

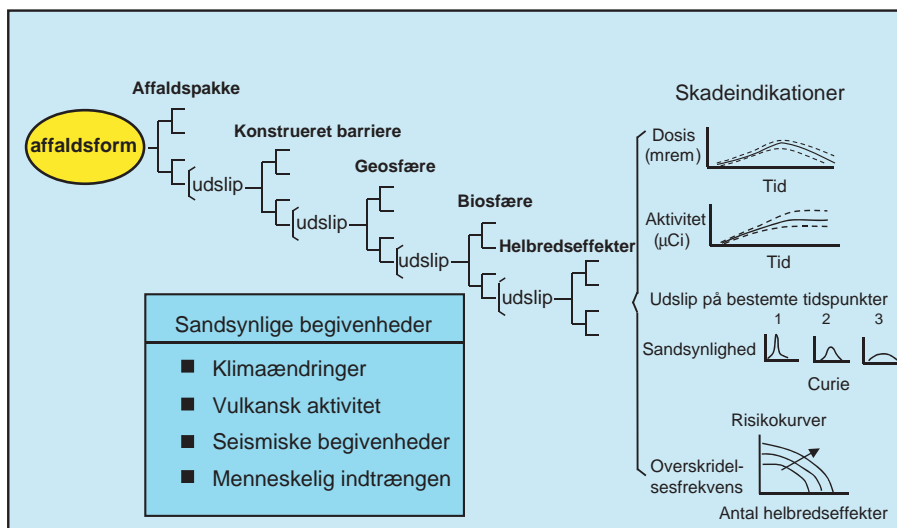
# Atomaffald

## - løsninger fra mineralogien

Professor Rodney C. Ewing, Department of Nuclear Engineering & Radiological Sciences, Materials Science & Engineering, Geological Sciences, University of Michigan, adjungeret professor på Afdelingen for Endogen Geologi, Aarhus Universitet.

Deponering af atomaffald fra den atomare brændstofcyklus er en af de største udfordringer inden for miljøvidenskaben i det 21. århundrede. Idet nogle fissionsprodukter (fx  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{79}\text{Se}$  og  $^{135}\text{Cs}$ ) og aktinider (fx  $^{239}\text{Pu}$  og  $^{237}\text{Np}$ ) har lange halveringstider, spiller den potentielle kontaminering af disse isotoper en vigtig rolle i risikovurderingen af geologiske atomaffaldsdeponer. Derfor er de nukleare affaldsformers fysisk-kemiske forvittringsbestandighed (durabilitet) over geologiske tidsskalaer en afgørende egenskab.

Data fra mineralogiske og geologiske studier peger på en række fremragende kandidater til faser for immobilisering af radionuklider og giver samtidig en unik database, som ikke fås ved laboratoriestudier. I den "mineralogiske" tilgang anvendes i stor udstrækning, hvad der vides om mineraler som zirkon, monazit, apatit, pyroklor og zirkonolit og zeolitter.



Schematisk præsentation af trinnene i risikovurdering ved deponering af atomaffald. Afhængigt af arten af regulering, der kan variere fra land til land, kan effekterne af skaden variere. (Grafik: BES)

### Kilder til radioaktivt affald

Der er tre hovedkilder til højradioaktivt affald i USA. Andre lande som fx Rusland har samme kilder og sammenlignelige volumener og aktiviteter for affald:

(1) High-level waste – HLW (højaktivt affald) bestående af udrændte brændselsceller fra kommercielle atomkraftværker. Lige over 20 % af den genererede elektricitet i USA er produceret af atomdrevne fabrikker. For tiden udgør lageret af brugte brændselsceller i USA ca. 40.000 tons. USA genudvinder ikke fissilt materiale fra deres brugte brændselsceller. Globalt findes der ca. 150.000 tons brugte brændselsceller.

(2) High-level Waste – HLW – fra oparbejdning af fissilt materiale til våbenproduktion. Ca. 380.000 m<sup>3</sup> HLLW har en samlet radioaktivitet på 960 millioner Curie. De største mængder (340.000 m<sup>3</sup>) opbevares i tanke i Hanford, Washington og Savannah River, South Carolina. Mere end 99 % af den foreliggende radioaktivitet stammer fra ikke-aktinide radionuklider med halveringstider på mindre end 50 år, idet de fleste af aktiniderne blev ekstraheret ved oparbejdningen. Efter 50.000 år vil det meste af aktiviteten dog være associeret med de små restmængder af "langlivede" aktinider som  $^{239}\text{Pu}$  og  $^{240}\text{Pu}$ .

