

KYT2010

Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma 2006–2010

Loppuraportti

Työ- ja elinkeinoministeriön julkaisu
Energia ja ilmasto
22/2011



TYÖ- JA ELINKEINOMINISTERIÖ
ARBETS- OCH NÄRINGSMINISTERIET
MINISTRY OF EMPLOYMENT AND THE ECONOMY

KYT2010

Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma 2006–2010

Loppuraportti

Tekijät Författare Authors Työ- ja elinkeinoministeriö (toim.)	Julkaisuaika Publiceringstid Date Kesäkuu 2011 Toimeksiantaja(t) Uppdragsgivare Commissioned by Työ- ja elinkeinoministeriö Arbets- och näringsministeriet Ministry of Employment and the Economy Toimielimen asettamispäivä Organets tillsättningsdatum Date of appointment
Julkaisun nimi Titel Title KYT2010 Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma 2006–2010 – Loppuraportti	
Tiivistelmä Referat Abstract Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma KYT2010 käynnistyi vuonna 2006. Tutkimuskausi päättyi vuoden 2010 lopussa. Tutkimusohjelman keskeiset aihepiirit ovat 1) ydinjätehuollon strategiset selvitykset, 2) ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuuden arviointi ja 3) yhteiskuntatieteelliset selvitykset. Ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuuden arvioinnissa on kolme osa-aluetta, jotka ovat tekniset vapautumisesteet, kallioperä ja pohjavesi sekä radionuklidien vapautuminen ja kulkeutuminen. Tutkimuskaudella on ollut käynnissä noin 40 tutkimushanketta, jotka ovat ensisijaisesti liittyneet ydinjätehuollon turvallisuuden arviointiin. Valtion ydinjätehuoltorahasto ohjasi rahaa tutkimushankkeisiin yhteensä noin 7 miljoonaa euroa. KYT2010-tutkimusohjelmassa ovat olleet mukana seuraavat tutkimusorganisaatiot: VTT, Aalto-yliopiston teknillinen korkeakoulu, Helsingin yliopiston Radiokemian laboratorio, Geologian tutkimuskeskus, Jyväskylän yliopisto, Itä-Suomen yliopiston Kuopion kampus, Numerola Oy. Tutkimusohjelman työskentely on perustunut tutkimusohjelman johtoryhmän, kahden tukiryhmän, koordinaattorin ja tutkimushankkeiden keskinäiseen yhteistyöhön ja työnjakoon. Tutkimusohjelman johtoryhmässä ovat olleet edustettuina Säteilyturvakeskus, Teknologian tutkimuskeskus Tekes, Fortum Power and Heat Oy, Teollisuuden Voima Oyj, Posiva Oy ja työ- ja elinkeinoministeriö. Työ- ja elinkeinoministeriön yhteyshenkilö: Energiaosasto/Jaana Avolahti, puh. 010 606 4836	
Asiasanat Nyckelord Key words ydinjätehuolto, tutkimus	
ISSN 1797-3562	ISBN 978-952-227-541-7
Kokonaissivumäärä Sidoantal Pages 138	Kieli Språk Language Suomi, finska, Finnish Hinta Pris Price 20 €
Julkaisija Utgivare Published by Työ- ja elinkeinoministeriö Arbets- och näringsministeriet Ministry of Employment and the Economy	Kustantaja Förläggare Sold by Edita Publishing Oy / Ab / Ltd

Esipuhe

Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma KYT2010 on ollut käynnissä vuosina 2006–2010. Tutkimusohjelma on jatkanut julkishallinnon koordinoituja ydinjätehuollon tutkimusohjelmia, jotka käynnistyivät vuonna 1989. KYT2010-tutkimusohjelmaa ovat edeltäneet seuraavat tutkimusohjelmat: JYT vuosina 1989–1993, JYT2 vuosina 1994–1996, JYT2001 vuosina 1997–2001 ja KYT vuosina 2002–2005. Vastaavasti reaktoriturvallisuuden puolelta on ollut käynnissä erilliset tutkimusohjelmat.

Tässä KYT2010-tutkimusohjelman loppuraportissa esitetään tutkimusohjelman tavoitteet, organisointi ja tutkimushankkeet. Loppuraportin on toimittanut työ- ja elinkeinoministeriö, jossa yhteyshenkilönä toimii Jaana Avolahti. Toimitustyöhön on osallistunut Heikki Leinonen Carrum Oy:stä. Lukujen 4, 5 ja 6 toimittamiseen ovat osallistuneet myös Säteilyturvakeskuksesta Marko Alenius (luku 4.1), Esko Eloranta (luku 6), Rainer Laaksonen (luku 4.2), Katriina Labbas (luku 5) ja Paula Ruotsalainen (luku 6) sekä Fortum Power and Heat Oy:stä Ilpo Kallonen (luku 4.3).

Hankekohtaiset tiivistelmät ovat tutkimushankkeiden vastuuhenkilöiden laatimat.

Helsingissä huhtikuussa 2011

Työ- ja elinkeinoministeriö

Energiaosasto

Sisältö

Esipuhe.....	5
1 Johdanto.....	9
2 Tutkimusohjelman organisointi.....	10
2.1 Tavoitteet ja niiden saavuttaminen.....	10
2.2 Tutkimusohjelman arviointi.....	13
2.3 Tutkimusohjelman hallinnointi.....	14
2.4 Yhteydenpito.....	15
2.4.1 Seminaarit.....	15
2.4.2 Kummitoiminta.....	15
2.4.3 Muu yhteydenpito.....	16
3 Ydinjätehuollon strategiset selvitykset 2006-2010	17
4 Teknisten vapautumisesteiden tutkimus tutkimusohjelmassa 2006-2010	18
4.1 Kapselitutkimus.....	18
4.2 Puskuriin ja tunnelitäyttöön liittyvä bentoniittitutkimus	19
4.3 Muut teknisiin vapautumisesteisiin liittyvät tutkimustavoitteet.....	19
5 Kallioperä ja pohjavesi tutkimusohjelmassa 2006-2010	21
6 Radionuklidien vapautuminen ja kulkeutuminen tutkimusohjelmassa 2006-2010	22
7 Yhteiskuntatieteelliset selvitykset tutkimusohjelmassa 2006-2010	24
8 Tiivistelmät hankkeista	25
8.1 Suomalainen erotus- ja transmutaatiotekniikan tutkimus	25
8.2 Ydinjätehuollon teknistieteelliset perusteet (TEPE).....	28
8.3 Tilannekatsaus uraani- ja plutoniumjätteiden kehittyneistä huoltomenetelmistä	31
8.4 Opetuksen koordinointi: Ydinjätehuollon yliopisto- ja täydennyskoulutuksen koordinointi.....	34
8.5 Kuparikapselin pitkäaikaiskestävyys.....	36
8.6 Ydinjäte-kapselin deformaatiomekanismit.....	39
8.7 Kuparin korroosionopeuden mittaaminen kaasufaasissa loppusijoituksen alkuvaiheessa.....	43
8.8 Sulfidien aiheuttama kuparin jännityskorroosio	48
8.9 Kuparin korroosio hapettomassa vedessä	51
8.10 Bentomapi: Bentoniitti ja tunnelin täyteainetutkimuksen osaamistason kartoitus	55

8.11	Lähialueen termo-hydro-kemiallinen mallinnus (LÄHITHC)	
	Bentoniittipuskurin kemiallinen jääkausieroosio (GLASE).....	58
8.12	Bentoniittipuskurin kytketty käyttäytyminen (PUKURI).....	61
8.13	Montmorilloniitin liukeneminen pohjavesisimulanteissa	65
8.14	Kokonaismalli teräsbetonirakenteen ikääntymiselle voimalaitosjätteen loppusijoituksessa	70
8.15	Kalliolaatu: Rakennusgeologiset kallioluokitukset ja niihin liittyvien epävarmuuksien määrittäminen ja esittäminen käyttäen tilastollista päättelyä ja geologisia 3D- ja paikkatieto-ohjelmistoja	75
8.16	KABIO – kaasut ja biogeokemian prosessit kallioperässä	78
8.17	Syvien biosfäärien geomikrobiprosessit – Molekyylibiologiset monitorointimenetelmät – GEOMOL.....	83
8.18	Uraanin käyttäytyminen pohjavesiolosuhteiden indikaattorina	88
8.19	Kallion rikkonaisuusrakenteet ja hydrogeologia	93
8.20	Kallion in situ -tutkimukset, Grimsel Test Site – Phase VI, Long Term Diffusion -project (LTD)	95
8.21	Rakovirtaus ja radionuklidien kulkeutuminen graniittisessa kallioperässä	99
8.22	Kolloidien muodostuminen ja niiden vaikutus radionuklidien kulkeutumiseen	102
8.23	Kiven huokostilavuuden kuvaus tomografiamenetelmillä ja sen yhdistäminen matriisidiffuusiomallinnukseen.....	105
8.24	GeoChem: Havainnot uraanin käyttäytymisestä kiteisissä kivissä turvallisuusperustelun tukena	108
8.25	Kolmenarvoisten aktinidien kiinnittyminen savi- ja (hydr) oksidimineraalien pinnoille.....	114
8.26	Käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoittamisen ekologinen riskinarviointi metsäekosysteemissä	122
8.27	¹⁴ C-radionuklidin siirtyminen maaperästä kasveihin ja ilmakehään.....	126
8.28	Jyväskylän yliopiston ja Tampereen yliopiston yhteisprojektit vuosina 2008–2010	130
Liite 1	Hankeluettelo	135

1 Johdanto

Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma KYT2010 käynnistyi vuonna 2006. Tutkimuskausi päättyi vuoden 2010 lopussa.

KYT2010-tutkimusohjelman lähtökohdat perustuvat ydinenergi lakiin (990/1987). Ydinenergi lain mukaan tutkimustoiminnan tarkoituksena on varmistaa, että viranomaisten saatavilla on riittävästi ja kattavasti sellaista ydinteknistä asiantuntemusta ja muita valmiuksia, joita tarvitaan ydinjätehuollon erilaisten toteutustapojen ja menetelmien vertailuun.

Ydinenergi laki korostaa viranomaisten tutkimustarpeita. Tutkimusohjelman sisällössä pyrittiin etsimään kansallisen osaamisen kannalta keskeisiä tutkimuskohteita, jotka olisi selvitettävä niiden tärkeyden takia. Ydinjätehuollon valmistelutöihin, toteutukseen tai viranomaistarkastukseen suoraan kuuluvat aiheet on rajattu tutkimusohjelman ulkopuolelle, joskin viranomaistarpeita palvelevista tutkimuksista voi samanaikaisesti olla hyötyä myös ydinjätehuoltovelvoille. Tällä tutkimusalueen rajauksella on pyritty siihen, että tutkimusohjelmaan osallistuminen ei vaarantaisi ydinjätehuollon toimijoiden (esim. STUK ja Posiva) riippumattomuusodotuksia.

KYT2010-tutkimusohjelmassa on ollut tavoitteena rahoittaa sellaista tutkimusta, joka vahvistaisi ydinjätealan kansallista osaamis pohjaa turvallisuuden arvioinnin kannalta, strategisesta näkökulmasta ja yhteiskunnallisen hyväksyttävyyden tarkastelun kannalta. Tavoitteena on ollut myös osallistua ydinjätehuollon kannalta olennaisen kansallisen tieteellisen ja teknisen osaamisen säilymisen ja kehittämisen varmistamiseen. Tältä osin uuden tutkijapolven perehdyttämistä aihepiiriin on pidetty tärkeänä.

Lisäksi KYT2010-tutkimusohjelman tavoitteena on ollut toimia viranomaisten, ydinjäteorganisaatioiden ja tutkimuslaitosten välisenä keskustelu- ja tiedonvälitysfoorumina. Näin on pyritty luomaan edellytyksiä rajallisten tutkimusresurssien tehokkaalle hyödyntämiselle, jotta yksittäisiin tutkimushankkeisiin voidaan saada riittävän monipuolinen ja poikkitieteellinen tutkimusryhmä. Tehokkaalla tiedonvaih dolla on voitu vähentää mahdollista päällekkäistä tutkimusta ja koordinoida esimerkiksi kansainvälisiä hankkeita.

KYT2010-tutkimusohjelmassa on ollut mahdollista toteuttaa hankkeita myös VYR:n ja muiden suomalaisten tai ulkomaisten rahoittajien yhteisrahoituksella. Esimerkiksi EU-hankkeisiin osallistumista varten tarvitaan useimmiten myös kansallista osarahoitusta.

2 Tutkimusohjelman organisointi

2.1 Tavoitteet ja niiden saavuttaminen

Tutkimusohjelman keskeiset aihepiirit ovat 1) ydinjätehuollon strategiset selvitykset, 2) ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuuden arviointi ja 3) yhteiskuntatieteelliset selvitykset. Ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuuden arvioinnissa on kolme osa-aluetta, jotka ovat tekniset vapautumisesteet, kallioperä ja pohjavesi sekä radionuklidien vapautuminen ja kulkeutuminen.

