A. (2015): Comparative modeling of an in situ diffusion experiment in granite at the Grimsel Test Site. *Journal of Contaminant Hydrology* 179, 89–101.

STAŠ L., MALÍK J. FRANĚK J. (2016). Study of the stress conditions and internal anisotropy in an environment of granitic rocks. Zpráva SURAO č. 120/2017. SURAO, Praha.

TACHI Y. (2015): Resent JAEA's activities on Grimsel LTD project. Presentation on LTD Phase III. meeting, 13.-15.10.2015, Helsinki, Finsko.

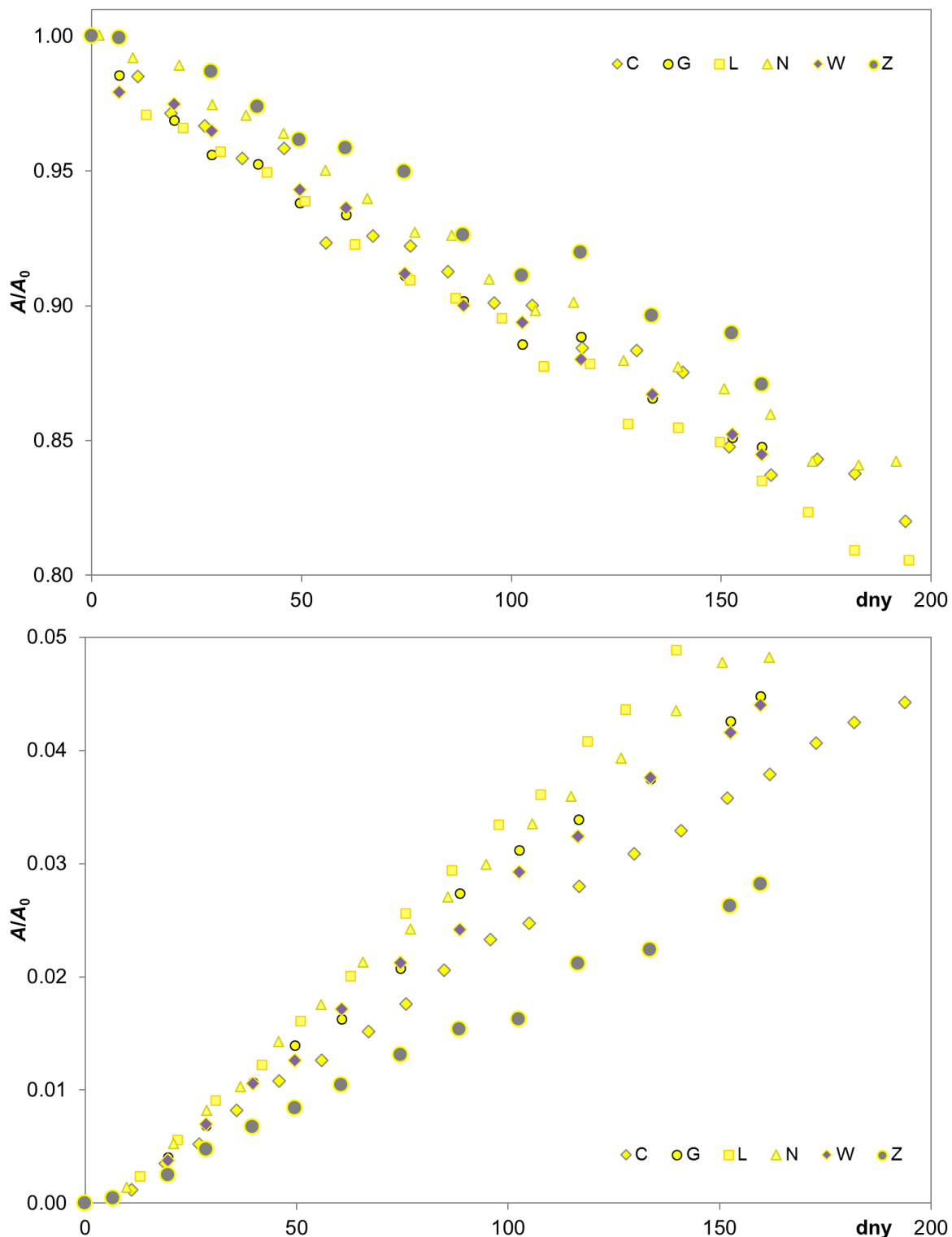
## 9 Příloha 1 – Práce provedené v roce 2018