# Vi borer over hele landet..!

- Kerneboringer
- Hulsneglsboringer
- Højslevboring
- Tørboring
- Luftslyleboring
- Skyleboring

- ring og hør nærmere...

**POUL CHRISTIANSEN A/S**  
Brøndborer- & Ingeniørfirma  
7840 Højslev  
Tlf. 97 53 52 22

100 år

- din sikkerhed for erfaring og kompetence...

(3) Demonterede atomvåben. Som følge af den 1. og 2. strategiske våbenreduktions-traktat (Strategic Arms Reduction Treaties) og ensidige løfter afgivet af USA og Rusland demonteres tusinder af atomvåben. Til at begynde med vil dette resultere i op til 100 tons våbenrelateret plutonium (Pu), som kræver lang tids opbevaring. Pt. kræver amerikansk strategi, at Pu "brændes" som et blandet oxidbrændstof i eksisterende eller ændrede reaktorer, efterfulgt af direkte bortskaffelse som kommercielt atomaffald i et geologisk atomaffaldsdepot.

I Danmark har vi primært lavradioaktivt affald fra hospitaler og i mindre omfang atomaffald fra forskningsreaktorerne på Risø.

### Hvorfor er affaldsformer vigtige?

Siden opdagelsen af radioaktiviteten i 1896 har det 20. århundrede teknologisk været stærkt præget af udviklingen inden for atomvidenskaben: opfindelsen af atomvåben, generering af elektrisk energi fra atomkraftværker og den medicinske anvendelse af stråling. Affaldet fra disse aktiviteter blev allerede anerkendt som et vigtigt problem i midten af det 20. århundrede, og dengang fremkom det første forslag om at anvende mineraler som atomaffaldsform.

Fra i 1970'erne blev nyskabende forslag fremsat af mineraloger – bl.a. den "skræddersyede" keramik af R. Roy og kollegaer på Penn State University og "State of the Synroc" af A.E. Ringwood og kolleger ved Australian National University og Australian Nuclear Science and Technology Organisation.

For ganske nylig er der genopstået interesse for krystalline atomaffaldsformer pga. behovet for at udvikle forvirringsbestandige materialer til at immobilisere og opbevare "overskudsplutonium", der stammer fra demontering af atomvåben eller akkumuleres under oparbejdning af kommercielt genereret atombrændstof. For tiden arbejdes der med mineraler som apatit, monazit, zirkonolit, zirkon og pyroklor som potentielle affaldsformer.

### Analyse af effekter

Den tekniske evaluering af miljørisici forbundet med valget af forskellige atomaffaldsformer er i høj grad domineret af deponeringsområdets geokemiske og geofysiske parametre og risici. Denne analyse kaldes Performance Assessment (PA) og er baseret på matematiske modeller til grundlæggende at forudsige den geokemiske opførsel af alle radionukliderne i atomaffaldet som funktion af tid og alle relevante geologiske processer (fx ændringer i grundvandshøjde, grundvandsflow, klimaændringer, jordskælv, vulkanudbrud) samt risikoen for fx korrosionslækage og menneskelig indtrængning. Denne meget komplicerede analyse foregår i hundreder af subsystemsmodeller for hver parameter og viser til slut dosis- og helbredseffekten på personer, som lever i den beboede zone

omkring atomaffaldsdepotet. (Se figuren øverst på modstående side).

En enkelt PA-beregning kræver tusinder af inputvariable. Heraf er nogle faste, mens andre dækker mulige værdiområder. I tilgift er ekspertviden brugt til at etablere spændvidden af mange af parametrene, som fx sandsynligheden for klimaskift, jordskælv og vulkansk aktivitet. Dette sætter vigtige grænsebetingelser for det totale systems opførsel (fx grundvandets strømretning og strømningsniveau). Desuden er subsystemerne – i modsætning til de lineære sekvenser i figuren øverst på forrige side – kraftigt forbundet og kan være ikke-lineære i deres opførsel med udbredte feedback-reaktioner. Konsekvensen af denne beregningsmetode og associerede usikkerheder, som ekstrapoleres over titusinder af år, er meget debatterede.