Tutkimusohjelmaa täsmentävä evästys, jonka johtoryhmä on laatinut vuosittain, otettiin käyttöön vuonna 2007. Evästyksellä on täsmennetty ennen kaikkea ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuuden arvioinnin aihepiiriä. Tutkimusohjelman loppukautena on painotettu teknisten vapautumisesteiden merkitystä. Evästyksessä on esitetty myös yleisiä tavoitteita. Esimerkiksi vuonna 2010 hankkeiden arvioinnissa painotettiin tavoitetta saattaa käynnissä olevat hankkeet loppuun ennen tutkimuskauden loppumista.

Tutkimushankkeiden arviointikriteerit ovat olleet 1) kohdistuminen ja hyödynnettävyys, 2) verkottuminen ja integroituvuus, 3) koulutusvaikutus, 4) tieteelliset ansiot ja 5) KYT-hankkeissa tai muissa yhteyksissä osoitettu tuloksellisuus. Arviointikriteerien painokertoimet on julkaistu hankehaun yhteydessä.

Kohdistumista on arvioitu ydinenergialain tutkimusrahoituksen myöntämiselle asettamien tavoitteiden mukaan ja suhteessa tutkimusohjelman johtoryhmän vuositaiseen evästykseen. Hyödynnettävyyttä on arvioitu ensisijaisesti ydinjätehuollon turvallisuusarvioinnin kannalta kuitenkin niin, että myös muuta mahdollista hyötyä loppukäyttäjälle on voitu arvioinnissa perustella.

Verkottuminen ja integroituvuus ovat tarkoittaneet, että tutkimushankkeilta on odotettu verkottumista alan toimijoiden kesken, koottuja yhteisiä hankkeita ja ehyitä kokonaisuuksia.

Koulutusvaikutuksessa on otettu huomioon sekä kvantitatiivinen vaikutus (väitökset, diplomityöt, gradut) että kvalitatiivinen vaikutus, jolla tarkoitetaan asiantuntemuksen luomista Suomeen ydinjätehuollon keskeisille osaamisalueille.

Tieteellisinä ansioina on otettu huomioon julkaisut ja posteriesitykset tms. Kvalitatiivisessa tarkastelussa on kiinnitetty huomiota mm. tutkimuksen luonteeseen (kokeellinen tutkimus, perustutkimus, mallinnus), innovatiivisuuteen (uudenlaiset koejärjestelyt, uudet tekniikat) ja laajuuteen (esim. näytteiden laajuus).

Tuloksellisuudessa on arvioitu hankkeen etenemistä. Uusien hankkeiden kohdalla on otettu huomioon muissa tutkimusyhteyksissä aikaansaadut tulokset.

Tutkimuskaudella on ollut käynnissä yhteensä 44 tutkimushanketta, jotka ovat olleet joko erillisiä ja uusia hankkeita tai ne ovat olleet jatkoa aiemmin käynnissä olleille hankkeille. Tutkimushankkeet ovat ensisijaisesti liittyneet ydinjätehuollon

turvallisuuden arviointiin. Koko tutkimuskauden on ollut käynnissä seitsemän hanketta, jotka ovat liittyneet pääosin radionuklidien vapautumiseen ja kulkeutumiseen. Myös tutkimushanke erotus- ja transmutaatiotekniikasta on ollut käynnissä koko tutkimuskauden. Yhteiskuntatieteellinen tutkimus on saanut rahoitusta vuodesta 2008 lähtien.

Tutkimushankkeita on ollut käynnissä seuraavasti: 19 tutkimushanketta vuonna 2006, 18 tutkimushanketta vuonna 2007, 20 tutkimushanketta vuonna 2008, 19 tutkimushanketta vuonna 2009 ja 24 tutkimushanketta vuonna 2010. Hankeluettelo on liitteenä.

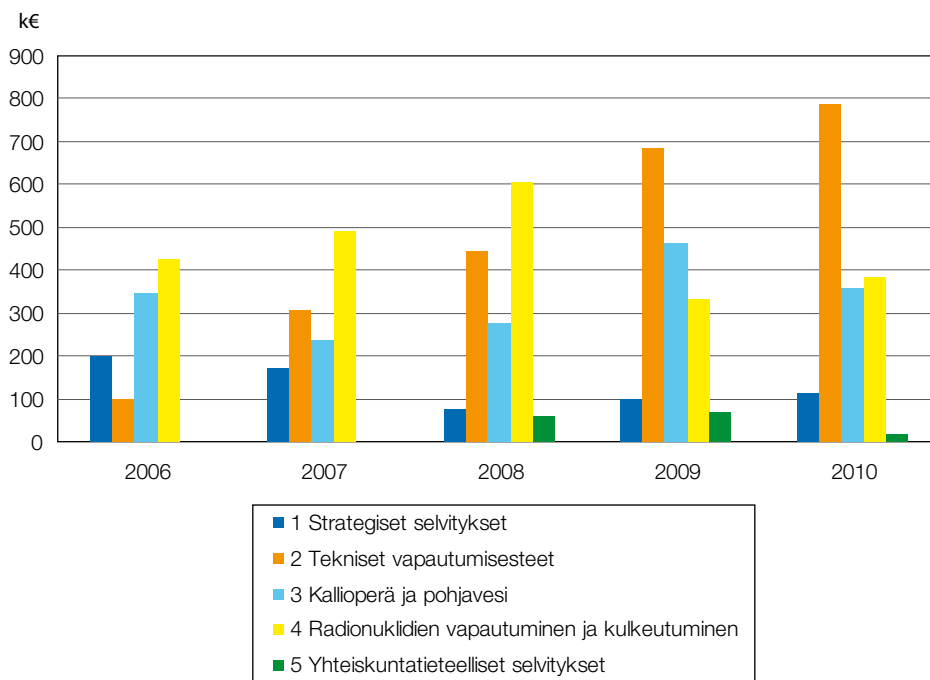
Tutkimuskaudella Valtion ydinjätehuoltorahasto ohjasi rahaa tutkimushankkeisiin yhteensä noin 7 miljoonaa euroa. Vuosittain tutkimukseen käytettiin yli miljoona euroa.

Taulukko 1. VYR-rahoituksen jakautuminen aihepiireittäin.

Tutkimusalue/tuhat euroa	2006	2007	2008	2009	2010
Strategiset selvitykset	201	171	75	98	112
Tekniset vapautumisesteet	100	306	444	686	787
Kallioperä ja pohjavesi	345	236	276	461	358
Radionuklidien vapautuminen ja kulkeutuminen	425	493	606	330	384
Yhteiskuntatieteelliset selvitykset			60	70	20
Yhteensä	1071	1206	1461	1645	1661

Tutkimuskauden alussa radionuklidien vapautumisen ja kulkeutumisen tutkimukseen käytettiin 40 % tutkimusrahoista. Tutkimuskauden loppupuolella painopiste siirtyi teknisiin vapautumisesteisiin.

Kuva 1. VYR-rahoituksen jakautuminen aihepiireittäin.



Tutkimusohjelman tutkimusprojektit ovat julkaisseet yhteensä 230 tieteellistä artikkelia tai raporttia tms. Lisäksi yksi tietokanta on valmistunut. Julkaisujen nimet on raportoitu tutkimusohjelman vuosikatsauksissa.^{1 2 3 4}

Taulukko 2. Julkaisujen lukumäärät aihepiireittäin 2006–2010.

Julkaisut aihepiireittäin/kpl	2006	2007	2008	2009	2010
Strategiset selvitykset	6	10	4	0	8
Tekniset vapautumisesteet	3	7	15	25	13
Kallioperä ja pohjavesi	18	7	0	5	14
Radionuklidien vapautuminen ja kulkeutuminen	12	14	22	16	12
Yhteiskuntatieteelliset selvitykset			4	7	8
Yhteensä	39	38	45	53	55

1 KYT Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma 2006-2010. Vuosikatsaus 2006.

2 KYT Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma 2006-2010. Vuosikatsaus 2007.

3 KYT Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma 2006-2010. Vuosikatsaus 2008.

4 KYT Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma 2006-2010. Vuosikatsaus 2009.

Tutkimusohjelman tutkimusprojekteissa on valmistunut opinnäytteitä yhteensä 27. Tutkimusprojektit ovat raportoineet myös käynnissä olevista opinnäytetöistä, joita ei ole huomioitu luvuissa.

Taulukko 3. Opinnäytteiden lukumäärät aihepiireittäin 2006–2010.

Opinnäytteet aihepiireittäin/kpl	2006	2007	2008	2009	2010
Strategiset selvitykset	0	1	0	3	0
Tekniset vapautumisest	1	1	5	0	3
Kallioperä ja pohjavesi	1	0	0	2	1
Radionuklidien vapautuminen ja kulkeutuminen	2	0	4	0	3
Yhteiskuntatieteelliset selvitykset					
Yhteensä	4	2	9	5	7

KYT2010-tutkimusohjelmassa ovat olleet mukana seuraavat tutkimusorganisaatiot: VTT, Aalto-yliopiston teknillinen korkeakoulu, Helsingin yliopiston Radiokemian laboratorio, Geologian tutkimuskeskus, Jyväskylän yliopisto, Itä-Suomen yliopiston Kuopion kampus, Numerola Oy.

2.2 Tutkimusohjelman arviointi

Tutkimusohjelman arviointi toteutettiin 29.10.–2.11.2007. Arviointiryhmä kävi läpi tutkimusohjelman asiakirjoja ja haastatteli tutkimusohjelman johtoryhmän ja tukiryhmän jäseniä ja varajäseniä, muita avainhenkilöitä ja tutkimusprojektien projektipäälliköitä. Tuloksissa esitettiin yleiset johtopäätökset, vastaukset arviointikysymyksiin, haasteet ja suositukset. Arvioinnista on julkaistu erillinen raportti ministeriön julkaisusarjassa⁵.

Tutkimusohjelman johtoryhmä kävi arvioinnin tuloksia järjestelmällisesti läpi sekä loppuvuonna 2007 että alkuvuonna 2008. Vuonna 2008 johtoryhmä päätti useista kehittämistoimenpiteistä, jotka liittyvät toimintatapoihin, tutkimusprojektien seurantaan, ydinjätehuollon koulutukseen, osaamiskeskuksiin ja turvallisuusanalyysimenetelmiin.

Tutkimusprojektien valintaa varten laadittiin ja otettiin käyttöön toimintaohjeistus⁶. Tutkimusprojektien seurantaa varten käynnistyi vuonna 2008 kummitoiminta, johon ovat kuuluneet vapaamuotoiset kummivierailut kunkin hankkeen luona. Raportoinnin kehittäminen on siirtynyt seuraaville ohjelmakausille.

5 Apted, M., Papp, T. & Salomaa, R. 2008. KYT2010 Review Report. Publications of the Ministry of Employment and the Economy, Energy and Climate 2/2008, 26 s.

6 Varjoranta, T. 2009. KYT2010-toimintaohje. <http://www.ydinjatetutkimus.fi/tiedostot>, 10 s. + liitteet

Tutkimusprojektien valintaa varten otettiin käyttöön jo vuonna 2007 johtoryhmän evästys. Vuonna 2008 evästyksessä määriteltiin erityisesti vaihtoehtoihin liittyviä tutkimustarpeita yksityiskohtaisemmin kuin aiemmin.

Ydinjätehuollon kansallista koulutusta ja osaamiskeskuksia käsiteltiin erityiskysymyksinä työryhmissä vuosina 2008–2009. Työryhmäselvityksenä kartoitettiin ydinjätehuollon koulutusmahdollisuudet ja -tarpeet. Selvityksen perusteella johtoryhmä suositteli jatkoselvitystä, johon kuului ns. pilot-hankkeena toteutettu ydinjätehuollon räätälöity kurssi. Osaamiskeskusselvityksessä määriteltiin ydinjätehuollon tutkimuksen organisointia.

Vuorovaikutuksen lisäämiseksi toteutettiin teemaseminaareja ja puoliväliseminaari.

2.3 Tutkimusohjelman hallinnointi

Tutkimusohjelman työskentely on perustunut tutkimusohjelman johtoryhmän, kahden tukiryhmän, koordinaattorin ja tutkimushankkeiden keskinäiseen yhteistyöhön ja työnjakoon. Tutkimusohjelman johtoryhmä on kokoontunut säännöllisesti 3–4 kertaa vuodessa. Tutkimusohjelman tukiryhmät ovat kokoontuneet 1–2 kertaa vuodessa.

Johtoryhmä on vastannut tutkimusohjelman strategisista linjauksista ja toiminut tutkimusohjelman hallintoa ja tutkimuksen yleisiä suuntaviivoja koordinoivana elimenä. Johtoryhmä on ohjannut tutkimusohjelman suunnittelua ja seurannut tutkimustulosten laatua. Johtoryhmä on laatinut vuosittain suositukset ministeriölle VYR-rahoituksen suuntaamisesta ydinjätehuollon tutkimukseen.

