

ATOMERŐMŰVI HULLADÉKOK KEZELÉSE – 2. RÉSZ

Fábián Margit

MTA Energiatudományi Kutatóközpont

Radioaktív hulladékok kezelése

Nemzetközi ajánlásnak megfelelően a radioaktív hulladék mennyiségét a gyakorlatilag elérhető legalacsonyabb szinten kell tartani, amelynek egyik feltétele, hogy már a hulladék keletkezését minimalizálni kell. A radioaktív hulladék-kezelés célja a hulladék mennyiségének, valamint a radioaktív szennyezők mobilitásának a csökkentése.

A radioaktív hulladékok kondicionálása

A kondicionálás célja a hulladék stabilizálása, valamint a hulladékban található szennyezők immobilizálása. Szerepe, hogy szállításra, végleges elhelyezésre alkalmassá tegye a hulladékot. A hulladékot a kondicionálás során aktivitáskoncentrációjuknak megfelelően különböző kötőanyagba ágyazzák, stabil hulladékmátrixot képezve.

Többféle kondicionálási eljárás ismert:

- a cementezés:
 - kis aktivitású hulladék (LLW) esetén betonba öntés,
 - kis és közepes aktivitású hulladék (szerves LLW, ILW) esetén a bitumenbe ágyazás;
- hosszú élettartamú, nagy aktivitású hulladék (HLW) esetén az üvegesítés;
- vagy a kerámiába foglalás.

Cementezés (LLW)

A kis és közepes aktivitású, főleg folyadékállapotú és szilárd radioaktív hulladékok kondicionálására egyik leggyakoribb, jól bevált eljárás az acélhordókba történő cementezés, betonozás. Költséghatékony, alacsony hőmérsékleten való egyszerű előállítási eljárás. A jól ismert technológia olyan mátrixanyagot eredményez,

amely nem éghető, jó termikus stabilitással rendelkezik, kémiai és biokémiai stabil [5].

A beton legegyszerűbben a cement, kavics, víz (folyadék) és adalékok keverékeként definiálható. A technológia lényegi eleme a cement (szervesen kristályos anyagkeverék), amely legtöbb esetben klasszikus portlandcement. A gyártás során 75-80% mészkő (kalcium-karbonát) és 20-25% agyag (vizes kalcium-alumínium-szilikát) keverékét zsugorodásig égetik. Ennek a több mint 1400 °C-on végzett kalcinálásnak a terméke a darabos *klinker*, amihez ezután néhány százalékban kötőanyagként céllal gipszkövet (kalcium-szulfát) adnak. A cement fő kémiai alkotórészei: SiO₂, CaO, Al₂O₃ + H₂O, FeO stb. A teljes tömegre nézve a 20% radioaktív hulladék – 80% cement arány tekinthető átlagosnak. A kondicionált hulladékban lévő cement az immobilizáláson kívül árnyékoló hatást is jelent a radioaktivitás által okozható külső sugárterheléssel szemben. A cement a megkötés során kikristályosodik és közben vizet vesz fel, ami kiváló vízállóságot biztosít, ezt nevezzük szilárdulásnak. A cementezett hulladékot 200/400 literes acélhordókba töltik. A hordó további védelmet jelent, amelyet bentonittal vesznek körbe (a *bentonit* 60-90%-ban montmorillonitot tartalmazó, ásványi eredetű anyag). További összetevők lehetnek: kvarc, krisztobalit, földpátok, muszkovit, biotit, illit, kaolinit, klorit, karbonátok, zeolitok, alumínium-hidroxid, apatit, hematit, limonit, nehézasványok, illetve amorf komponensek – mindez a víz hatására megduzzad, ezzel kitöltve a hordó körüli űrt. Az így kialakult védőréteg kettős funkcióval bír: csillapítja a földmozgások kártékony hatását és megakadályozza, hogy sérülés esetén radioaktív víz kerüljön a talajba. Nagy aktivitású hulladék befogadására kevésbé alkalmas, mert a tartós, nagy hőterheléstől vízvesztés miatt idővel degradálódik.