Usikkerheden i sådan en analyse bliver uundgåeligt stor med det resultat, at effekten af vigtige forbedringer i atomaffaldsformernes materialeegenskaber (fx høj korrosionsresistens eller høj modstand over for strålingsskade) ofte forsvinder i usikkerhed som følge af det store antal af variable i analysen for affaldsdepotet og potentielle geologiske begivenheder. Derfor har der som resultatet af PA-beregninger været en tendens til at sætte lid til den geologiske barriere omkring et potentielt atomaffaldsdepot fremfor affaldsformernes materialeegenskaber. Der er dog umiddelbare og logiske parametre, som understreger vigtigheden af affaldsformernes materielle egenskaber:

- (1) Den valgte atomaffaldsform skal resultere i retardering af radionuklider i affaldsformen eller dens umiddelbare nærhed. Udvælgelse af deponeringsstrategier, som er betinget af radionuklidernes langsomme migration, spredning og fortynding i grundvandet, er baseret på antagelser og indikationer, at affaldsformens fysisk-kemiske egenskaber (fx opløselighed) er ligegyldige.
- (2) Evaluering af atomaffaldsformernes langsigtede stabilitet kræver udvikling af kvantitative modeller til beskrivelse af den fysisk-kemiske udvikling for hvert led i depotets barrieresystem. Selvom en sådan bedømmelse er teknisk udfordrende, så er det næsten altid nemmere at modellere den fysisk-kemiske udvikling for affaldsformerne, end det er at udvikle koblede hydrologiske, geokemiske og geofysiske modeller til at modellere radionuklidernes transport til områder langt fra atomaffaldsdepotet.
- (3) Mineraler udgør en unik, naturlig database, hvormed man kan teste hypoteserne om specifikke affaldsformers opførsel over lang tid i specifikke geologisk miljøer.

### Hvorfor er aktinider vigtige?

Selvom der er flere radioaktive fissionsprodukter med høj aktivitet ( $^{137}\text{Cs}$  og  $^{90}\text{Sr}$ ) og lange halveringstider ( $^{99}\text{Tc}$ : 200.000 år;  $^{129}\text{I}$ :  $1,6 \times 10^7$  år;  $^{79}\text{Se}$ :  $1,1 \times 10^6$  år) i brugt

**Tabel 1**

### Opgørelse for plutonium (tons) i 1998

I brugt brændstof:	
USA	650
Japan	90
Frankrig	70
Tyskland	50
<b>Totalt</b>	<b>860</b>
I fungerende reaktorer:	<b>80</b>
Separeret ved civil genanvendelse:	<b>150</b>
Militære opgørelser:	
Tidligere USSR	140
USA	100
Frankrig	6
Kina	5
Israel, Indien, Pakistan	1
<b>Totalt</b>	<b>252</b>
Globalt radioaktivt nedfald fra test af atomvåben:	3
<b>Anslået verdensopgørelse (+ 70 tons/år produktion)</b>	<b>&gt;1.350</b>

atombrændstof, så skyldes det meste af atomaffaldets radiotoxicitet aktiniderne og deres henfaldsprodukter efter de første 500 år. Efter adskillige hundrede år domineres radiotoxiciteten af  $^{239}\text{Pu}$  (halveringstid: 24.100 år) og  $^{237}\text{Np}$  (halveringstid: 2.000.000 år). Derfor er en stor del af den langsigtede strålefare direkte relateret til disse to aktiniders skæbne i geosfæren (den naturlige skorpekoncentration af  $^{239}\text{Pu}$  er ca.  $10^{-11}$  ppm).

Siden nogle få milligram plutonium blev fremstillet af Glenn Seaborg og kolleger i 1941, har den globale mængde plutonium nået 1.400 tons og fortsætter med at stige 70-100 tons om året (tabel 1). Det kommercielt genererede plutonium findes primært på to former:

- (1) Inkorporeret i brugt atomaffald, som er bestemt til direkte geologisk deponering (mere end 600 tons plutonium forbliver i det brugte atomaffald i USA).
- (2) Plutonium udvundet fra kommercielt brændstof. Sidstnævnte er estimeret til at have nået 300 tons i år 2000. Det er mere end den totale mængde plutonium i atomvåben. Taget i betragtning, at den kritiske masse for våbenniveau-plutonium er mindre end 10 kg, er sikkerheden mod utilsigtet distribuering af dette plutonium meget vigtig. Den fredelige anvendelse af atomenergi vil uvægerligt påkræve en strategi for sikker anbringelse af aktinider; specielt det fissile  $^{239}\text{Pu}$ .