Tukiryhmä on arvioinut vuosittain yksityiskohtaisesti hanke-esitykset ja laatinut arvionsa pohjalta johtoryhmälle vuosittaisen rahoitusesitysluonnoksen. Tukiryhmä on seurannut tarkoituksenmukaista sisäistä työnjakoa noudattaen tutkimushankkeiden etenemistä. Teknistieteellisellä tutkimuksella ja yhteiskuntatieteellisellä tutkimuksella on toiminut omat tukiryhmät.

Tutkimusohjelman koordinaattorina on toiminut vuosina 2006–2008 Carrum Oy ja vuosina 2009–2010 työ- ja elinkeinoministeriö.

Tutkimusohjelman johtoryhmään nimitettiin edustajat työ- ja elinkeinoministeriöstä, Säteilyturvakeskuksesta, Teknologian kehittämiskeskuksesta (Tekes) ja ydinjätealan organisaatioista. Tutkimusohjelman puheenjohtajana on toiminut Tero Varjoranta (Säteilyturvakeskus). Muut johtoryhmän jäsenet ovat olleet Pia Salokoski (Tekes), Harriet Kallio (Fortum Power and Heat Oy, 10.1.2008 asti), Sami Hautakangas (Fortum Power and Heat Oy, 10.1.2008 lähtien), Jari Tuunanen (Teollisuuden Voima Oy, 10.1.2008 asti), Veijo Ryhänen (Teollisuuden Voima Oy, 10.1.2008 lähtien), Juhani Vira (Posiva Oy), Anne Väättäinen (työ- ja elinkeinoministeriö, 22.8.2006 asti), Jaana Avolahti (työ- ja elinkeinoministeriö, 22.8.2006 lähtien).

Varajäsenenä ovat olleet Kaisa-Leena Hutri (Säteilyturvakeskus), Piia Moilanen (Tekes), Ilpo Kallonen (Fortum Power and Heat Oy), Anneli Reinvall (Teollisuuden Voima Oyj), Tiina Jalonen (Posiva Oy) ja Jorma Aurela (työ- ja elinkeinoministeriö).

Johtoryhmä on nimennyt jäsenet tukiryhmiin Säteilyturvakeskuksesta, työ- ja elinkeinoministeriöstä, Fortum Power and Heat Oy:stä, Posiva Oy:stä ja Teollisuuden Voima Oyj:stä.

2.4 Yhteydenpito

2.4.1 Seminaarit

KYT2010-tutkimusohjelman tiedonvaihtoa varten järjestettiin yhteensä kahdeksan seminaaria. Tutkimusohjelman aihepiirejä käsiteltiin kuudessa temaattisessa seminaarissa. Niissä keskityttiin yhteen aiheeseen kerrallaan ja esitettiin siihen liittyviä näkökulmia tutkimuslaitosten ja tulosten loppukäyttäjien kannalta. Tutkimusohjelmaa ja kaikkia sen aihepiirejä sekä tutkimushankkeita käsiteltiin ohjelmakauden puolivälissä ja lopussa järjestetyissä seminaareissa. Tällaisia seminaareja järjestettiin kaksi.

Seminaareista tiedotettiin useille sidosryhmille. Tilaisuudet olivat avoimia kaikille asiasta kiinnostuneille. Seminaareihin osallistui yleensä 30–60 henkilöä ja osanottajia oli myös tutkimusohjelman ulkopuolelta. Luettelo seminaareista on esitetty taulukossa 4.

Taulukko 4. KYT2010-tutkimusohjelman seminaarit.

Seminaarin aihe	Aika	Paikka
Kalliohydrogeologia	17.11.2006	Geologian tutkimuskeskus, Espoo
Tekniset vapautumisesteet	8.5.2007	Teknillinen korkeakoulu, Espoo
Kalliokulkeutuminen	15.2.2008	Helsingin yliopisto, Radiokemian laboratorio
The Long Term Diffusion (LTD)	8.5.2008	Helsingin yliopisto, Radiokemian laboratorio
Ohjelmakauden puoliväliseminaari	26.9.2008	Diana auditorio, Helsinki
Bentoniitti ja täyteaine	29.9.2009	VTT, Espoo
Kapselikupari	29.4.2010	Aalto-yliopisto, Teknillinen korkeakoulu, Espoo
Ohjelmakauden päätösseminaari	18.3.2011	Sähkötalon auditorio, Helsinki

2.4.2 Kummitoiminta

Tutkimushankkeiden seuranta varten tutkimusohjelmassa otettiin käyttöön ns. kummitoimintajärjestelmä, joka aloitti toiminnan vuonna 2008. Jokaisella tutkimushankkeella oli kummiryhmä, johon viranomaiset ja ydinjätealan organisaatiot nimesivät edustajansa. Ryhmä seurasi ja ohjasi hankkeen etenemistä olemalla yhteydessä hankkeen toteuttajiin ja vierailemalla tutkimuslaitoksissa. Tavoitteena on

ollut kuulla tutkijoiden mielipiteitä, käsityksiä ja toiveita sekä tuoda esille loppukäyttäjien tarpeet ja toiveet hankkeiden sisältöön ja suuntaukseen liittyen.

Vuonna 2008 kummivierailuja tehtiin eri tutkimuslaitoksiin 13. Vuonna 2009 kummivierailuja tehtiin 16 ja vuonna 2010 vierailuja tehtiin 22.

2.4.3 Muu yhteydenpito

Tutkimusohjelman kotisivut (www.ydinjatetutkimus.fi) on ollut pääasiallinen yhteydenpito- ja tiedonvälitysväline. Kotisivuilla on saatavana kaikki tutkimusohjelman julkaisema materiaali.

Tutkimusohjelma on julkaissut vuosittain vuosisuunnitelmat ja vuosikatsaukset. Osavuosisikatsauksia on laadittu vuosina 2006–2008 (3/vuosi). Johtoryhmän kokousten päätöksistä on laadittu tiedotteet.

3 Ydinjätehuollon strategiset selvitykset 2006-2010

Tutkimusohjelmassa strategisilla selvityksillä tarkoitetaan selvityksiä, jotka liittyvät ydinjätehuollon toteutuksen vaihtoehtoihin, ydinpolttoainekiertoa tai asiantuntemuksen varmistamiseen. Myös yleiset turvallisuuskysymykset, joihin liittyvät esimerkiksi säteilysuojelliset näkökohdat, kuuluvat kyseisiin selvityksiin.

Ydinjätehuollon vaihtoehtojen selvittämisen tavoitteena on ollut tukea ydinjätehuollon toteutusvarmuutta. Selvityksillä on pyritty myös varmistamaan osaamis- pohjaa ydinjätehuollon toteuttamisessa ja seuraamaan vaihtoehtoja käytävää keskustelua ja kehitystä. Tutkimusohjelman kauteen on liittynyt kansainvälinen keskustelu alueellisista polttoainekierto-keskuksista ja ydinsulkuvalvonnan tehostamisesta sekä jälleenkäsittelystä. Ydinpolttoainekierron ja ydinjätehuollon peruslinjauksiin liittyviä kysymyksiä ovat olleet myös esimerkiksi tulevaisuuden vaihtoehtoihin kuten erotteluun ja transmutaatioon tai pitkäaikaisvarastointiin liittyvät selvitykset.

Tutkimusohjelmassa on rahoitettu neljää hanketta, joista yksi on ollut käynnissä koko tutkimuskauden. Muut hankkeet ovat olleet yksi- tai kaksivuotisia. Strategiset selvitykset ovat lisänneet yleistietämystä ydinjätehuollosta ja sen toteutusvaihtoehtoja. Hankkeissa on seurattu kansainvälistä kehitystä tai osallistuttu kansainvälisiin ohjelmiin. Ydinjätehuollon asiantuntemuksen varmistamisesta on ollut käynnissä myös erillinen hanke, jonka yhteydessä on toteutettu pilot-kurssi ydinjätehuollon erityiskoulutuksen varmistamiseksi.

Hankkeissa on tehty yhteistyötä erityisesti suomalaisten organisaatioiden kesken. Hankkeet ovat toimineet yhteistyössä verkostona. Pilot-kurssin toteuttamisessa oli mukana alan keskeisiä toimijoita.

4 Teknisten vapautumisesteiden tutkimus tutkimusohjelmassa 2006–2010

Teknisten vapautumisesteiden tutkimus liittyy tutkimusohjelmassa pääosin loppusijoituksen turvallisuuden arviointiin. Teknisinä vapautumisesteinä on tutkittu kapselia ja bentoniitista valmistettua puskuria ja bentoniittiraaka-ainetta. Tutkimusohjelmassa on ollut käynnissä myös muuta teknisiin vapautumisesteisiin liittyvää tutkimusta.

4.1 Kapselitutkimus

Loppusijoituskonseptin pitkäaikaisturvallisuuden tulee perustua toisiaan täydentävien vapautumisesteiden aikaansaamiin turvallisuustoimintoihin, ja loppusijoituskapseli on KBS-3-konseptin tärkein yksittäinen vapautumiseste. Loppusijoituskapselin tärkein turvallisuustoiminto on käytetyn ydinpolttoaineen pitkäaikainen eristäminen ympäristöstä. Valtioneuvoston asetus 736/2008 ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuudesta ja Säteilyturvakeskuksen YVL-ohjeluonnokset D.3 ja D.5 asettavat vaatimuksia mm. loppusijoituskapselin suunnittelulle, valmistukselle, turvallisuustoiminnoille, toimintakykytavoitteille ja pitkäaikaisturvallisuudelle.

Käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen pitkäaikaisturvallisuuden kannalta sekä loppusijoituskapselin mekaaninen kestävyys että kemiallinen kestävyys ovat tärkeitä tarkastelu- ja tutkimuskohteita. KYT2010-tutkimusohjelmassa on ollut käynnissä useita loppusijoituskapselin pitkäaikaiskestävyyteen ja turvallisuustarkasteluun liittyviä hankkeita: kolme hanketta, joiden tutkimusaihe on liittynyt loppusijoituskapselin mekaaniseen kestävyyyteen ja neljä hanketta, joiden tutkimusaihe on liittynyt loppusijoituskapselin kemialliseen kestävyyyteen.

Valtioneuvoston asetuksessa 736/2008 ja YVL-ohjeluonnoksessa D.5 todetaan, että pitkäaikaisturvallisuutta koskevien säteilyturvallisuusvaatimusten täyttyminen sekä loppusijoitusmenetelmän ja loppusijoituspaikan soveltuvuus on osoitettava turvallisuusperustelulla. Valtioneuvoston asetuksessa todetaan turvallisuusperustelun luotettavuudesta mm., että turvallisuusperustelussa käytettävien lähtötietojen ja mallien on pohjauduttava korkealaatuiseen tutkimustietoon ja asiantuntija-arviointiin. KYT2010-tutkimusohjelmassa toteutuneet loppusijoituskapselin mekaaniseen ja kemialliseen kestävyyyteen liittyvät hankkeet ovat viranomaisnäkemysten mukaan tuottaneet omalta osaltaan korkealaatuista riippumattonta tutkimustietoa, jota voidaan hyödyntää viranomaisen tekemässä tarkastus- ja arviointityössä.

4.2 Puskuriin ja tunnelitäyttöön liittyvä bentoniittitutkimus

Suomessa toteutettavaksi valittu loppusijoituskonsepti (KBS-3) perustuu turvallisuussäännösten edellyttämään toisiaan täydentävien vapautumisesteiden muodostamaan syvyysuuntaiseen puolustukseen.

Kapseli on tärkein vapautumiseste ja sitä suojaa ja sen eristää ympäristöstä toinen vapautumiseste eli bentoniitista valmistettu puskuri. Toiminnalliset viranomaisvaatimukset ja toimintakykytavoitteet puskurille on esitetty ydinjätteen loppusijoitusta koskevassa valtioneuvoston asetuksessa 736/2008 ja Säteilyturvakeskuksen YVL-ohjeluonnoksessa D.5.

Puskurin tärkeimmät tavoitteet ovat ensinnäkin suojata kapselia mekaanisesti ja kemiallisesti pieniä kallioliikuntoja ja ulkoapäin tulevia kemiallisia rasitteita taikka mikrobitoiminnan aiheuttamia haittoja vastaan. Toisaalta puskurin tavoite on eristää kapseli ympäristöstään sekä vähentää ja hidastaa kapselin epätodennäköisen vaurioitumisen seurauksena tapahtuvaa radionuklidien kulkeutumista puskurin läpi lähikallion ja kallioperän kautta maanpinnalle.