### 9.1 Difúze sodíku $^{22}\text{Na}$ (2018)

Experimenty se sodíkem byly prováděny s radiosodíkem  $^{22}\text{Na}$  (dodaným ve formě  $^{22}\text{NaCl}$  s nosičem 50 mg/l NaCl v 1 mol/l HCl v celkové aktivitě 5 MBq od EUROSTANDARD). Maximální objemová aktivita použitá na migrační experimenty byla 25 000 cpm/ml (účinnost měření ca. 24 %). Roztok radiosodíku byl před napipetováním do migračního experimentu zneutralizován 1 mol/l NaOH, aby se významně nezměnilo pH roztoku. Pokud by tato neutralizace nebyla provedena, bylo by například pH 3,5 ve zdrojovém rezervoáru průnikové cely o objemu 165 ml při použití 70  $\mu\text{l}$  roztoku radiosodíku. Neutralizací však došlo k mírnému zvýšení iontové síly. Tento fakt je nutno brát v potaz při interpretaci laboratorních i in-situ experimentů; pH i salinita mají vliv na migrační chování jednotlivých specií. V případě sodíku je nutné brát v potaz i izotopovou výměnu se stabilním sodíkem přítomným v podzemní vodě (ca. 16-18 mg/l), již jsou vzorky nasyceny, a také obsaženým v minerálních fázích granitu.

Na Obr. 62 jsou zobrazena experimentální data poklesu/nárůstu objemové aktivity  $^{22}\text{Na}$  ve zdrojovém/cílovém rezervoáru. Je vidět, že difúze sodíku je velmi rychlá. V porovnání s HTO je difúze sodíku rychlejší (Havlová et al. 2016). Měřitelný průnik  $^{22}\text{Na}$  byl zaznamenán již po týdnu. Otázkou je, proč v in-situ experimentu byla zaznamenána pouze velmi malá difúzní rychlost  $^{22}\text{Na}$  v monitorovacím vrtu, zatímco pro HTO větší. Vysvětlením mohou být jiná salinita a pH experimentálního zdrojového roztoku. Více se však přikláníme k tomu, že injektovaná aktivita  $^{22}\text{Na}$  (ca. 2 MBq) nebyla dostačující. Vezmeme-li údaj z analytické laboratoře PSI, pak objemová aktivita  $^{22}\text{Na}$  po spuštění in-situ experimentu byla 812 Bq/ml. Pokud vezmeme účinnost gama-counteru ÚJV ca. 25 %, pak by tato objemová aktivita odpovídala 12 180 cpm/ml. V laboratoři byla na 1 cm vzorek v 1D uspořádání použita ca. dvakrát větší objemová aktivita (25 000 cpm/ml) než na ca. 10 cm horniny v 3D uspořádání.

Vzorek Z byl v kontaktu s roztokem po experimentech  $^{22}\text{Na}^{36}\text{Cl}$  na orientovaných vzorcích (Havlová et al. 2017). Oba radionuklidy přináší stabilní NaCl do roztoku, čím zvyšují salinitu roztoku. NaCl pocházející z  $^{22}\text{Na}$  není významný (ca.  $2 \cdot 10^{-4}$  mol/l). Množství NaCl z  $^{36}\text{Cl}$  bylo neznámé. Proto po skončení experimentu byla změřena vodivost a porovnávána s několika standardy GTS vody s přídavkem NaCl. Takto odhadnutá koncentrace NaCl byla ca.  $1,2 \cdot 10^{-2}$  mol/l. Došlo tedy k významnému zvýšení iontové síly GGW1 (z ca.  $3 \cdot 10^{-3}$  mol/l na  $1,5 \cdot 10^{-2}$  mol/l), čímž došlo ke snížení retardace sodíku (je patrné z menšího poklesu objemové aktivity ve zdrojovém rezervoáru).