**Holdbare "mineralaffaldsformer" til Pu**  
Selvom udviklingen af Pu-holdige affaldsformer skaber nogle specielle problemer og krav til langsigtet fysisk-kemisk forvitningsbestandighed (durabilitet), giver våbenplutonium visse muligheder:

(a) Sammenlignet med højniveau-affald er volumenerne relativt små. Hvis plutonium fx gøres immobiliseret i en typisk affaldsform med en koncentration på 10 vægt%, kan 100 tons våbenplutonium gøres immobiliseret i et volumen på adskillige hundrede kubikmeter.

(b) Våbenplutonium er forbløffende rent bestående af en Pu-Ga-legering (0,5-2 % Ga) belagt med et korrosionsresistent lag, oftest Ni. Den høje renhed muliggør en bred vifte af teknikker til forarbejdning og muliggør fremstilling af en fase-ren affaldsform ved fastsatte niveauer for affaldsbelastning. Det, at højaktive fissionsprodukter, såsom <sup>137</sup>Cs og <sup>90</sup>Sr (den primære kilde til ioniserende stråling), ikke er tilstede gør det muligt at håndtere materialet med teknologier svarende til dem, der bruges til at fremstille U-Pu-brændselsceller til reaktorbrændstof.

(c) Selvom halveringstiden for <sup>239</sup>Pu (24.100 år) er meget længere, end den er for de højaktive fissionsprodukter, sker der et betragtelig henfald over en relativt kort tidsskala (fx kræver indkapsling af Pu i en periode på 10 halveringstider i størrelsesordenen 241.000 år). Dette er dog kort tid i forhold til den dokumenterede durabilitet for visse geologiske materialer, som måles i mio af år. Det faktum, at <sup>239</sup>Pu henfalder til <sup>235</sup>U, repræsenterer en ekstra udfordring for durabiliteten af affaldsformen, idet <sup>235</sup>U også er fissilt. Den høje kritiske masse for <sup>235</sup>U kombineret med muligheden for at fortynde slutkoncentrationen af <sup>235</sup>U med <sup>238</sup>U i det oprindelige design sikrer dog etablering af en selvbestaltet kontinuert kædereaktion i atomaffaldet.

### Det fundamentale spørgsmål

Det fundamentale spørgsmål for mineralogierne er: "Findes der naturligt forekommende, aktinidførende faser med påviselig kemisk og fysisk durabilitet, som kan anvendes til langsigtet immobilisering og deponering af våbenplutonium?"

I stedet for at udvælge en specifik affaldsform i forhold til andre i forbindelse med immobilisering af plutonium, vil jeg illustrere, hvad en "mineralogisk tænke-måde" kan bibringe diskussionen. Spørgsmålets kritiske aspekt er en "påviselig, langsigtet kemisk og fysisk durabilitet". Durabiliteten refererer til en bred vifte af egenskaber: mekanisk styrke, termodynamisk stabilitet, langsom korrosions-hastighed og effektiv retardering af sporelementer (i dette tilfælde aktinider og "neutron-absorberer" som fx Gd og Hf).

Det kvalitative geologiske svar på disse spørgsmål er naturligvis den lange suite af tungmineraller, som kan overleve forvitring, erosion, transport og sedimentation (i nogle tilfælde flere cykler) og bestå i millioner af år som en placer-forekomst i et strømløje. Den klassiske artikel om detritale (sedi-menterede) tungmineraller af Colin Hutton fra 1950 giver en detaljeret liste over aktinidholdige tungmineraller (tabellen nedenfor til venstre). Andre vigtige faser (pyroklor, zirkonolit og monazit), som ikke var inkluderet i Huttons liste, er tilføjet i tabellen.

### Hvilke data eksisterer der egentligt?

Det andet spørgsmål er: Hvor mange geologiske og mineralogiske data eksisterer der for disse faser? Tabellen angiver begrundelser for disse faser – taget fra GeoRef-databasen i 2001. Resultatet overrasker ikke; 95 % af den publicerede litteratur giver data for zirkon, apatit og monazit, der er vigtige i geokronologiske studier. Litteraturen kan deles op i to typer:

(1) laboratoriestudier brugt til at bestemme mineralers evner til at bibeholde isotop signaturer som følge af deres kemiske og fysiske durabilitet i forskellige geologiske miljøer.