Puskuri on osa moniestejärjestelmää ja sen vuorovaikutukset ja yhteistoiminta toisaalta kapselin ja toisaalta loppusijoitusreikää ympäröivän lähikallion sekä tunnelitäytön kanssa on myös hallittava materiaalien ja teknisten ominaisuuksien tasolla eri aikoina. Puskurin lisäksi myös loppusijoitustunnelin täyttömateriaaleissa ja muissa louhittujen tilojen sulkurakenteissa tultaneen käyttämään bentoniittia tai muita paisuvahilaisia savia.

Posiva, STUK sekä alan tutkimusyhteisöt ja asiantuntijat ovat tunnistaneet bentoniitin mineralogisiin ja teknisiin ominaisuuksiin liittyviä merkittäviä lisätiedon tarpeita. Puskurin toimintakykytavoitteiden saavuttamisen osoittaminen edellyttää kyseisten asioiden selvittämistä. KYT-ohjelmassa on keskitytty myös näiden asioiden selvitykseen ja tutkimukseen laajasti. Myös STUK on osallistunut ohjelman tavoitteiden asettamiseen ja hankkeiden seurantaan vaihtelevassa määrin.

KYT-tutkimusohjelmassa tehty työ on tuottanut ja tuottaa jatkossakin viranomaisstarpeisiin soveltuvaa rinnakkaista ja täydentävää, soveltavaa ja perustutkimusta sisältävää tietoa. Tämän bentoniittiin liittyvän tutkimustyön yhteydessä on koulutettu aihepiiriin myös uusia osaajia, on verkotuttu kansallisesti sekä kehitetty kansallisia tutkimusvalmiuksia. Työ jatkuu seuraavassa ohjelmassa edelleen ja laajempina kokonaisuutena.

4.3 Muut teknisiin vapautumisesteisiin liittyvät tutkimustavoitteet

Loppusijoituksen turvallisuuden tutkimuksessa matala- ja keskiaktiivisen jätteen loppusijoitus on ollut tutkimusohjelmassa mukana. Tavoitteena on ollut muun muassa sulkurakenteina toimivien teräsbetonirakenteiden käyttäytymisen ennustaminen.

Tutkimusohjelmassa on ollut mukana yksi aihepiirin hanke, joka on luonut valmiuksia soveltaa ja kehittää malleja teräsbetonin ikääntymismekanismien vuorovaikutuksille. Malleja voidaan hyödyntää arvioitaessa teräsbetonirakenteen ikääntymistä voimalaitosjätteen loppusijoitusolosuhteissa.

5 Kallioperä ja pohjavesi tutkimusohjelmassa 2006–2010

Kallioperä- ja pohjavesitutkimus liittyy tutkimusohjelmassa loppusijoituksen turvallisuuden arviointiin. Ydinjätteiden loppusijoittamisen pitkäaikaisturvallisuuden on turvallisuusvaatimusten mukaan perustuttava toisiaan täydentävien vapautumisesiteiden aikaansaamiin turvallisuustoimintoihin.

Kallioperä toimii luonnollisena vapautumisesteenä, jos kallioperälle asetetut toimintakytavoitteet täyttyvät. Kallioperän pitää olla loppusijoituskapselin lähialueella vakaa ja tiivis sekä pohjaveden virtaaman tulee olla vähäinen. Loppusijoitustiloja ympäröivässä kallioperässä on oltava vähäinen pohjaveden virtaus sekä pelkistävät ja muutoinkin suotuisat pohjavesikemian olosuhteet. Loppusijoituspaikaksi soveltumattomuutta osoittavia seikkoja voivat olla mm. kallion lujuuteen nähden epätavallisen suuret kalliojännitykset ja pohjaveden poikkeuksellisen haitalliset ominaisuudet, kuten pelkistyskyvyn puute. Loppusijoitusvyvyys on valittava pitkäaikaisturvallisuuden kannalta edullisesti niin, että otetaan huomioon kallioperän geologiset rakenteet sekä vedenjohtavuuksien, pohjavesikemian ja kallion jännitys-lujuussuhteen muutokset syvyyden myötä.

Suunnitellulla loppusijoituspaikalla on oltava riittävän suuria ja ehyitä kalliotilavuuksia, joihin loppusijoitustilat voidaan rakentaa. Loppusijoitustiloja rakennettaessa on määritettävä ja luokitettava niitä ympäröivän kallion sellaiset rakenteet ja muut ominaisuudet, joilla voi olla merkitystä pohjaveden virtauksen, kallio liikuntojen tai muiden pitkäaikaisturvallisuuteen vaikuttavien seikkojen kannalta.

Maanalaisia loppusijoitustiloja louhittaessa ja rakennettaessa on kallioperän säilytettävä mahdollisimman hyvin pitkäaikaisturvallisuuden kannalta tärkeät ominaisuudet. Käytetyn polttoaineen loppusijoituksen toteutuksessa on käytettävä kalliorakentamismenetelmiä, joilla rajoitetaan louhintahäiriöitä loppusijoitustiloja ympäröivässä kalliossa.

Viranomaistarve kallioperä- ja pohjavesitutkimushankkeisiin KYT2010-tutkimusohjelmassa perustuu valtioneuvoston asetukseen 736/2008 ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuudesta ja YVL-ohjeisiin. KYT2010-tutkimusohjelman hankkeet kallioperä- ja pohjavesitutkimusten osalta ovat olleet perusteltuja viranomaisnäkökulmasta.

KYT2010-tutkimusohjelman kallioperä- ja pohjavesitutkimushankkeet ovat tuottaneet uutta osaamista ydinjätetutkimukseen ja odotettavissa on myös opinnäytetöitä, mikä on ollut puiteohjelman tavoitteiden mukaista. Viranomaisen näkökulmasta KYT2010-tutkimusohjelman hankkeiden tuli mm. tuottaa tietoa, joka on riippumatonta ja jota voitaisiin hyödyntää luvanhakijoiden ja -haltijoiden tekemän työn arvioinnissa. Hankkeiden tulokset ovat hyödynnettävissä myös loppusijoituksen toteutuksessa.

6 Radionuklidien vapautuminen ja kulkeutuminen tutkimusohjelmassa 2006–2010

Radionuklidien vapautumisen ja kulkeutumisen tutkimus liittyy tutkimusohjelmassa loppusijoituksen turvallisuuden arviointiin. Ydinjätteiden loppusijoittamisen pitkäaikaisturvallisuuden tulee turvallisuusvaatimusten mukaan perustua toisiaan täydentävien vapautumisesteen aikaansaamiin turvallisuustoimintoihin siten, että yksittäisen toiminnon vajavuus tai ennustettavissa oleva geologinen muutos ei vaaranna pitkäaikaisturvallisuutta (Valtioneuvoston asetus 736/2008; YVL D.5). KBS-3-konseptissa kallioperä muodostaa luonnollisen vapautumisesteen nuklidien kulkeutumiselle. Kallioperälle asetetaan turvallisuustoiminnot, jotka liittyvät mm. pohjavesikemiaan ja radioaktiivisten aineiden liikkumisen rajoittamiseen pidättämällä nuklideja kiven pinnoille ja huokosiin (YVL D.5).

Radionuklidien vapautumisen ja kulkeutumisen tarkasteleminen on keskeinen osa loppusijoituksen turvallisuuden arviointia. Tarkastelut liittyvät skenaarioihin, joissa loppusijoitustilassa olevat ydinjäte kapselit ovat vaurioituneet siten, että niistä pääsee vapautumaan radionuklideja puskuriin ja ympäröivään kallioon. Valtioneuvoston asetuksessa 736/2008 ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuudesta on erikseen säädetty enimmäisarvot tällaisissa tilanteissa sallittaville vuotuisille maan pinnalla tapahtuville säteilyvaikutuksille usean tuhannen vuoden ajanjaksolla. Kyse on ajanjaksosta, jonka aikana ihmisille aiheutuva säteilyaltistus voidaan riittävän luotettavasti arvioida. Tämän ajanjakson jälkeiselle elinympäristöön tapahtuvalle vapautumiselle on määritelty tietyt nuklidikohtaiset enimmäisarvot. Ne pohjautuvat vapautuvien radioaktiivisten aineiden määrien pitkän ajan keskiarvoihin. Niiden asettamisessa on noudatettu periaatetta, että loppusijoituksesta aiheutuvat säteilyvaikutukset voivat olla enimmillään vastaavansuuruiset kuin maankamarassa olevista luonnon radioaktiivisista aineista aiheutuvat säteilyvaikutukset ja että laajalaiset säteilyvaikutukset jäävät merkityksettömän pieniksi. Säteilyturvakeskus asettaa kunkin radionuklidin osalta erikseen kyseiset raja-arvot, jotka on esitetty esimerkiksi Säteilyturvakeskuksen YVL-ohjelunokseissa D.5.

Loppusijoitettavasta jätteestä vapautumisesteen läpi elinympäristöön vapautuvien radioaktiivisten aineiden määrien ja niistä aiheutuvien säteilyannosten määrittäminen muodostaa tärkeän osan turvallisuusperustelusta.

KYT2010-tutkimusohjelmassa oli lähes 15 hanketta, joista saatiin suoraan tai välillisesti radionuklidien vapautumiseen ja kulkeutumiseen liittyviä tuloksia ja johtopäätöksiä. Näillä on paitsi kansallista, myös kansainvälistä merkitystä, sillä joissakin hankkeissa on tehty urauurtavaa tutkimustyötä. Hankkeiden avulla suomalaiset tutkijat ovat päässeet mukaan kansainvälisiin tutkimuksiin. Viranomaisille

tulokset antavat monipuolista vertailuaineistoa kiteisen kallioperän olosuhteista ja ominaisuuksista. Hankkeiden avulla on luotu uutta osaamista, hankittu uusia laitteita sekä opinnäytetöiden kautta koulutettu uusia osaajia alalle. KYT2010-tutkimusohjelman hankkeet radionuklidien vapautumisen ja kulkeutumisen tutkimiseksi ovat olleet perusteltuja viranomaisnäkökulmasta.

7 Yhteiskuntatieteelliset selvitykset tutkimusohjelmassa 2006–2010

Yhteiskuntatieteellisten selvitysten tarkoitus tutkimusohjelmassa on tukea suomalaista ydinjätehuollon lupakäsittelyä, johon liittyy yhtenä osa-alueena kysymys myös ydinjätehuollon ja erityisesti käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituslaitoksen hyväksyttävyydestä. Ydinjätehuoltoon liittyvä yhteiskuntatieteellinen tutkimus on ollut vuodesta 2008 lähtien yksi sisällöllinen painopiste, joka on tuotu esille tutkimusohjelman johtoryhmän laatimassa evästyksessä.

Tutkimusohjelmassa rahoitettiin vuosina 2008–2010 yhteiskuntatieteellistä tutkimushanketta, jossa seurattiin muutoksia suhtautumisessa loppusijoitukseen ja selvitettiin ydinjätteen loppusijoitusta koskevia tiedonhankintatarpeita ja -keinoja Eurajoella ja sen naapurikunnissa. Tutkimusohjelman hanke kattoi myös Eurajoen naapurikuntien asukkaiden käsitykset, kun taas aikaisemmissa tutkimuksissa pääpaino on ollut erityisesti Eurajoen kunnan asukkaiden käsityksissä.

Tuloksia voidaan käyttää osana päätöksentekoa ja vertailevassa arvioinnissa, sillä samaan aikaan on tehty lähes vastaavanlaisia tutkimuksia muiden tahojen toimeksiannosta. Yhteiskuntatieteellinen selvitys lisää osaltaan myös kansainvälistä tietämystä siitä, kuinka ydinjätteen loppusijoituksessa on Suomessa onnistuttu etenemään ja miten laajasti kansallisesti ja paikallisesti hyväksyttyä toiminta on. Yhteiskuntatieteellinen tutkimus on kansainvälisesti merkittävää ja verkostoitunutta. Yhteiskuntatieteellisen tutkimuksen tuloksia julkaistaan myös kansainvälisissä alan tiedejulkaisuissa.

8 Tiivistelmät hankkeista

8.1 Suomalainen erotus- ja transmutaatiotekniikan tutkimus

Markku Anttila, VTT

ORGANISAATIO

Projekti oli käynnissä koko KYT2010-tutkimusohjelman ajan. Se perustui VTT:n ja Helsingin yliopiston kemian laitoksen radiokemian laboratorion (HYRL) yhteistyöhön. Lähtökohtana oli seurata alan kansainvälistä kehitystä ja välittää siitä tietoa kotimaisille toimijoille sekä kehittää omaa käytännön osaamista. VTT keskittyi transmutaatiotekniikkaan ja HYRL erotustekniikkaan.

TRANSMUTAATIOTEKNIIKAN TUTKIMUS

Transmutaatiotekniikan mahdollisten hyötyjen ja haittojen arviointi edellyttää kykyä laskea erilaisten ydinpolttoainekiertojen materiaalitaseita sekä niiden käyttöönottovaiheessa että teoreettisessa tasapainotilanteessa.