Bitumenezés (LLW és ILW)

A bitumen általánosan a nagy molekulatömegű szénhidrogének széles skáláját foglalja magába. Kőolajból lepárlás útján nyert mesterséges anyag, kis mennyiségben a természetben is megtalálható. A bitumen minőségét és tulajdonságait az alapanyagot képező ásványolaj (paraffinok, aszfaltgyanták, olajok, aszfaltének) összetétele határozza meg. A vízben való oldhatatlanság, a víz diffúziójával szembeni jó ellenállás és a képlékenység teszik alkalmassá, hogy hulladékmátrix-anyagként viselkedjék. A bitumen jó reológiai tulajdonságokkal rendelkezik, jó öregedési görbével jellemezhető, nagy befogadóképessége van, valamint gazdaságosan előállítható. A bitumenezés során a kis aktivitású folyékony és/vagy szilárd halmazállapotú hulladékot bitumenbe keverik. Vízdoldhatatlan anyag, kioldhatósága nagyságrendekkel kisebb, mint a cementé. Rossz mechanikai szilárdsággal, de kiváló víztaszító tulajdonsággal rendelkezik, ami a szennyezők megkötése szempontjából fontos. Kiváló sugár- és időállósága jelentős mértékű befogadóképességgel társul, alkalmazásával – a cementezéshez képest – sok esetben térfogatcsökkenést érünk el. Igen fontos a folyamat hőmérsékleti szabályozása, homogenitása, amely nagymértékben függ az elegyítés időtartamától, a víz elpárolgásának mértékétől, de mindezek a bitumen és a hulladék típusának függvényei. Bitumenbe történő beépüléssel 43-55 tömeg% hulladék köthető meg [6].

Üvegesítés (HLW)

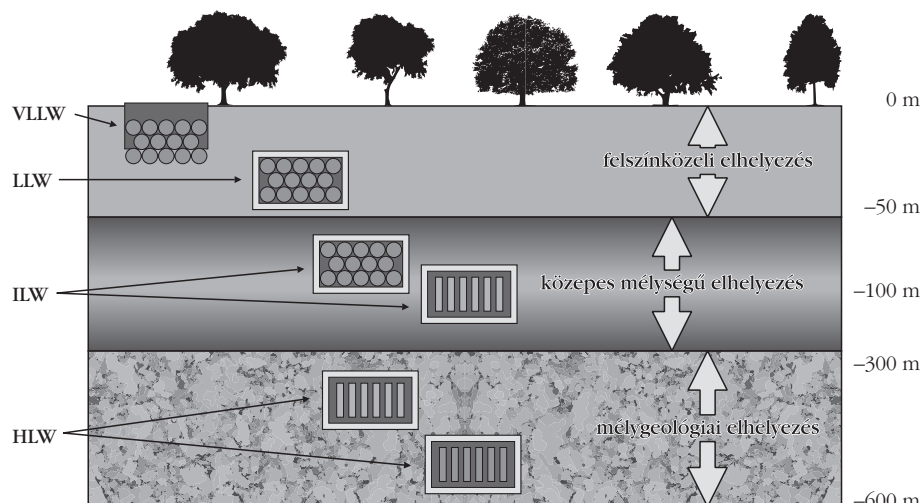
A nagy aktivitású hulladékok legfontosabb tárolási követelménye az oldhatatlanság és a szilárd formában történő megkötés, amely (akár) több ezer évig is stabil marad. Az üvegesítés (vitrifikáció) folyamata a hulladék olvadt üvegbe ágyazását jelenti. A gazdasági szempontok megkövetelik a radioaktív hulladékot burkoló anyag energiatakarékos előállítását, ezért ipari mennyiségű hulladék tárolására elfogadott megoldás az alacsonyabb olvasztási hőmérsékleten előállítható boroszilikát-üvegek használata. A boroszilikát-üvegek képesek megfelelő rugalmassággal a különböző típusú sugárzó hulladékokat befogadni (a beágyazott hulladék nem képez zárványokat), jó kémiai ellenállóképességgel rendelkeznek, nagy a hőstabilitásuk, radioaktív sugárzásnak kitéve nem módosul a szerkezetük, savval szemben ellenállóak, nem higroszkóposak, tulajdonságaik is csekély mértékben változnak [7, 8].