(2) Aldersdateringsstudier som fundamentalt bekræfter laboratoriestudierne med dokumentation for fasernes langtidsturabilitet i geologiske miljøer. Begge undersøgelsestyper giver grundlæggende data, der er nødvendige i forbindelse med at designe og udvælge atomaffaldsformerne.

Aktuel forskning i affaldsformer til immobilisering af Pu omfatter en relativt kort liste over faser (tabellen nedenfor). I USA fokuserer de fleste projekter støttet af det såkaldte "Materials Disposition Program of DOE" på immobilisering i "keramik" (syn-tetiske mineraler). Specielt fokuseres der på kubisk titanat-pyroklor og dens monokline afledning, zirkonolit, hvilket skyldes, at der allerede er en større mængde eksperimentelle data på disse faser som keramiske affaldsformer.

For at illustrere den mineralogiske indfaldsvinkel vil jeg herefter give et overblik over relevante studier om zirkon, som primært er taget fra den mineralogiske og geokemiske litteratur for at give et eksempel på, hvilket udbytte man kan få ved at anvende "den mineralogiske indfaldsvinkel".

### Zirkon som affaldsform for aktinider

Zirkons U- og Th-koncentrationer er typisk på op til 5.000 ppm, men kan nå op på mere end 10 vægt%. Zirkon er et ekstremt holdbart mineral, der ofte findes som tungmineral i flodsedimenter og udviser sjældent alvorlig geokemisk forvitring eller fysisk slid efter transport over store afstande. Den vidtspændte fordeling af zirkon i kontinentalskorpen, mineralets tendens til at opkoncentrere sporelementer (lanthanider og aktinider), dets anvendelse

## MILJØTEKNIK og GEOFYSIK

Rådgivning

- Undersøgelser
- In-situ
- Risikovurdering
- Oprydning
- Projektering
- Monitorering

### FALKENBERG A/S

Rådgivende Geologer

Hovedkontor: Vissingersvej 145 • 3540 Lyngby  
Afdeling Nykøbing E: Højbjergsgade 12-14 • 4800 Nykøbing E  
Tlf: 48 18 75 66 • Fax: 48 18 76 03 Tlf: 54 82 45 63 • Fax: 54 85 02 32

e-mail: falkenberg@falngv.aal

Mineral	Ideel formel	No. GeoRef Citations (2001)	Holdbart, tungt mineral <sup>1</sup>
pyroklor <sup>2</sup>	(Ca, REE)Ti <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	374	
zirkonolit	CaZrTi <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	77	
apatit	Ca <sub>4-x</sub> REE <sub>6+x</sub> (SiO <sub>4</sub> ) <sub>6-y</sub> (PO <sub>4</sub> ) <sub>y</sub> (O,F) <sub>2</sub>	6.470	ja
zirkon	ZrSiO <sub>4</sub>	10.479	ja
monazit	CePO <sub>4</sub>	2.256	ja
baddeleyit <sup>3</sup>	ZrO <sub>2</sub>	320	

<sup>1</sup>Tunge mineraler identificeret og diskuteret i en monografi om tungmineralforekomster (Hutton, 1950). Tungmineraller, som blev bemærket, men ikke medtaget i denne tabel, er: gadolinit, allanit, thorit, titanit og xenotim. Thorit (ThSiO<sub>4</sub>) og Xenotim (YPO<sub>4</sub>) er isostrukturelle med zirkon; gadolinit, allanit, titanit er enten relativt sjældne eller mindre holdbare end mineralerne i tabellen.

<sup>2</sup>Får i øjeblikket den største opmærksomhed i USAs plan for deponering af fissilt materiale.

<sup>3</sup>Kubiske og tetragonale polymorfer af ZrO<sub>2</sub> har været anset for affaldsform; alligevel er naturligt forekommende ZrO<sub>2</sub> oftest monoklin baddeleyit. Selvom mineralet ikke er citeret i Hutton (1950), er det inkluderet i denne liste, fordi det er kendt for sin holdbarhed, og fordi det både betragtes som en affaldsform og et brændstofaktivt stof for "brændende" plutonium.

i aldersdatering og dets modstandsdygtighed over for kemisk og fysisk forvitring har gjort zirkon til det formentligt mest anvendelige accessoriske mineral i geologiske studier.