Transmutaatiolaitosten reaktorifysikaalisen laskentakyvyn kehittäminen

VTT:ssä on pyritty viime vuosina kehittämään kyky simuloida nopeiden natrium-jäähdytteisten reaktorien käyttöjaksoja. Siksi hankittiin ensin OECD/NEA:n tietopankista ERANOS2.0-ohjelma ja vuonna 2010 tehtiin CEA:n kanssa lisenssisopimus, joka antoi VTT:lle ohjelman uusimman version (ERANOS2.2) käyttöoikeuden. Projekti on tukenut ERANOS-ohjelman käyttöönottoa, vaikkakin pääosa työstä on tehty muun rahoituksen turvin. VTT:ssä on myös muita nopeiden reaktorien laskentaan soveltuvia ohjelmia kuten Monte Carlo -tekniikkaan perustuvat Serpent ja MCNP5/MCNPX. VTT:ssä kehitetty Serpent soveltuu hyvin myös koko reaktorisydämen laskeissa tarvittavien moniryhmävakioiden laskentaan.

Projektissa on tehty myös kirjallisuustutkimukset kriittisten (nopeiden) reaktorien reaktorifysikaalisista laskentamenetelmistä ja alikriittisyyden mittausmenetelmistä. Kumpaan kysymystä on selvitetty erittäin laajasti kiihdytinavusteisten alikriittisten reaktorien (ADS) tutkimus- ja kehitysohjelmissa. Yleisesti hyväksytty lähtökohta on, että alikriittisten systeemien laskentaan voidaan käyttää kriittisten reaktorien analysointiin kehitettyjä menetelmiä. ADS:n ulkoisen neutronilähteen laskentaan on myös luotu riittävän tarkat ohjelmat. Tietokoneohjelmien tarvitsemien ydinvakioiden laskentaan ja mittaamiseen on käytetty huomattavasti voimavaroja. Myös luotettavien menetelmien kehittämisessä ADS-sydämen alikriittisyyden

mittaamiseen on edistytty, ainakin teoreettisesti. Menetelmien arviointia vaikeuttaa edelleenkin riittävän edustavien koelaitosten puute.

Sivuaktinidien polttaminen kevytvesireaktoreissa

Ns. sivuaktinidit (neptunium, amerikium ja curium) vaikuttavat merkittävästi korkea-aktiivisen ydinjätteen ominaisuuksiin 70–80 vuoden jäähtymisen jälkeen. Siksi on tutkittu erilaisia mahdollisuuksia vähentää niiden kertymistä. Reaktorifysikaalisesti järkevin vaihtoehto on polttaa niitä nopeissa reaktoreissa. Niiden laaja käyttöönotto on kuitenkin vielä kaukana tulevaisuudessa. Siksi on tutkittu myös erilaisia mahdollisuuksia käyttää myös kevytvesireaktoreissa sivuaktinideja sisältävää polttoainetta tai niistä valmistettuja säteilytyskohtioita. Laskennallisesti voidaan osoittaa, että neptuniumin ja amerikiumin kertymistä on mahdollista rajoittaa. Curiumin säteilyttäminen kevytvesireaktorien termisessä spektrissä voi tuottaa entistä hankalampia radionuklideja. VTT:n omat alustavat laskut CASMO- ja SIMULATE-3-ohjelmilla antoivat samansuuntaisia tuloksia. Tutkimusta on tarkoitus jatkaa. Sitä varten vuoden 2011 alussa hankittiin Studsvik Scandpower, Inc. -yhtiöltä SIMULATE-3-versio, joka soveltuu perusversiota paremmin tällaisiin laskuihin.

YDINPOLTTOAINEKIERTOJEN ANALYSOINTIMENETELMÄT

Ydinpolttoainekiertojen ajasta riippuvaan analysointiin on viime vuosina kehitetty useita tietokoneohjelmia, joista osa on vapaasti saatavilla, osa tutkimuskeskusten omaan käyttöön kehitettyjä ja osa kaupallisia. Projektissa tehtiin tällaisista ohjelmista kirjallisuustutkimus. Sen ja myös aiemmin tehtyjen ohjelmavalintojen (ERANOS) perusteella päädyttiin neuvottelemaan CEA:n ja Arevan kehittämän COSI6-ohjelman saamisesta VTT:n käyttöön. Vuoden 2011 alussa vaikuttaa siltä, että COSI6-paketista saadaan sellainen versio, jolla voidaan analysoida siirtymistä kevytvesireaktoreista nopeisiin (natriumjäähdytteisiin) reaktoreihin.

EROTUSTEKNIIKAN TUTKIMUS

Erotustekniikan kehityksen seuranta

KYT2010-tutkimusohjelman kahtena ensimmäisenä vuotena HYRL jatkoi erotustekniikan kehityksen seurantaa. Erityisen huomion kohteena oli edelleen sekundaarijätteen kertyminen ja käsittelymenetelmät. Ensin tutkimuksen kohteena oli pyrokemiallinen erotustekniikka ja sitten hydrometallurgiset ryhmäerotusmenetelmät, kuten Ranskassa kehitetty GANEX, joissa aktinidit erotetaan käytetystä ydinpolttoaineesta yhtenä ryhmänä.

Metalliantimonaattien käyttö aktinidien ja lantanidien erottamiseen ydinjäteliuoksista

Transmutoitavien radionuklidien erottaminen käytetystä ydinpolttoaineesta tuottaa nestemäisiä jätteitä, joiden puhdistamiseen jäänösnuklideista voidaan käyttää

selektiivisiä epäorgaanisia adsorbentteja. Metalliantimonaatit (MeSb) ovat sekä metallioksidgeja, joiden adsorptioon vaikuttaa metallin (Me) kemiallinen luonne ja määrä (Me/Sb-suhde). Radiokemian laboratorioissa on valmistettu suuri joukko erilaisia MeSb-yhdisteitä. Näistä valittiin edustava MeSb-joukko, jolla tutkittiin ^{152}Eu :n ja ^{241}Am :n erotusta typpihaposta. Useilla MeSb-yhdisteillä todettiin adsorptiota mittaavan jakaantumiskertoimen (K_d) korkeita arvoja. Jatkotutkimuksiin valittiin WSbSi ja SbSiO, joilla tutkittiin pH:n, mineraalihappojen ja nuklidierottelussa käytettävien metallikomplekseja muodostavien orgaanisten happojen vaikutusta adsorbentin kykyyn ottaa ja luovuttaa europiumia ja amerikumia. SbSiO:n tutkimuksissa otettiin mukaan lantanideista cerium, ^{141}Ce .

WSbSi- ja SbSiO-materiaaleilla ^{141}Ce :n, ^{152}Eu :n ja ^{241}Am :n Kd-arvot olivat erittäin korkeat (10^5 - 10^6 ml/g) pH-alueella 1-3. Samoin kaikilla kompleksinmuodostajilla oli pitoisuusalue, jossa niiden adsorptio WSbSi:iin ja SbSiO:iin oli lähes maksimaalinen. WSbSi:lla tehty kolonnikoe osoitti, että prosessointikapasiteetti hivenainepitoisuuksissa oli erittäin korkea. Siten sekä WSbSi että SbSiO soveltuvat hyvin sekundaarisien jäteliuosten puhdistamiseen. WSbSi:n valinta perustui sen kykyyn ottaa myös cesiumia ja strontiumia. SbSiO:n valinta perustui sen erittäin korkeaan ^{152}Eu :n ja ^{241}Am :n K_d -arvoon. Molemmista adsorbenteista ^{152}Eu ja ^{241}Am erottuivat parhaiten toisistaan eluotaessa 2 M orto-fosforihapolla tai 0,3-0,4 M typpihapolla. Orgaanisten happojen sekä desorptio että nuklidien erottelukyky jäi vähäiseksi, vaikka erotustekijöissä todettiin selviä eroja. Cerium käyttäytyi lähes identtisesti amerikiumin kanssa. Toisaalta optimiolosuhteissa antimonisilikaattiin ladatun Ln/An-aktiivisuuden huono desorptio on etu radioaktiivisen jätteen puhdistusmateriaalille, jos se lopusijoitetaan sellaisenaan.

TIEDONVÄLITYS

Projekti järjesti vuonna 2006 seminaaritilaisuuden, jossa prof. Janne Wallenius selosti kehittyneiden reaktorien ja erityisesti transmutaatiolaitosten (ADS) kansainvälistä t&k-tilannetta. Samana vuonna kirjoitettiin myös lyhyt yhteenveto laajasta, monivuotisesta NEA-tutkimuksesta, jossa vertailtiin kehittyneitä ydinpolttolaitteita myös ydinjätehuollon näkökulmasta. Muuten tiedonvälitys on tapahtunut kansallisissa seminaareissa ja kursseilla. Projektissa kerättyä asiantuntemusta on käytetty hyväksi myös muutamissa Posiva Oy:n tilaustöissä.

8.2 Ydinjätehuollon teknistieteelliset perusteet (TEPE)

Kari Rasilainen, VTT

Hanke toimi vuosina 2006–2007 ja on osa jo aiemmin alkanutta pitkäjänteistä ydinjätehuollon turvallisuusanalyysimetodiikan kehitystyötä. Konkreettisesti hankkeessa on panostettu (1) käytetyn polttoaineen loppusijoituksen turvallisuusanalyysimetodiikan kehittämistä tukeviin kansainvälisiin ja kansallisiin yhteistyöhankkeisiin; (2) paleohydrogeologisten tutkimusten hyödyntämistä loppusijoituksen turvallisuusperustelussa (safety case) edistävään kotimaiseen yhteistyöhön, (3) ydinjätehuollon kustannusriskianalyyysiin ja (4) ydinpolttoainekierron yleisiin säteilyturvallisuustarkasteluihin.

TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

Osahanke 1

On osallistuttu suomalaisen ydinjätehuollon kannalta keskeisten OECD/NEAn ydinjätetyöryhmien RWMC (Radioactive Waste Management Committee) ja IGSC (Integration Group for the Safety Case) työskentelyyn. Työ on kattanut kokoustyöskentelyn lisäksi Suomen vuotuisten maaraporttien valmisteluun osallistumista (RWMC) sekä työryhmien järjestämiin suomalaisittain relevantteihin workshoppeihin osallistumista. Kotimaassa osahanke on osallistunut aktiivisesti ydinturvallisuusneuvottelukunnan (YTN) ydinjätejaoston toimintaan sekä EU-projektin ERICA (Environmental Risk from Ionising Contaminants: Assessment and Management) kansallisen loppukäyttäjäröhmän kokouksiin.

Osahanke 2

On osallistuttu aktiivisesti paleohydrogeologisten tutkimusten hyödyntämistä turvallisuusperustelussa (safety case) edistävään kotimaiseen yhteistyöhön. Yhteistyössä ovat olleet mukana lähinnä VTT, Teknillinen korkeakoulu (TKK, nytemmin Aalto-yliopisto) ja Helsingin yliopiston radiokemian laboratorio (HYRL).

Osahankkeen päätavoitteena on ollut pohtia, miten kiteisessä kallioperässä tehtyjä USD tutkimuksia (Uranium Series Disequilibrium) voidaan hyödyntää suomalaisessa turvallisuusperustelussa (safety case). Perushavaintojen ja turvallisuusperustelun välissä on nimittäin osaamisvyöhyke, jolla kartutetaan ymmärrystä kallioperän redox-käyttäytymisestä ja vasta tätä ymmärtämystä on sitten mahdollista hyödyntää turvallisuusperustelun esim. kallioperää, massavirtoja, prosesseja ja vaihtoehtoisia turvallisuusargumentteja tarkastelevissa osakokonaisuuksissa. Yksittäiset USD-havainnot on kytkettävä tähän laajempaan osaamisvyöhykkeeseen ennen kuin niitä voidaan hyödyntää turvallisuusperustelussa.

Eri tutkimuspaikoilta otetuille vesinäytteille mitattuja uraanisarjan radioaktiivisia epätasapainoja, esim. aktiivisuussuhde U-234/U-238 on pyritty hyödyntämään

paikoilla vallinneen virtaussysteemin karakterisoinnissa (Suksi et al. 2006). Palmotun uraaniesiintymän vesinäytteille tehdyissä tutkimuksissa havaittiin myös, että U-234:n suora alfa-rekyyli kiteisestä kivistä veteen ei todennäköisesti riitä yksin selittämään vedessä mitattuja epätasapainoja (Rasilainen et al. 2006). Alfa-rekyyli on fysikaalinen vapautumismekanismi ja em. havainto tarkoittaa, että vapautumisen, joka selittäisi vedestä mitatut epätasapainot, on oltava luonteeltaan kemiallinen (olettaen että vapautumisreaktio on luonteeltaan joko fysikaalinen tai kemiallinen). Alfa-rekyyli epäilemättä tapahtuu, mutta merkittävämpi U-234:n vapautuminen olisi luonteeltaan kemiallinen prosessi ja vedessä mitattu radioaktiivinen epätasapaino edustaa fysikaalisen ja kemiallisen vapautumisen yhteisvaikutusta.