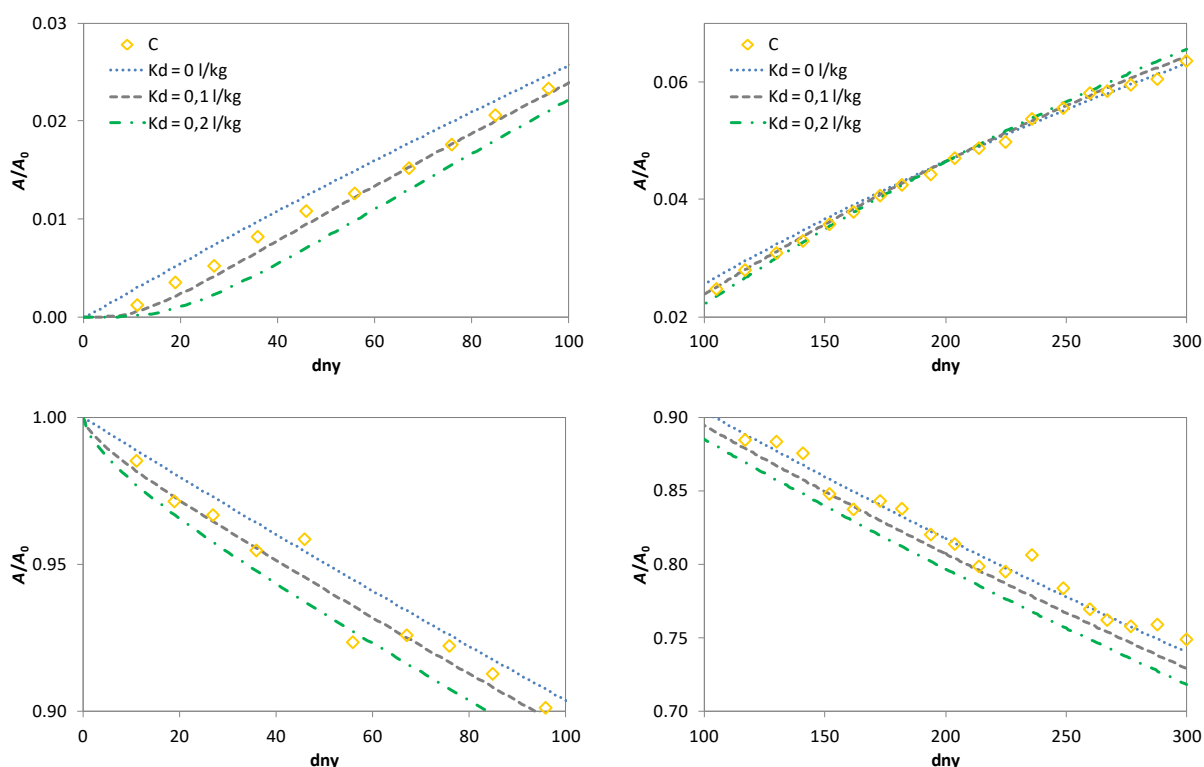


Obr. 62 Experimentální data poklesu (nahore) a nárůstu (dole) objemové aktivity  $^{22}\text{Na}$  v rezervoárech

Experimenty byly vyhodnoceny pomocí fitování průnikových křivek. Tab. 22 shrnuje vstupní parametry modelování. Byly voleny tři hodnoty  $K_d$ , pro každou hodnotu  $K_d$  bylo hledáno  $G$ . Poté byla vybrána ta kombinace  $K_d$  a  $G$ , která nejlépe popisovala průnikovou křivku a také pokles objemové aktivity ve zdrojovém rezervoáru, viz Obr. 63.

Tab. 22 Vstupní parametry pro vyhodnocení průnikových difúzních experimentů s  $^{22}\text{Na}$ 

parametr	hodnota	jednotka
$\rho_d$	pro každý vzorek dle $m$ a $V$	$\text{kg/m}^3$
$T_{1/2}$	2,6029	let
$D_w$	$1,33 \cdot 10^{-9}$	$\text{m}^2/\text{s}$
$\varepsilon$	0,009	-
$K_d$ nastaveno na	od 0 do 0,2	$\text{l/kg}$
$G$	fitováno pro nastavené $K_d$	-


 Obr. 63 Vliv hodnoty  $K_d$  na tvar modelových křivek v cílovém rezervoáru (nahore), ve zdrojovém rezervoáru (dole) v rané (vlevo) a pozdní (vpravo) době experimentu