Zirkon er blevet identificeret som en aktinidførende fase i polyfase-keramiske affaldsformer. Zirkon optræder også i "Chernobyl-lavaerne" som en vigtig aktinidførende fase (6 til 12 atomvægt% U). Mineralets tendens til at indbygge aktinider og dets evne til at modstå forvitring har ført til den tanke, at zirkon kan bruges til at immobilisere aktinider.

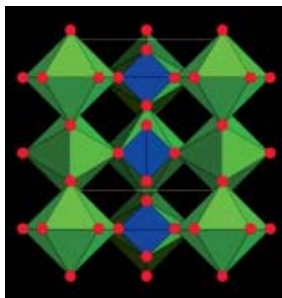
### Struktur

Zirkons struktur består af  $ZrO_8$ -triangulære dodekaedriske grupper, arrangeret i kantdelende kæder parallelt med a-aksen og  $SiO_4$ -tetraedere, som former kantdelende kæder med alternerende  $ZrO_8$ -grupper parallelt med c-aksen. I naturen substituerer U og Th for Zr i små koncentrationer; men rene sammensætninger af  $ASiO_4$ , i hvilken  $A^{4+}$  repræsenterer Zr, Hf, Th, Pa, U, Np, Pu og Am, kan fremstilles eksperimentelt.

### Geokronologi

De nye fremskridt i anvendelsen af zirkon til aldersbestemmelse involverer den følsomme og højopløselige ion-mikrosonde; en metode der tillader målinger af isotopforhold på områder så små som 20-30 mi-

Zirkon. Grøn = dodekaeder; rød = iltatom; blå =  $SiO_4$ -tetraeder. C-akse (001) går vinkelret ind i billedet, a-akse vandret og b-akse lodret. (Print: "Crystal Maker")



krometer, der således giver aldre på separate zoner af enkeltkrystaller. Kernerne i detritale zirkonkorn i en kvartsit fra Mount Narryer i Vestaustralien er dateret til at være 4.100-4.300 mio. år gamle og var indtil for nylig det ældste terrestriske mineral, der er fundet. Jack Hills i Vestaustralien indeholder lidt yngre detritale zirkoner (3.900-4.270 mio.). De ældste zirkonkrystaller i solsystemet er 4.560 mio. år gamle og er fundet som sjældne inklusioner i meteoritter.

Der findes mange hundrede artikler, hvor zirkon er brugt til datering af meget gamle bjergarter. Det er dog af større vigtighed at dokumentere – gennem feltstudier – zirkons durabilitet ved udsættelse for geologiske processer. Her er netop de geokronologiske studier værdifulde kilder til informationer om zirkons opførsel på lang sigt under variable geokemiske forhold.

### Opløsningsstudier

Studier af zirkon under ekstreme laboratorieforhold har bekræftet tab af U, Th og Pb. Tabet af Pb kan være resultatet af korngrænse- eller volumendiffusion (i hvilken zirkon ikke opløses) eller bulkopløsning af zirkon. Ved lavere temperaturer ( $< 80^\circ C$ ) og tæt på neutrale pH-værdier (dvs. forhold der er mere relevante for atomaffaldsdeponering) er zirkon stort set uopløselig i typiske granitiske grundvandssammensætninger. Desværre er der for lidt information i litteraturen om kemisk forvitring af zirkon i kontakt med varmt grundvand, i forhold til hvad der er brug for ved en fuld vurdering af zirkon som affaldsform.

Ved  $25^\circ C$  er krystallin zirkon i ligevægt med vand ved en koncentration af Zr og Si på ca.  $10^{-9}$  mol/L (0,1 ppb). Opløsning af zirkon med kraftige skader i dens gitterstruktur (fx skader som følge af  $\alpha$ -henfald) følger en førsteordensreaktion baseret på Si-koncentrationerne. Koncentrationer af Zr forbliver under 0,05 ppm (instrumentets detektionsgrænse) som følge af udfældning af  $ZrO_2$  og  $ZrSiO_4$ . Zirkons forvitningsrate øges dog med en til to størrelsesordener med stigende  $\alpha$ -henfaldsbeskadigelse.