Üvegnek a szilikát alapanyagú, amorf állapottal rendelkező anyagot nevezzük. Az üveg két fő és nélkülözhetetlen alkotóeleme az üvegeképzők és az adalékok. Az *üvegeképzőknek* az üvegháló-szerkezet kialakításában van szerepük. Három vagy több oxidációs számú, kis méretű fémes vagy félfémes elemek, amelyek oxidjaikkal vesznek részt az üvegeképzésben például B_2O_3 , SiO_2 , GeO_2 , P_2O_5 . Az *adalékok* köztes és módosító oxidok (például PbO , Al_2O_3 és Na_2O , BaO , CaO) szerepük az olvasztási hőmérséklet csökkentése, az amorf szerkezet stabilizálása, egyes fizi-

kai tulajdonságok optimalizálása. Önmagukban nem képeznek üveget, az üvegeképzők által létrehozott hálózatba épülnek be. Az oxidok mennyisége az üvegállapot eléréséhez csak egy meghatározott százalékgig növelhető, ha ezt meghaladják, akkor előnytelenül megváltozhat az üvegszerűség. A vitrifikációval 10-35 tömegszázalék nagy aktivitású hulladék köthető meg.

Az MTA EK Környezetfizikai Laboratóriumában vizsgáljuk az optimális üvegösszetételt és optimalizáljuk a vitrifikációs eljárást, eredményeinket számos tudományos cikk mutatja be. Előállítottunk olyan több komponensű mátrixüveget, amely a fenti követelményeknek megfelelően alkalmas lehet a radioaktív magok stabil befogadására. Meghatároztuk a mátrixüveg szerkezetét jellemző legfontosabb atomi első- és másodszomszéd-távolságokat, a koordinációs számeloszlásokat, a kötőszögeloszlásokkal a szerkezeti egységek kialakulását írtuk le. Megállapítottuk, hogy a mátrixüveg szerkezeti felépítésében tetraédes koordinátságú (SiO_4)⁴⁻ egységek játszanak fontos szerepet, míg a bór 3-as és 4-es koordinátságú oxigénkörnyezetekben helyezkedik el. A bór egy része beépül a Si-alapú hálószerkezetbe és ¹³B-O-¹⁴Si, illetve ¹⁴B-O-¹⁴Si vegyes láncok, illetve gyűrűk alakulnak ki. Sikerült előállítani azt a hatkomponensű urántartalmú üvegsorozatot, amely az eddig ismert legnagyobb mennyiségben, 35 t%-ban képes UO_3 -ot befogadni. A neutrondiffrakciós és szinkrotronforrásnál mért röntgendiffrakciós mérések kiértékelése alapján egy stabil, amorf rendszert sikerült előállítani. Az urántartalmú minták alapszerkezetének felépítése nagy mértékben hasonló a mátrixüveg szerkezetéhez, tetraédes SiO_4 egységek és vegyes trigonális BO_3 és tetraédes BO_4 egységek kapcsolódása alkotja a vegyes láncszerű vázszerkezetet, amely biztosítja az U-atom beépülését.

Az üveg alapszerkezete nem változik az U-atom bevitelével. Az U-O atomi parciális korrelációs függvény két elsőszomszéd-távolságnál ad éles eloszlást. A másodszomszéd-távolságok karakterisztikus kialakulása nagyfokú szerkezeti stabilitásra utal, ahol az U-atom O-atomon keresztül kapcsolódik közvetlenül az üvegeképző, módosító és stabilizáló Si-, B-, Na-, Zr-atomokhoz. Az U-atom átlagosan 5,6 O-atomot koordinál. Ezek az eredmények azt mutatják, hogy a beépülő U-atom részt vesz az alapszerkezet kialakításában, a szerkezetfelépítésben, így stabilizálva a rendszert. Eddigi vizsgálataink alapján feltételezhető, hogy az általunk meghatározott boroszilikátüvegösszetétel alkalmas lehet a radioaktív hulladékok potenciális tárolóanyagaként [9, 10]. Irodalmi adatokra támaszkodva újabb üvegösszetételt állítottam elő és vizsgáltam. Az előző munkák során kapott stabil összetételhez hasonlóan az új, 5-komponensű alapüveg hasonlóan jó szerkezeti paraméterekkel rendelkezik. Ehhez a mátrixüveghez 10 t%-ban az aktinoidák kiváltására szolgáló lantanoida-oxidokat, CeO_2 és Nd_2O_3 adtam. A Ce- és Nd-atomok kémiai tulajdonságaik, koordinációs állapotaiknak köszönhetően



2. ábra. Geológiai tárolás.