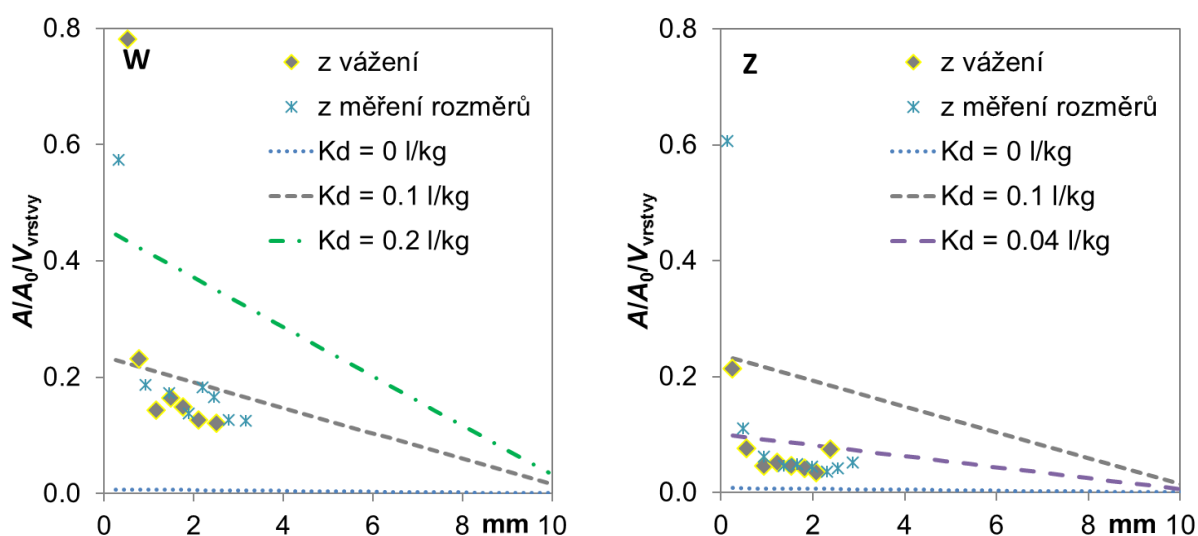
Z Obr. 63 je vidět, že sorpce není větší než 0,2 l/kg. Tak nízkou sorpci lze ze statistického hlediska stanovit jen problematicky pomocí statických dávkových experimentů vzhledem k experimentálním nejistotám stanovení objemové aktivity. Nejlépe experimentální data s  $^{22}\text{Na}$  vystihují modely s  $K_d = 0,1$  l/kg. Neurčitost  $K_d$  ovlivňuje neurčitost difúzních parametrů, viz **Chyba! Nenalezen zdroj odkazů..** Zatímco neurčitost  $K_d$  nemá významný vliv na  $D_e$  (nejistota je minimálně 15 %), vliv na  $D_a$  je značný. Pro snížení neurčitosti  $D_a$  by pravděpodobně přispěl profil  $^{22}\text{Na}$  ve vrstvě.



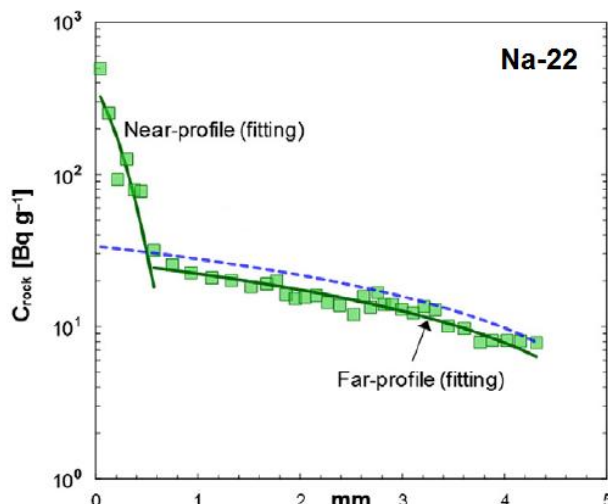
Tab. 23 Neurčitost difúzních parametrů vyplývající z neurčitosti sorpčního distribučního koeficientu

označení vzorku, vrt	$K_d = 0$ l/kg		$K_d = 0,1$ l/kg		$K_d = 0,2$ l/kg	
	$D_a \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	$D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	$D_a \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	$D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	$D_a \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	$D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s
C,10.001	452	4,07	16,1	4,43	8,86	4,79
G,10.001	505	4,55	19,5	5,39	11,4	6,22
L,10.001	638	5,75	22,7	6,22	12,7	6,82
N,10.001	612	5,51	21,7	5,99	12,1	6,58
W,12.001	466	4,19	17,1	4,79	9,58	5,27
Z, 12.001- jiná IS	279	2,51	11,6	3,23		

Na vzorku Z a W byla aplikována metodika postupného obroušování vyvinutá v našich laboratořích pro získání koncentračního profilu v cementových materiálech. Princip a postup broušení vzorku ve styku se zavlhčeným umělým korundem je detailně popsán v Havlová et al. (2017). Zásadním v profilové analýze bylo sledování úbytku hmotnosti a změny tloušťky vzorku pro určení vzdálenosti. Obr. 64 ukazuje získané profily, kde vzdálenost byla počítána na základě hmotnosti odbroušené vrstvy nebo na základě měření délky zbývajícího vzorku přilepeného na držáku.