Ved at sammenligne opløsningshastigheden (R) for metamict (dvs. mineralkorn med en meget strålebeskadiget krystalstruktur) zirkon ( $R = 10^{-7}$  mol/m<sup>2</sup>/d i vand

**...tillid**

Hvordan sikrer du dig pålidelige analyseresultater?

I MILANA tror vi på gensidig tillid som den bedste byggesten for et profitabelt samarbejde. God service, hurtig og sikker levering samt høj analysekvalitet er blandt vores bidrag.

Og så tilbyder vi analyseteknisk rådgivning fra nogle af Nordens førende kemikere, der kan bidrage som sparringspartnere i faglige overvejelser inden for miljøanalyser.

Tør du vise os tillid?

Så ring til os på tlf. 4925 0770 eller klik ind på [www.milana.dk](http://www.milana.dk)

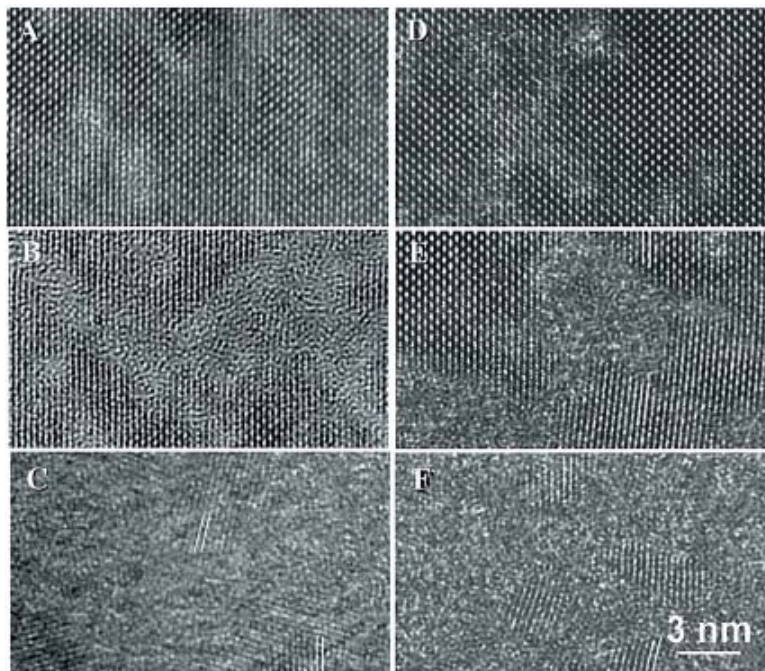
[www.milana.dk](http://www.milana.dk)

ved 80° C og pH = 5) med opløsningsrater for atomaffaldsformer som fx borosilikatglas ( $R = 10^{-5}$  mol/m<sup>2</sup>/d i vand ved 98 °C), ses det at opløsningshastigheden for metamict zirkon stadig er betragteligt lavere, end den er for glas i silika-mættede batchopløsninger.

### Strålingsskade

Strålingsskade fra inkorporerede (indbyggede) aktinider og deres datterprodukter kan have en stærk effekt på mineralets og keramikens fysiske egenskaber og kemiske durabilitet. Dette er specielt rigtigt for  $\alpha$ -henfald for <sup>239</sup>Pu og dens datterprodukter (fx <sup>235</sup>U) i en aktinidførende zirkon. Afhængigt af "aktinidbelastningen" akkumuleres signifikante doser (>10<sup>18</sup>  $\alpha$ -henfald/g), og krystalline faser bliver aperiodiske i løbet af ret kort tid, 10<sup>3</sup> år (figuren nedenfor). Bemærk, at zirkon kan akkumulere relativt høje doser af  $\alpha$ -henfald (den horisontale linie i figuren nedenfor). Dette forhold gør det muligt at sammenligne data fra teknikker med kunstigt accelereret bestråling, enten vha. aktinid-doping med kortlivede isotoper med  $\alpha$ -henfald såsom <sup>238</sup>Pu eller <sup>244</sup>Cm (og som når  $\alpha$ -henfaldsdoser på 10<sup>19</sup>  $\alpha$ -henfald/g) – eller bestrålingseksperimenter med ion-stråler.