Yhteistyössä Helsingin yliopiston radiokemian laboratorion (HYRL) kanssa on valmisteltu laboratoriokoetta, jolla matkitaan jääkauden hapellisen sulamisveden synnyttämän redox-muutoksen aiheuttamaa uraanin mobilisaatiota.

Osahanke 3

Osahankkeessa on sovellettu Monte Carlo-simulointia ydinjätehuollon kustannusriskien tarkasteluissa. Hankkeessa on laadittu ydinjätehuollon kustannusriskimalli, jolla on laskettu alustavia tuloksia (Forsström 2006). Tulokset liittävät yhteen kustannukset ja epävarmuuden syventäen riskien ymmärrystä ja edesauttaen vastuumääräarvion määrittämistä. Osahankkeen perustavoite oli selvittää ja demonstroida riskianalyysoimismenetelmän käytettävyyttä kustannusriskitarkasteluissa.

Osahankkeessa on toteutettu myös VTT:n vuotuinen lausunto kauppa- ja teollisuusministeriölle (KTM, nytemmin työ- ja elinkeinoministeriö TEM) ydinjätehuollon kustannusarvioista, jotka ydinjätehuoltovelvolliset olivat vuosittain toimittaneet ministeriöön.

Osahanke 4

Osahankkeessa on osallistuttu strategiaan, erilaisten ydinpolttoainekiertojen radiologiin vaikutuksiin keskittyviin kansainvälisiin ja niitä tukeviin kansallisiin hankkeisiin. Yhteistyössä Markku Anttilan (VTT) kanssa on laadittu raportti "Kehittyneet polttoainekierrat ja ydinjätehuolto" (Anttila & Rasilainen 2007). Raportissa arvioidaan esim. OECD/NEA:ssa aihepiiristä laaditun työryhmäraportin (OECD 2006) suomalaisittain kiinnostavimpia osia, joissa on mm. laadittu graniittiseen kallioperään oletetun loppusijoituksen turvallisuusanalyysi erilaisten kehittyneiden polttoainekiertojen tuottamille jätteille. Näitä kiteisen kallioperän loppusijoituksen turvallisuusanalyysia on verrattu käytetyn polttoaineen loppusijoituksen vastaavaan turvallisuusanalyysiin.

TULOSTEN MERKITYS YDINJÄTEHUOLLON TUTKIMUKSEN KANNALTA

Tulosten merkitys ydinjätehuollon kannalta vaihtelee osahankkeittain. Osahankkeessa 1 pystyttiin viestittämään kansainvälisen keskustelun teemoja Suomeen ja

vastaavasti Suomen ydinjätehuollon tilannetta OECD/NEA:n asiantuntijaryhmille. Osahankkeessa 2 on pohjustettu tapaa hyödyntää paleohydrogeologisia tutkimuksia, esim. USD-tutkimuksia loppusijoituksen turvallisuusperustelun relevanteissa osissa. Osahankkeessa 3 kehitettiin ydinjätehuollon kustannusriskimalli. Osahankkeessa 4 arvioitiin OECD/NEA:n piirissä tehdyn kehittyneiden ydinpolttoainekiertojen jätehuoltoa tarkastelevaa raporttia suomalaisin silmin.

TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

Tutkimuksen menetelmiä ovat olleet kokoustyöskentely, selvitykset ja matemaattinen mallinnus.

Viitteet

Anttila, M. & Rasilainen, K. 2007. Kehittyneet polttoainekierrat ja ydinjätehuolto, Tutkimusraportti VTT-R-01849-07, 26 s.

Forsström, J. 2006. Ydinjätehuollon kustannusriskianalyysi. Esitutkimus. VTT, Espoo. VTT Working Papers 64, 51 s, ISBN 951-38-6615-7. (<http://www.vtt.fi/inf/pdf/workingpapers/2006/W64.pdf>)

OECD Nuclear Energy Agency (NEA), 2006. Advanced Fuel Cycles and Radioactive Waste Management, OECD 2006, 244 p.

Rasilainen, K., Nordman, H., Suksi, J. & Marcos, N. 2006. Direct alpha-recoil as a process to generate U-234/U-238 disequilibrium in groundwater, 29th International Symposium on the Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIX, Ghent, Belgium, 1216 Sept. 2005, Vol. 932 (2006), 10411048.

Suksi, J., Rasilainen, K. & Pitkänen, P. 2006. Variations in $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios in groundwater-A key to flow system characterisation? Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C, Vol. 31 (2006) No: 1014, 556571.

8.3 Tilannekatsaus uraanikaivosjätteiden kehittyneistä huoltomenetelmistä

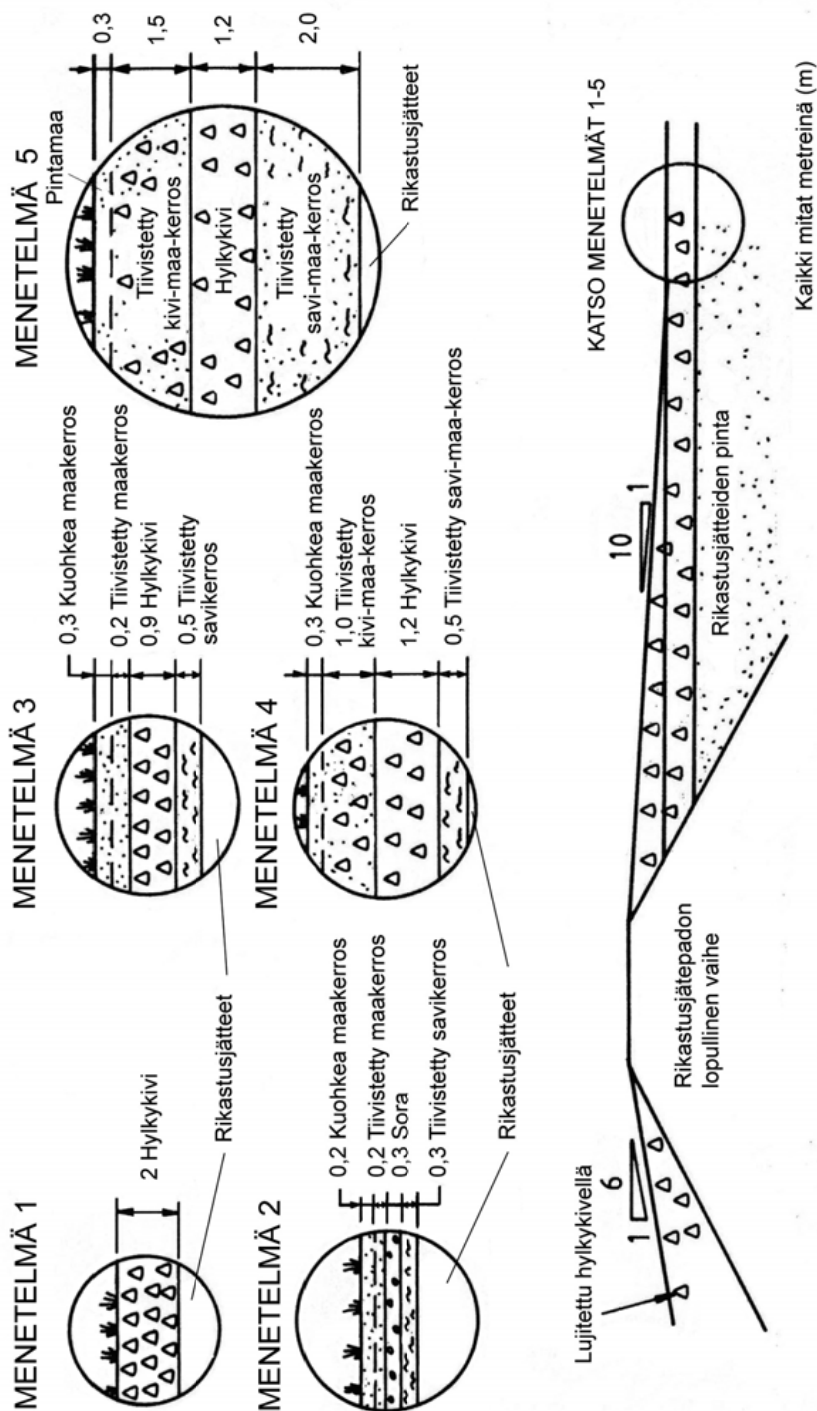
Vesa Suolanen, VTT

KESKEISET TULOKSET

Tutkimuksessa on tarkasteltu uraanikaivostoiminnassa syntyvien kaivosjätteiden – sivukiven ja rikastusjätteiden – huoltomenetelmiä pohjautuen nykyisin käytössä tai suunnitteilla oleviin ratkaisuihin.

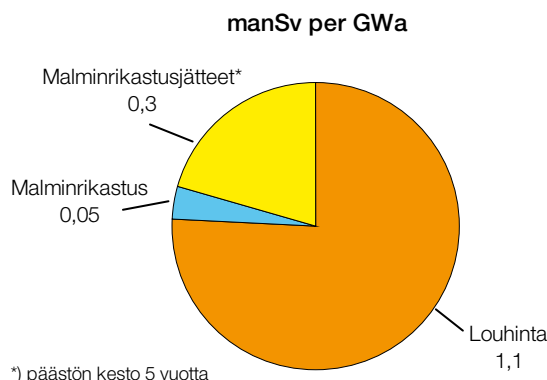
Rikastusjätteiden eristämismenetelmien päätyypit ovat maanpäällinen, maan-alainen tai vedenalainen loppusijoitus. Maan alle louhitun tai esimerkiksi vanhan kaivosonkalon hyödyntäminen on pitkän aikavälin stabiiliusehdon nojalla hyväksyttävä ratkaisu. Rikastusjätteiden käsittelyyn ja tilojen mahdolliseen lisäeristykseen on varauduttava ennen rikastusjätteiden sijoittamista tiloihin. Rikastusjätteet tulee kiinteyttää sopivalla teollisella menetelmällä ja sijoittaa eristettyyn tilaan tai kuiluun, josta ei ole yhteyttä elolliseen luontoon. Kaikissa tapauksissa tulee estää rikastusjätteiden eroosio sekä toisaalta liukeneminen ja kulkeutuminen pintavesiin tai maaperään (kuva 2).

Kuva 2. Rikastusjätteiden eristämisvaihtoehtoja maa-, savi- ja kivimurskekeroksin (OECD).



Uraanikaivostoiminnasta työntekijöille aiheutuvat säteilyannokset ovat yksilöannoksina taustasäteilyn tasolla eli noin 3 mSv vuodessa työntekijää kohden. Väestölle aiheutuva normeerattu kollektiivinen annos on noin 1 manSv/GWa (kuva 3).

Kuva 3. Uraanin louhinnasta, rikastuksesta ja kaivosjätteistä väestölle aiheutuva kollektiivinen annos 1000 MW:n voimalaitoksen vuodessa tuottamaa energiamäärää (manSv/GWa) ja tarvittavaa polttoainemäärää (200 tU/vuosi) kohden (OECD/NEA & IAEA).



TULOSTEN MERKITYS JA HYÖDYNNETTÄVYYS

Tutkimuksessa on tarkasteltu uraanikaivosten eri jätehuoltomenetelmien soveltuvuutta, kun tavoitteena on pyrkiä kustannustehokkaasti minimoimaan toiminnasta pitkällä aikavälillä aiheutuvat säteilyannokset. Uraanikaivosjätteiden käsittelyyn ja loppusijoittamiseen valittavien menetelmien tulee perustua toiminnallisesti tarkasteltuna kestäviin ratkaisuihin.

KÄYTETYT MENETELMÄT

Tutkimus on toteutettu soveltavan kirjallisuustutkimuksen menetelmin. Keskeisinä lähdemateriaaleina on käytetty Kansainvälisen atomienergiajärjestön (IAEA), Taloudellisen yhteistyön ja kehityksen järjestön ydinenergiatoimiston (OECD/NEA) sekä Yhdistyneiden kansakuntien ionisoivan säteilyn vaikutusten tieteellisen komitean (UNSCEAR) aineistoja.

8.4 Opetuksen koordinointi: Ydinjätehuollon yliopisto- ja täydennyskoulutuksen koordinointi

Mira Markovaara-Koivisto, Aalto-yliopisto

TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

Hankkeen tavoitteena oli tehdä luonnossuunnitelma kansallisen tason ydinjätehuollon koulutuksen sisällöstä ja tehdä kooste koulutuksen mahdollisista sisällöntuottajista ja rahoituslähteistä.

Työ alkoi 11.6.2010 työ- ja elinkeinoministeriössä (TEM) kokoontuneen työryhmän määrittäessä tehtävän työn sisältöä. Työryhmään kuului Jaana Avolahti (TEM), Kaisa-Leena Hutri (STUK), Marjatta Palmu (Posiva Oy), Mira Markovaara-Koivisto ja Jussi Leveinen (Aalto-yliopisto). Kokouksessa päätettiin, että koulutussuunnitelma luonnos raportoidaan kirjallisessa muodossa hankkeen raportin osana.