 Obr. 64 Zobrazení získaných <sup>22</sup>Na profilů ve vzorcích W a Z po 160 dnech difúze společně s modelovými křivkami z fitování průnikových křivek

Ze získaných profilů <sup>22</sup>Na je vidět, že první jeden až dva body profilu jsou výše než ostatní. Tento jev pozorovali i jiní – např. Tachi a kol. (2015), viz Obr. 65. Autoři tvrdí, že mikroskopickou analýzou ukázali, že je to způsobeno vysokou porozitou a sorpčními schopnostmi narušených biotitů na povrchu vzorků. Domnívají se, že hodnoty  $K_d$  odvozené z těchto duálních profilů pravděpodobně odpovídají závislosti  $K_d$  na velikosti rozdrčených zrn ve statických dávkových experimentech. Pokud tyto zvýšené body nebudeme brát v úvahu při vyhodnocování a budeme uvažovat izotropní vlastnosti v celém vzorku, pak je shoda modelu profilu (který byl určen z fitování průnikových křivek) velmi dobrá s naměřeným profilem.



Obr. 65 Profil  $^{22}\text{Na}$  po skončení průnikového experimentu na grimselském granodioritu a jeho vyhodnocení (Tachi a kol. (2015))

V Tab. 24 shrnujeme výsledky difúzních experimentů  $^{22}\text{Na}$  s v konfrontaci s HTO. Poměr  $D_e(\text{Na})$  a  $D_e(\text{HTO})$  je při iontové síle syntetické granitické vody shodný ( $\sim 1,5$ ). Protože u obou specií se uvažuje, že migrují stejným pórovým prostorem (shodná hodnota porozity), pak poměrem efektivních koeficientů pak je poměr pórových difúzních koeficientů. Pórový difúzní koeficient je definován jako součin referenčního difúzního koeficientu ve vodě a geometrického faktoru. Poměr referenčního difúzního koeficientu  $^{22}\text{Na}$  a HTO je 0,586. Z výsledků plyne, že geometrický faktor Na musí být ca 2,6krát větší než pro HTO. V případě zvýšené iontové síly vychází geometrický faktor Na ca 1,6krát větší než pro HTO. Nedomníváme se, že by iontová síla tak výrazně ovlivňovala hodnotu geometrického faktoru. Je to spíše dáno nedostatkem  $D_e$ -konceptu pro popis difúze kationtů (Havlová et al. 2017).

Tab. 24 Shrnutí výsledků z průnikových difúzních experimentů  $^{22}\text{Na}$  a HTO