Zirkons atomstruktur gennemgår en



Sammenligning af stråleskader i zircon (A-C) og 1,5 MeV Kr<sup>+</sup> bestrålet, syntetisk (D-F) zirkon: (A)  $5 \times 10^{13}$   $\alpha$ -henfaldsbegivenheder/mg (0.003 dpa); (B)  $1.8 \times 10^{15}$   $\alpha$ /mg (0.091 dpa); (C)  $6.4 \times 10^{15}$   $\alpha$ /mg (0.32 dpa); (D)  $5 \times 10^{13}$  Kr<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> (0.057 dpa); (E)  $1.5 \times 10^{14}$  Kr<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> (0.17 dpa); (F)  $3 \times 10^{14}$  Kr<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> (0.34 dpa). Totalt amorf tilstand i begge observeret efter 0.5-0.55 dpa. (Foto venligst udlånt af L.M. Wang)

strålingsinduceret forvandling fra at være periodisk til at være aperiodisk (metamict tilstand) ved doser på over 10<sup>18</sup> til 10<sup>19</sup>  $\alpha$ -henfald/g (= 0,2 til 0,6 dpa – displacements per atom) med et korresponderende tab i densitet og en volumenekspansion på 18 %. Tidligere studier omfatter analyser af zirkonkrystaller, der har akkumuleret  $\alpha$ -henfaldsskader på doser op til næsten 0,7 dpa over 550 mio. år, <sup>238</sup>Pu-dopet zirkon (halveringstid 87,7 år) med doser på op til 0,7 dpa på 6,5 år og zirkon bestrålet med tunge ioner (2 MeV He<sup>+</sup>, 0,8 MeV Ne<sup>+</sup>, 1,5 MeV Ar<sup>+</sup>, 0,7-1,5 MeV Kr<sup>+</sup> og 1,5 MeV Xe<sup>+</sup>) og doser på op til 0,2 til 0,3 dpa på mindre end en time. I alle disse tre bestrålingseksperimenter blev der også foretaget detaljerede undersøgelser af zirkons rekrystalliseringskinetik.

### Væsentlige zirkonstudier

Zirkonstudier (fx af prøver som er 550 mio.

år gamle) og eksperimentelle resultater fra bestråling med ion-stråle i mindre end en time dækker over dosisniveauer, som spænder over otte størrelsesordener. In situ-bestråling med ion-stråler kombineret med højopløseligt transmissionselektronmikroskop (HRTEM) har vist, at skade-inducerede mikrostrukturer og forøget beskadigelse af atomstrukturen med tiltagende stråledosis kan simuleres ved at bestråle prøver med tunge ioner (foto ovenfor). På den måde er der ved en kombination af geologisk evidens og eksperimentelle studier dannet en solid basis til at kunne forudsige mikrostrukturene på og durabiliteten af en strålingsbeskadiget zirkon som funktion af dosis, temperatur og typer af bestråling.

*Denne artikel er oversat fra engelsk. Der kan derfor forekomme udtryk, som har været vanskelige at oversætte til noget tilsvarende på dansk.*

## BRONDBORINGSFIRMAET BRØKER I.S.

Kontor og værksted: Telefon 59 44 04 06  
Spånnebæk 7, 4300 Holbæk.  
Fax 59 44 69 00

Thomas Brøker, privat 59 44 08 71  
Bil 21 42 38 71

Henrik Brøker, privat 59 43 09 94  
Bil 23 34 77 01



VORT SPECIALE ER:

BRONDBORING, rotations- og tørboring.

MILJØBORING, hulsneglsboring med kærneprøveudtagning.

REGENERERING af borerer.

PRØVEPUMPNING af borerer og kildepladsundersøgelser med avanceret elektronisk udstyr og EDB-behandling.

Vi forhandler GRUNDFOS pumper og vort veludstyrede værksted renoverer Grundfos' vandværkspumper.

Vi leverer og monterer underjordiske GLASFIBERPUMPEBRØNDE af eget fabrikat med udstyr i rustfrit stål tilpasset de aktuelle dimensioner.

Kumulativ dosis  $\alpha$ -henfald som funktion af en affaldsform (fx zirkon) indeholdende hhv. 1 vægt% og 10 vægt% lastning af <sup>239</sup>Pu.

Den stiplede vandrette linie angiver de opnåede maksimum doser i zirkon fra henfald af U, Th og datterprodukter. (Grafik: BES)