Seuraavaksi järjestettiin kokous, jossa työryhmään kutsuttiin lisäksi myös edustajia eri organisaatioista, jotka voisivat mahdollisesti osallistua kurssin sisällön tuottamiseen. Fortum Power and Heat Oy:tä edusti Sami Hautakangas, Fennovoima Oy:tä Juhani Hyvärinen, TVO:ta Anssu Ranta-aho, VTT:tä Kari Rasilainen ja Aalto-yliopistoa Mikael Rinne. Sisällöntuottajille kerrottiin tarkemmin koulutuksen tarkoituksesta, sen suunnittelusta sisällöstä ja mahdollisesti jo vuonna 2010 järjestettävästä lyhyemmästä pilot-kurssista.

Pilot-kurssin sisällön raamit määräsi alustava koulutussuunnitelma, mutta tarkempi sisältö määräytyi sen mukaan, minkä aiheisia luentoja sisällöntuottajilla oli tarjottavana näin lyhyellä varoitusajalla. Luennoista saatiin koottua osapuolia tyydyttävä 2 päivän kokonaisuus. VTT lupautui järjestämään kurssilaisille n. 4 tunnin opastetun kierroksen Otaniemen laboratoriotiloissaan ja tutkimusreaktorillaan.

Ydinjätehuollon pilot-kurssin osallistujamäärä rajoitettiin 21 osallistujaan opastetun kierroksen tilarajoitteen vuoksi. Kurssia mainostettiin sisällöntuottajien organisaatioissa, ja 21 ilmoittautuneesta kaikkiaan 20 pääsi osallistumaan kurssille.

Kurssi jouduttiin jakamaan kahteen erilliseen päivään luennoitsijoiden aikataulun takia. Ensimmäinen luentopäivä järjestettiin Aalto-yliopistolla 23.11.2010. VTT:n laboratoriekierros järjestettiin keskiviikkona 1.12.2010 klo 13.30–17.00 ja toinen luentopäivä torstaina 2.12.2010. Kurssin lopuksi tehtiin kurssikysely, johon kaikki osallistujat vastasivat.

Kurssi on jatkossa suunniteltu järjestettäväksi vuosittain Aalto-yliopistolla. Tavoitteena on pidentää kurssi 5 päivään, jotta luennoilla voidaan käsitellä kaikki koulutussuunnitelmaluonnoksessa listatut aiheet. Kurssi tullaan toteuttamaan muutamassa osassa sille osallistumisen helpottamiseksi.

Hankkeen aikana keskusteltiin koulutuksen tulevaisuuden rahoitusmahdollisuuksista:

- KYT2014-ohjelma
- Kurssin sisällön tuottaminen YK-mallisenä talkootyönä eri toimijoiden toimesta

- Koordinoinnin kulujen laskutus suoraan kurssilaisialähteviltä organisaatioilta
- Opiskelijoilta perittävä osallistumismaksu, joka on suhteessa opiskelijan kotiorganisaation ko. koulutuksessa talkoilla tuottamaan luentomäärään.

TULOSTEN MERKITYS JA HYÖDYNNETTÄVYYS

Hankkeen aikana suunniteltiin ja toteutettiin 2,5 päivän mittainen Ydinjätehuollon pilot-kurssi. Kurssin järjestelyn ja kurssipäivien aikana kurssikoordinaattori Mira Markovaara-Koivisto keräsi kokemusta tällaisen kurssin järjestämisestä käytännössä sekä kurssikyselyn avulla opiskelijoiden mielipiteitä kurssin onnistumisesta. Näitä kokemuksia käytetään hyväksi jatkossa tutustuttaessa tulevia asiantuntijoita ydinjätehuollon alalle.

Hankkeen aikana kerrottiin 20 ydinjätehuollon uudelle asiantuntijalle ydinjätehuollon perusteista, toimijoista ja lainsäädännöstä. Koulutuksen aikana osallistujat tutustuivat toisiinsa, luennoitsijoihin sekä heidän edustamiinsa organisaatioihin. Osallistujille jaettiin kurssin päätteeksi alalle verkottautumisen tueksi eräänlainen käsitekartta kaikista osallistujista, luennoitsijoista, suunnitteluryhmäläisistä ja heidän sijoittumisestaan ydinjätehuollon alalle.

Eräänä merkittävänä hankkeen tuloksena voidaan pitää myös koulutuksen suunnitteluryhmän kokoamista ja heidän mielipiteiden huomioon ottamista koulutuksen sisältöä mietittäessä. Koulutuksen jatkuessa vuosittain järjestettävän kurssin merkeissä koulutussuunnitelmaa voidaan muokata ja laajentaa uusilla jäsenillä. Myös luentoja pitävien organisaatioiden listaa on laajennettava tulevaisuudessa kurssin sisällön laajetessa. Lisäksi kurssin järjestämisestä on ilmoitettava laajemmin, jotta saadaan kaikki alan uudet asiantuntijat mukaan koulutukseen.

TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

Koulutuksen suunnittelussa ei käytetty varsinaisia tutkimusmenetelmiä, mutta luonnoskoulutussuunnitelma laadittiin asiantuntijoiden yhteissuunnittelulla. Suunnitelman osan toimivuutta kokeiltiin pilot-koulutuksella ja pilot-kurssin arvioinnissa käytettiin Aalto-yliopiston kurssipalautteen pohjalta laadittua räätälöityä ja strukturoitua kyselylomaketta.

8.5 Kuparikapselin pitkäaikaiskestävyys

Juhani Rantala, Jorma Salonen, Pertti Auerkari, Stefan Holmström, VTT
Tapio Saukkonen, Aalto-yliopisto

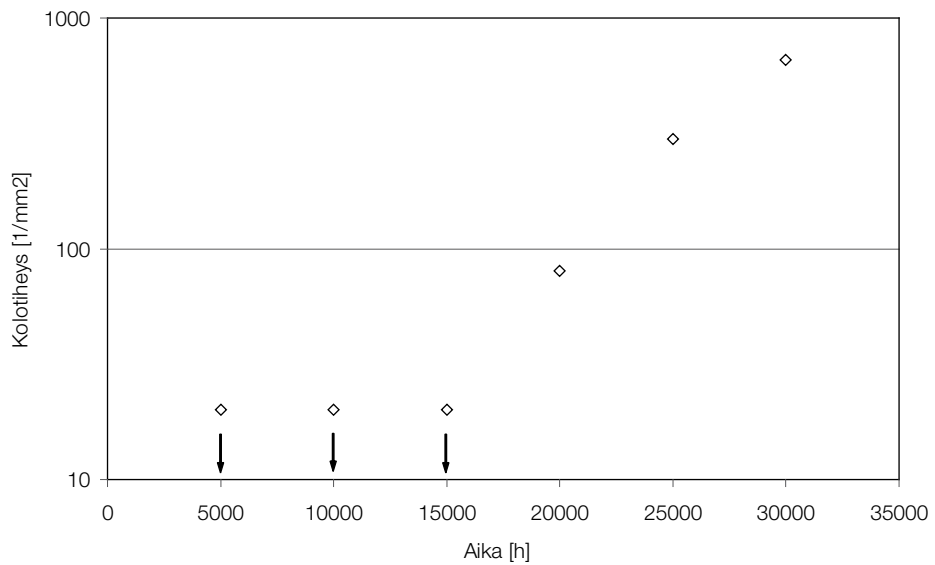
Projektissa on tutkittu muutoksia OFP-kuparin perusaineessa ja FSW-hitsissä pitkäaikaisten virumiskokeiden jälkeen, jotka on suoritettu matalassa lämpötilassa (150–175°C) ja alhaisella jännityksellä (35–120 MPa). Havaitut muutokset 30 000 tunnin (3,4 vuotta) kokeen jälkeen 175°C:ssa moniaksaalisissa (CT) koesauvoissa rajoittuvat levenneisiin toipumisvyöhykkeisiin kuormitetuilla raerajoilla ja kiihtyvään virumiskoloutumiseen (kuva 4), jota havaittiin ensin 15 000 tunnin koeajan jälkeen hitsausliitoksen loven kärjessä. Virumiskoloutuminen näyttää korreloivan yhdistetyn paikallisen venymä- ja jännitystilan kanssa loven kärjen edessä. Tulokset CT-kokeista ja aikaisemmista nimellisesti yksiaksiaalisista mutta vikoja sisältäneistä koesauvoista viittaavat siihen, että moniaksaalisuus vaikuttaa ratkaisevasti elinikään ja lyhentää sitä. Vertailun vuoksi 10 400 h (1,2 vuotta) testatuissa puhtaissa OFHC-kuparin CT-sauvoissa havaittiin nopeasti kehittyvää raerajasäröilyä, särön haarautumista ja alhaista murtovenymää, kun taas OFP-kuparissa virumisvenymät ovat toistaiseksi pysyneet korkeina.

Pisin yhä käynnissä oleva OFP-kuparin yksiaksiaalinen virumiskoe (150°C/120 MPa) on ollut käynnissä jo 75 000 tuntia (8,5 vuotta). Vaurion mallintamisen kannalta on huomionarvoista, että pisimmän yksiaksiaalisen kokeen keskeytysten yhteydessä on jo havaittu yleistä mikrosäröilyä (kuva 5). Pienten luonnollisten FSW-hitsivikojen lyhentämä elinikä osoittaa lovivaikutuksen tuottamaa heikkenemistä edetäessä kohti pidempiä murtoaikoja. Koetulokset tukevat virumismallien kehitystä ja niitä on hyödynnetty kapselin ennustetun lämpötilahistorian perusteella tehdyn elinikäennusteen taustatietona. Ennuste on laadittu kolmelle eri jännitykselle käyttäen yhdistettyä Wilshire- ja LCSP-virumismallia OFP-kuparille (kuva 6). Ennustettu suurin sallittu (vakio) jännitystaso kapselin 100 000 vuoden eliniälle on 140 MPa.

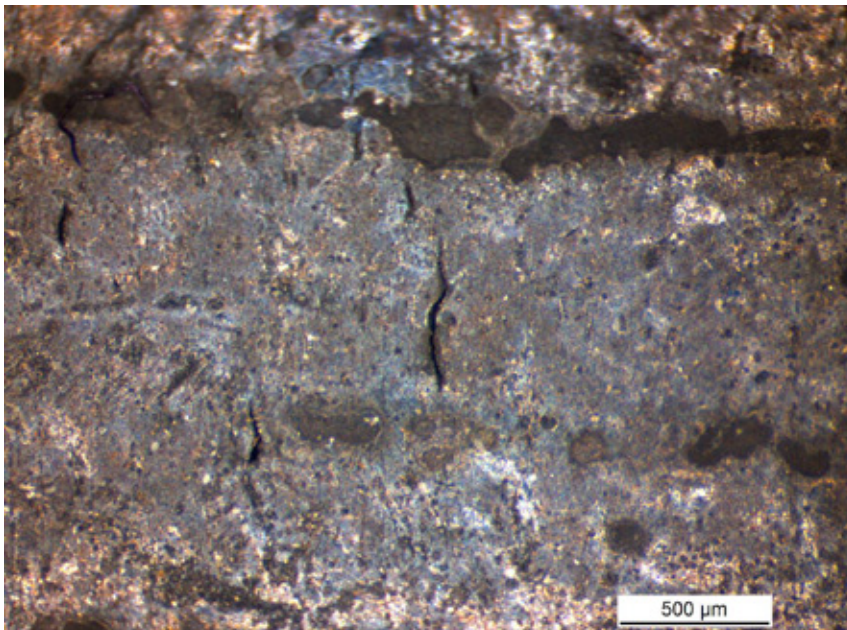
Hitsatun OFP-kuparin CT-sauvan yhdistetyssä korroosio- ja virumiskokeessa hapellisessa simuloidussa Olkiluodon pohjavedessä (90°C) havaittiin voimakasta yleistä korroosiota kahden millin syvyyteen saakka 4400 tunnin koeajan jälkeen (kuva 7). Mitään näyttöä paikallistuneesta korroosiosta särön kärjessä ei ole tullut esiin. Jatkotyötä on ehdotettu raportoidun jännityskorroosion lämpötilariippuvuuden selvittämiseksi hapettomissa pohjavesiolosuhteissa.

Tuloksista voidaan johtaa merkittäviä johtopäätöksiä loppusijoitusolosuhteiden kannalta. Aiempi oletus kapselin alhaisesta jännitystasosta ei ehkä pidä paikkaansa, koska SKB:n suunnitteluraportissa on esitetty hyvin korkeita jännityksiä jopa pitkien ajanjaksojen jälkeen. Riippumattonta vertailutulosta varten kapselin jännitysanalyysiä ehdotetaan uusittavaksi käyttäen VTT:n virumismallia ja keskittyen hitsin alueeseen. Lisäksi moniaksaalisuuden vaikutus tulee selvittää suhteessa väitettyyn lovilujittumiseen ja havaittuun eliniän lyhenemiseen.