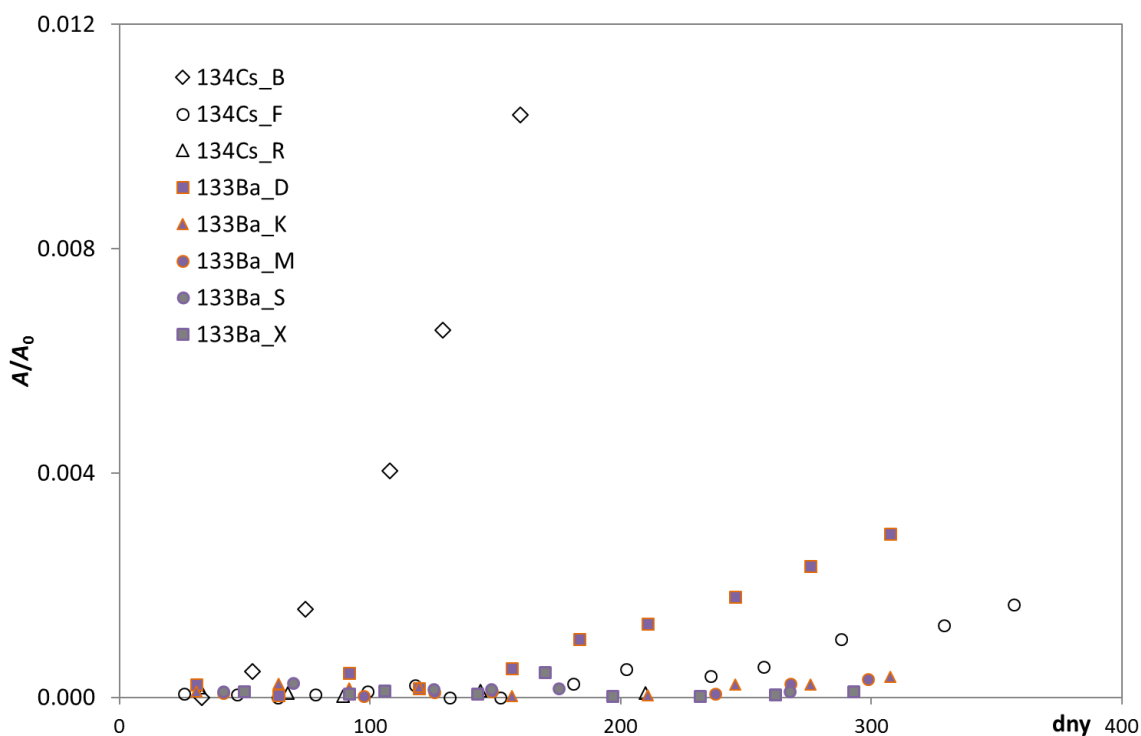
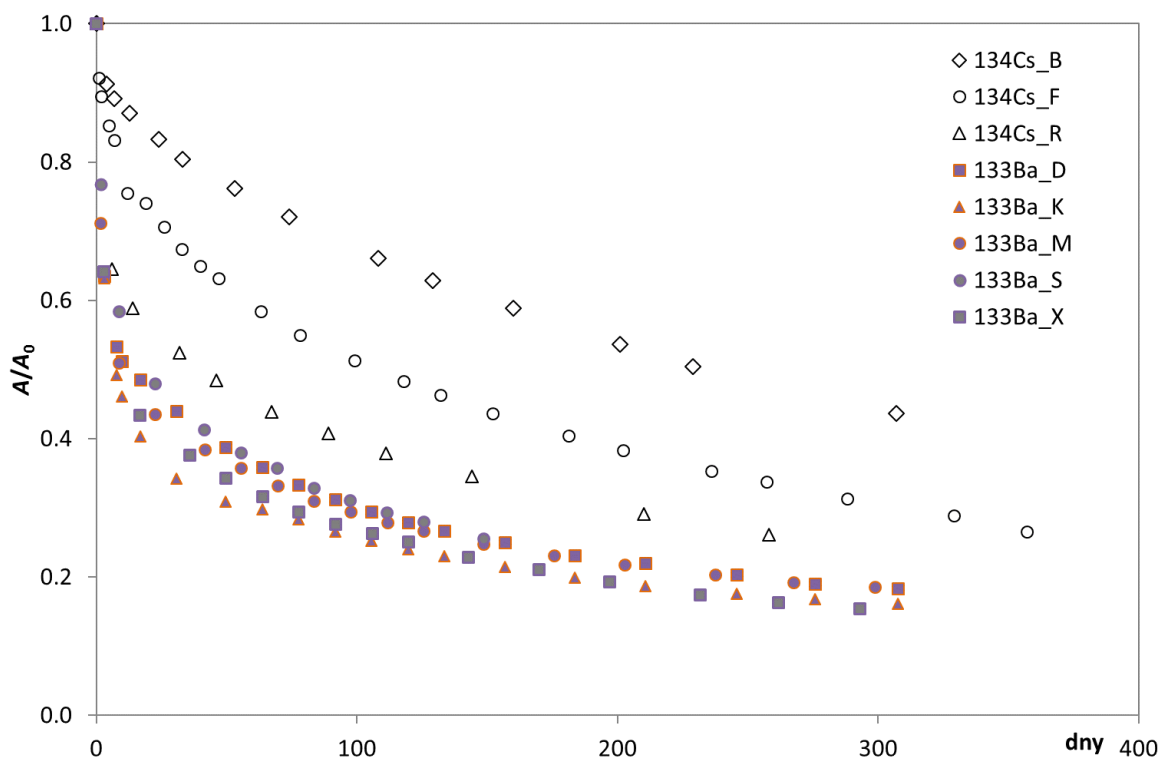
označení vzorku	iontová síla, mmol/l	$^{22}\text{Na}$ $K_d$ , l/kg	$^{22}\text{Na}$ $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	HTO $D_e \cdot 10^{12}$ , m <sup>2</sup> /s	$D_e(^{22}\text{Na}/\text{HTO})$
C	GGW1	0,1	4,43	3,06	1,45
G	GGW1	0,1	5,39	3,60	1,50
L	GGW1	0,1	6,22	3,92	1,59
N	GGW1	0,1	5,99	3,79	1,58
W	GGW1	0,1	4,79	3,31	1,45
Z	GGW1+ $^{22}\text{Na}^{36}$ Cl; $\sim 15$	0,04	2,87	3,13	0,92