kőzet tulajdonságainak figyelembevételével kell megépíteni. A gátrendszer elemei egymás kiegészítői, de a mélységi védelem elve alapján kell működjenek. Biztonsági rendszert alkotnak, amely megvédi a környezetet a bármilyen sérülés folytán kikerülő radio nuklid-szennyezéstől. A mélységi védelem elve, hogy a gátrendszer különböző elemei egymástól függetlenül is benntartják a radioaktivitást, az egyik gát esetleges sérülése nincs hatással a többi védelmi elem hatékonyságára. A gátrendszernek több egymás-

hasonlítanak a Pu- és Am-atomok kémiai jellegére. A Ce- és Nd-atomokkal modellezhetjük a Pu- és Am-atomok beépülését az üvegszerkezetbe. A két új üveg szerkezetvizsgálata során kapott atomi paraméterek azt támasztják alá, hogy nemcsak az U-atom, de a komplementer atomokkal szimulált Pu- és Am-atomok is stabilizálódnak a boroszilikátüveg-szerkezetben (OTKA-109384).

A radioaktív hulladékok tárolása

Radioaktív hulladékok végleges elhelyezésére elfogadott megoldás a geológiai tárolás. A hulladékok besorolásának függvényében a kis és közepes aktivitású hulladékok felszíni, felszín közeli tárolókba kerülnek (Magyarországon a püspökszilágyi Radioaktív Hulladék Feldolgozó és Tároló telep tartozik ebbe a kategóriába). A közepes aktivitású hulladékok felszín alatti, közepes mélységű tárolókban kerülnek elhelyezésre (Magyarországon a bátaapáti Nemzeti Radioaktív-hulladék-tároló tartozik ebbe a működési körbe). A nagy aktivitású hulladékok mélygeológiai tárolóhelyre (2. ábra) kerülnek végleges lerakásra (Magyarországon a Nyugat-Mecsekben terveznek nagyaktivitásúhulladék-lerakót a Bodai Agyagkő Formáció optimális tulajdonságainak kihasználásával).

A tárolás célja a teljes elszigetelés a tárolt radioaktív hulladék becsült bomlási idejére, valamint hogy a tárolt hulladék ne jelentsen veszélyt az emberi életformára és a környezetre. A radioaktív hulladék kezelést és tárolását úgy kell megoldani, hogy az összhangban legyen a társadalmi értékekkel, az etikai elvárásoknak megfelelően.

A radioaktív hulladék-tárolók szerepe, hogy megakadályozzák a radioaktív anyagok környezetbe való kikerülését. A hosszú távú biztonságot a jól megválasztott többszörös mérnöki gátrendszer és a természetes gát együttes alkalmazása biztosítja (színes ábra a hátsó fedlapon [11, 12]). A mérnöki gát belső elemeit elsősorban a kondicionált hulladék stabilizálására kell optimalizálni, a külső gátrendszert pedig a

ra épülő eleme van: a mérnöki gát az, amelyet mesterségesen hozunk létre. Az első mérnöki gát a radioaktív hulladék kondicionálása, stabil hulladékmátrixot állítanak elő például vitrifikációval. Második mérnöki gátként szolgál a kondicionált hulladékot tartalmazó, hermetikus, korrózióálló és mechanikailag szilárd, acélból, rézből vagy vasból készült konténer. A mérnöki gátrendszer harmadik eleme a betonfalú épület (tároló vágat/kamra) és a konténer közötti rés tömédékelése bentonittal vagy öntöttbetonnal. A beton az acélhoz köt, így csökkenti vagy megakadályozza annak korrózióját. A hulladéktároló épített betonfal képezi a következő mérnöki gátat. A hulladéktároló kamrát és a tároló lezárásakor a kamrákhoz vezető vágatokat cementtel és/vagy bentonittal kevert, eredetileg kitermelt kötőrmelékkal töltik vissza. A vágatjárat lezárása képezi az mérnöki gátrendszer utolsó elemét. A befogadó kőzet természetes geológiai gátként szolgál. A megfelelő kőzet kiválasztásához alapos geológiai, kémiai, hidrológiai elemzések szükségesek. Legalkalmasabb az agyagos, üledékes, kristályos (például bazalt, gránit, tufa), só és anhidrides kőzetek.

Hazai helyzet

A nem atomerőművi eredetű kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok elhelyezésére helyezték üzembe 1976-ban a püspökszilágyi Radioaktív Hulladék Feldolgozó és Tároló létesítményt. Az atomerőművi szilárd és folyékony, kis és közepes aktivitású radioaktív hulladékok végleges elhelyezésére létesült Bábaapátiban a Nemzeti Radioaktív hulladék-tároló, amely 2012 decembere óta fogad hulladékot.