## 9.2 Difúze barya a cesia

Na Obr. 66 jsou zobrazena experimentální data poklesu/nárůstu objemové aktivity  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  ve zdrojovém/cílovém rezervoáru. Zatímco pokles  $^{133}\text{Ba}$  ve zdrojovém rezervoáru je

pro všechny vzorky srovnatelný (podobně jako chování  $^{22}\text{Na}$ ), průběh  $^{134}\text{Cs}$  je odlišný. Je to způsobeno jedinečností jednotlivých vzorků, zejména množstvím slíd, což potvrdily výsledky sorpčních experimentů s  $^{134}\text{Cs}$  na ručně vyříděných minerálech ( $K_d$ : slída 426 ml/g, chlorit 36 ml/g a křemen 15 ml/g – viz Tab. 14). U barya je patrný rapidní pokles aktivity první dva týdny experimentu s následným pozvolným poklesem, podobně jako v in-situ experimentu.

Ačkoliv se jedná o silně sorbující specie, u některých vzorků byl pozorován průnik do cílového rezervoáru ( $^{134}\text{Cs}_B$ ,  $^{133}\text{Ba}_D$ ). U zbylých vzorků nebyl průnik do cílového rezervoáru významný.

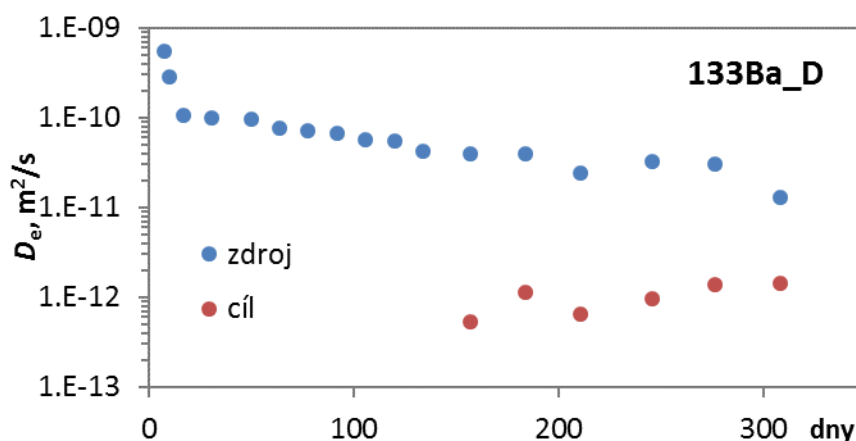


Obr. 66 Experimentální data poklesu (nahore) a nárůstu (dole) objemové aktivity  $^{133}\text{Ba}$  a  $^{134}\text{Cs}$  v rezervoárech

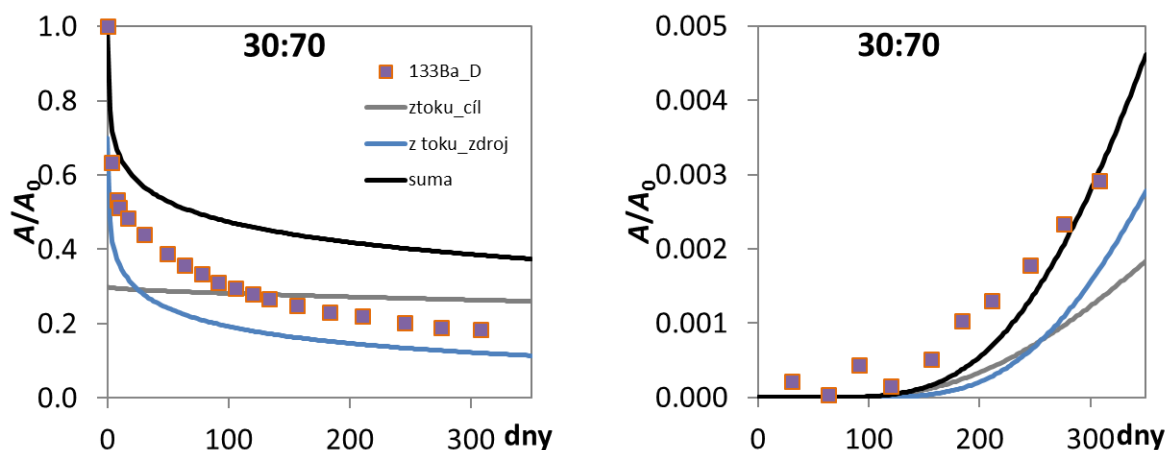
Podobně jako při vyhodnocování difúze cesia, i pro baryum není možné fitovat oba vývoje objemové aktivity zároveň s použitím relevantních dat (tj. hodnota porozita blízké 1 % a geometrický faktor od 0 do 1). Řešením se nabízí rozdělit difúzní proces na dvě komponenty, *intergranular* a *intragranular pores* (Havlová et al. 2016, 2017). Protože zastoupení jednotlivých komponent není známé, a ani jejich transportní vlastnosti, nelze tyto experimenty v současné době vyhodnotit.

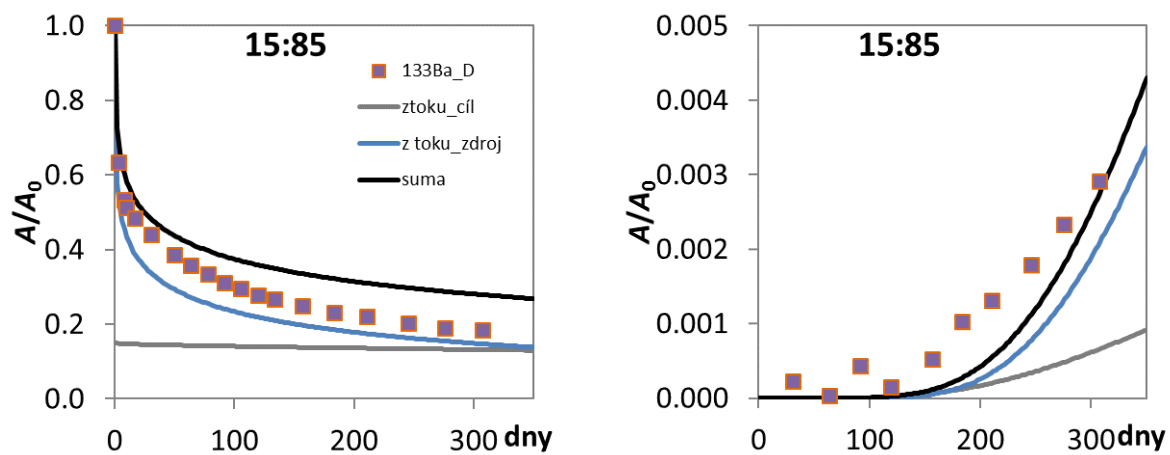
Pouze orientačně je naznačen postup, kterým byla data zpracována. Byl vyhodnocen tok barya do vzorku a ze vzorku. Pro každý odběr z obou rezervoárů byl určen gradient aktivity mezi zdrojovým a cílovým rezervoárem a z daných toků byl vypočten efektivní difúzní koeficient. Průběh takto vyhodnocených  $D_e$  je zobrazen na Obr. 67. Hodnota  $D_e$  se ustaluje na hodnotě  $1 \cdot 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$  v cílovém rezervoáru a  $3 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ . Poté byly odhadnuty geometrické faktory při referenční difuzivitě barya  $0,847 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$  a celkové porozity 0,009. Neznámými parametry jsou pak distribuční koeficienty a zastoupení těchto komponent. Ukázka, jak se obě komponenty mohou skládat je na Obr. 68.

V současné době je na výsledky laboratorních experimentů aplikován  $\mu\text{DFN}$  model, vyvíjený firmou PROGEO, s.r.o.



Obr. 67 Vývoj vyhodnocené hodnoty efektivního difúzního koeficientu barya u vzorku D pomocí difúzních toků ve zdrojovém a cílovém rezervoáru





Obr. 68 Ukázka skládání difúze skrz dvě komponenty granitu odhadnutých z toků barya ve zdrojovém a cílovém rezervoáru





# NAŠE BEZPEČNÁ BUDOUCNOST



**SÚRAO**

Správa úložišť radioaktivních odpadů

Dlážděná 6, 110 00 Praha 1

Tel.: 221 421 511, E-mail: [info@surao.cz](mailto:info@surao.cz)

[www.surao.cz](http://www.surao.cz)