Magyarországon a nagy aktivitású radioaktív hulladékok végleges elhelyezésére irányuló kutatási program 1993 végén a Nemzeti Projekt keretében – a Nyugat-mecseki Bodai Agyagkő Formáció (BAF) vizsgálatával – kezdődött, amelyet 1995 márciusában történő befejezése után egy önálló kutatási program keretében folytattak. Ennek középpontjában (1996–98 kö-

zött) a BAF-nek az akkor még üzemelő pécsi uránbányával határos részén létrehozott föld alatti laboratóriumban végzett vizsgálatok álltak. Az uránbánya bezárására vonatkozó kormányzati döntés következtében a bányából megközelíthető, 1100 m mélyen létesített föld alatti laboratóriumot 1998 végén bezárták. A zárójelentésben levő kutatások eredményeit illetően nem merült fel olyan körülmény, amely a nagy aktivitású radioaktív hulladékok BAF-ben történő végleges elhelyezése ellen szólna. A Radioaktív Hulladékkezelő Kft. 2000-ben az ország teljes területére kiterjedő földtani pásztázó kutatást végzett, újabb lehetséges lerakó potenciális feltérképezése érdekében. A vizsgálati eredmények továbbra is a BAF-et találta a nagy aktivitású hulladéktároló legígéretesebb befogadó kőzetének. Jelenleg a terület hidrogeológiai vizsgálata zajlik, valamint újabb furatok vizsgálata a terület kijelölése céljából. A kutatások eredményének függvényében kerül kijelölésére a föld alatti laboratórium és a hulladéktároló helye. A jelenlegi tervek szerint az első konténerek 2060-ban kerülnek lerakásra [13].

Irodalom

5. *Cementation of radioactive waste*. http://www.nukemgroup.com/fileadmin/pdf/Brochure_Cementation_Juni_2007.pdf NUKEM Technologies GmbH
6. L. Monte, V. Barreto, M. F. R. Guzella: Incorporation of radioactive waste in bitumen 10 years of R&D and cooperation between CDTN and Electronuclear. In *Proc. of Int. Nuclear Atlantic Conference*, Santos, 2007.
7. W. Ramsey, N. Bilber, T. K. Meaker: Composition and durabilities of glasses for immobilization of plutonium and uranium. *Conf. Waste Management '95*, Tucson, 1995.
8. L. R. Bunnell, G. D. Maupin, K. H. Oma: High-Temperature Glasses for Nuclear Waste Isolation. *Advances in Ceramics 20* "Nuclear waste management II" (1986) 167.
9. Fábíán M., Sváb E.: Boroszilikát üvegek szerkezetvizsgálata neutrondiffrakcióval. *Nukleon V*(2012) 119
10. M. Fábíán, Th. Proffen, U. Ruett, E. Veress, E. Sváb: Uranium surrounding in borosilicate glass from neutron- and X-ray diffraction and RMC modelling. *J. Phys.: Condens. Matter 22* (2010) 404206.
11. *Engineering Barrier Systems in the Safety Case: Design Confirmation and Demonstration*. Workshop Proceedings, Tokyo, OECD NEA 6257, 2007.
12. *SKB's mission*. Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Co. 2014.
13. OECD/NEA, Nuclear Energy Data, 2006.

Mérnöki és természetes gárendszer a nagy aktivitású hulladékok hosszútávú, biztonságos elhelyezéséért

A kondicionált radioaktív hulladékot korrózióálló és mechanikailag szilárd, acélból vagy rézből készült konténerbe helyezik. Az első és másodlagos mérnöki gát megakadályozza a radionuklidok környezetbe kerülését.

A befogadó kőzet (vízmegekötő agyagos kőzet/gránit) természetes geológiai gátként működik. A kőzet minőségével kapcsolatban fontos követelmény a kis permeabilitás és a jelentős radionuklid-visszatartó képesség.

A konténereket az erre kialakított betonfalú tárolóvágtatba helyezik, amelyet bentonittal tömedékelnek. A bentonit stabilizálja a konténert, megvédi a talajmozgástól és a rétegvíz okozta sérüléstől. A megtelt tárolóvágtatokat cementtel és/vagy bentonittal visszatöltik. Ezek alkotják a mérnöki gárendszerét.