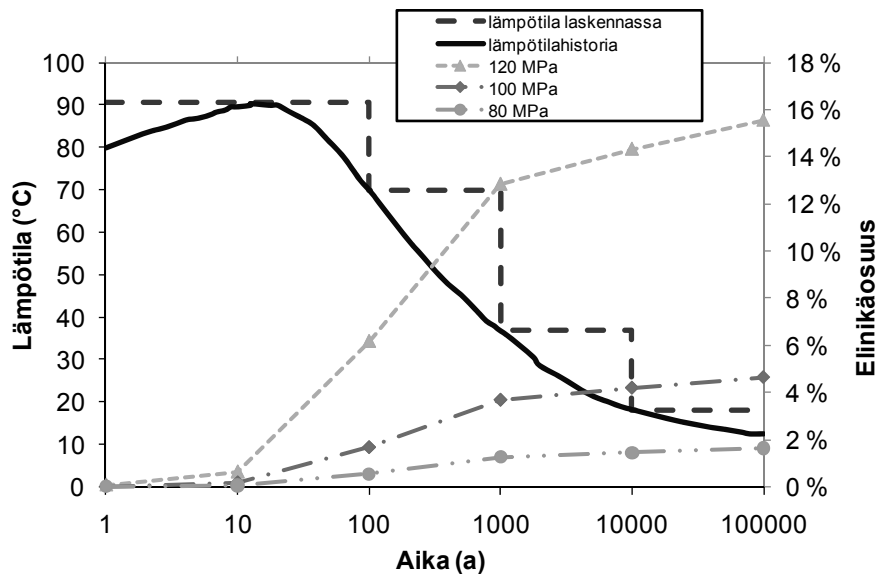
Kuva 4. Raerajakolotiheys kitkatappihitsatussa OFP kupari CT-sauvassa lämpötilassa 175°C/35 MPa referenssijännityksellä; 15000 tuntiin saakka kokotiheys on ollut havaitsemisarajan alapuolella.



Kuva 5. Pintasäröjä yksiakselialisen virumiskoesauvan pinnalla , testattu 75134 h 150°C:ssa.



Kuva 6. Kapselin lämpötilahistoria ja ennustettu elinikäosuus kolmella jännitystasolla loppusijoitusolosuhteissa käyttäen kuivan bentoniitin olettusta; katkoviiva edustaa konservatiivista eliniän laskennassa käytettyä lämpötilahistoriaa.



Kuva 7. Yleistä korroosiota CT-sauvassa 4400 tunnin jälkeen 90°C:ssa simuloidussa Olkiluodon pohjavedessä.



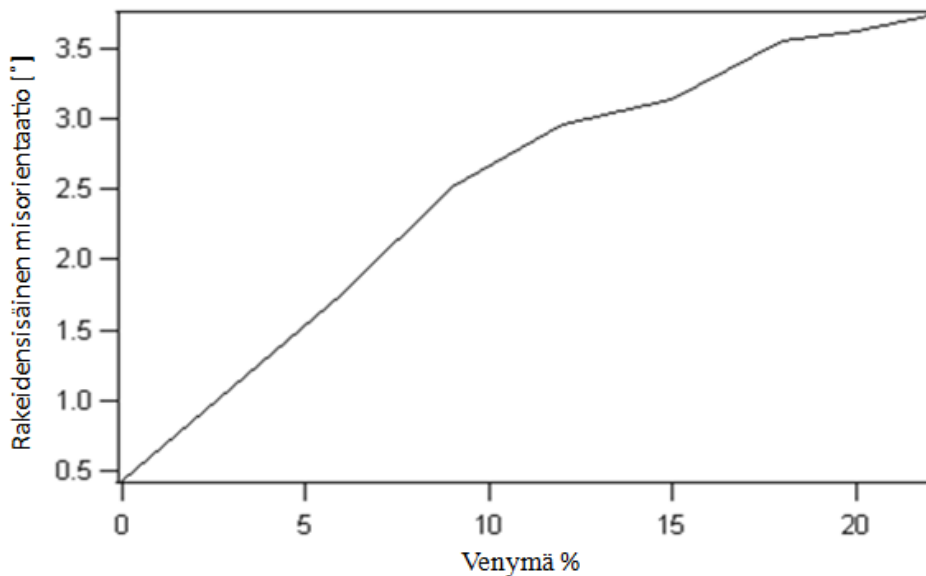
8.6 Ydinjätekapsoelin deformaatiomekanismit

Kati Savolainen, Aalto-yliopisto

TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

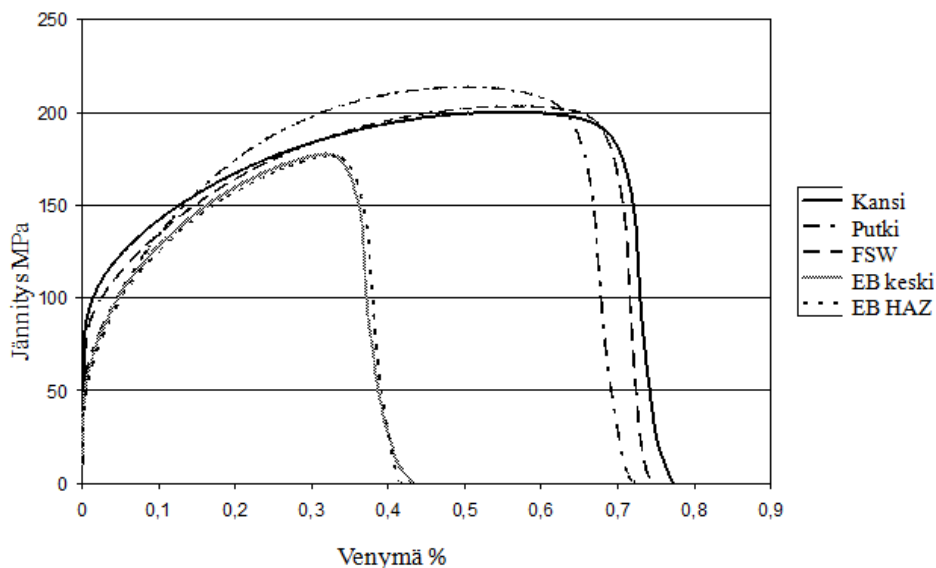
Kalibrointikäyrä paikallisen deformaatioasteen määrittämistä varten FE-SEM/EBSD-laitteistolla on valmis (Kuva 8).

Kuva 8. Kalibrointikäyrä paikallisen deformaatioasteen määrittämistä varten OFP-kuparilla.



Plastisen deformaation paikallistumista kuparisen ydinjätekapsoelin eri osissa (taottu kansimateriaali, pursotettu putkimateriaali, elektronisuihkuhitsi EB ja kitkatappihitsi FSW) on tutkittu isoilla, koko hitsausliitoksen sisältävillä näytteillä ja optisella venymämittauslaitteistolla. Huomattiin, että FSW-hitsin lujuus ja murtovenymä ovat perusaineiden luokkaa, kun taas EB-hitsin lujuus ja erityisesti murtovenymä ovat selkeästi heikompia. EB-hitsi murtui vaihdellen joko hitsin keskeltä suuren raekoon takia tai kannen puoleiselta sularajalta jyrkän raekokogradientin takia ja FSW-hitsi murtui oksidipartikkelijonon kohdalta. Näytteiden jännitys-venymäkäyrät ovat kuvassa 9.

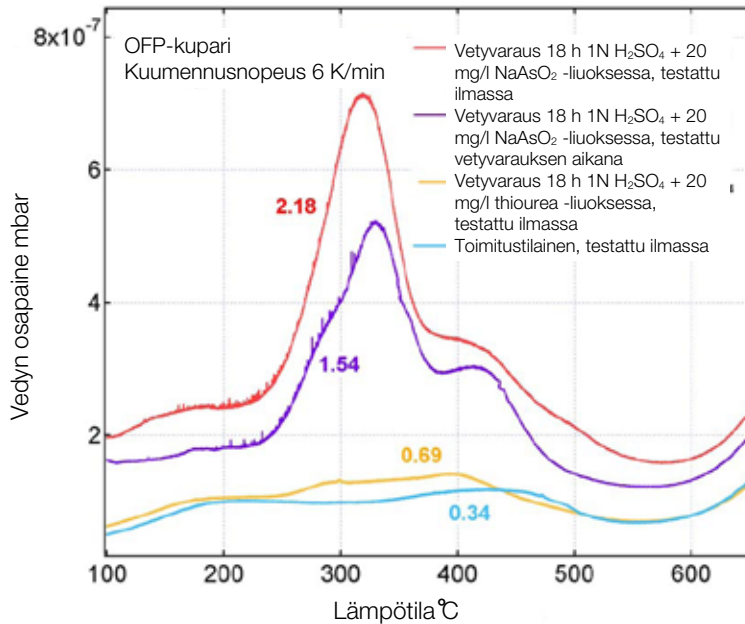
Kuva 9. Kuparisen ydinjättekapselin eri osien vetokokeiden jännitys-venymäkäyrät.



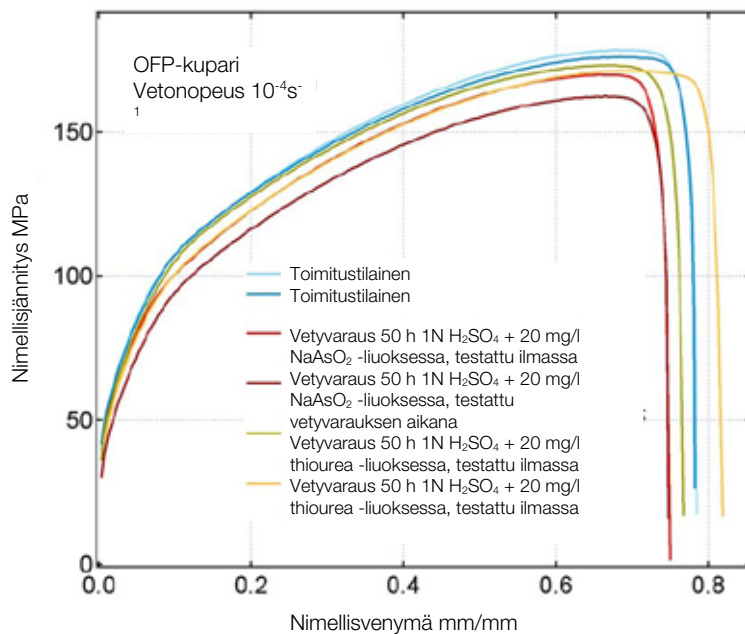
In situ -aineenkoetusta FE-SEM/EBSD/EDS-laitteistolla on tehty tutkittaessa deformaation paikallistumista mikrorakenteen tasolla. On havaittu, että koeteknisistä syistä johtuen suuri osa kokeista kannattaa tehdä valomikroskopiaa ja optista venymämittauslaitteistoa käyttäen ja käyttää in situ -elektronimikroskopiaa tarkoissa mittauksissa, joita tarvitaan julkaisuihin. Tuloksia käytetään hyväksi useimmissa projektin artikkeleissa ja raporteissa.

Vedyn vaikutusta kuparikapselin mekaanisiin ominaisuuksiin on tutkittu teemmällä vetokokeita vetyvaratuilla näytteillä sekä sisäisen kitkan ja termisen desorption menetelmillä. Kuvassa 10 on eri olosuhteissa vetyvarattujen OFP-kuparinäytteen tyypillinen vedyn TDS-spektri. Kuvassa 11 on toimitustilaisen ja vetyvaratun OFP-kuparin jännitys-venymäkäyrät. Tuloksista nähdään, että vetyvarattujen näytteen aineenkoetus ilmassa ja katodisen vetyvarauksen aikana liuoksessa johtaa suunnilleen samaan murtovenymään – kuparin sitkeys ei alene vedyn vaikutuksesta. Jännitys-venymäkäyristä voidaan havaita kuparin deformaation tapahtuvan kuitenkin alemmalla jännityksellä (ns. flow stress pienenee) vedyn vaikutuksesta.

Kuva 10. Eri olosuhteissa vetyvarattujen OFP-kuparinäytteiden TDS-spektrit. Vedyn kokonaismäärä on mitattu LECO-menetelmällä (ppm).



Kuva 11. Toimitustilaisen ja eri olosuhteissa vetyvarattujen OFP-kuparinäytteiden jännitys-venymäkäyrät.



TULOSTEN MERKITYS YDINJÄTEHUOLLON TUTKIMUKSEN KANNALTA

Tämän tutkimusprojektin tutkimustuloksilla on suuri merkitys kuparisen ydinjätekapselin vauriomekanismien ja eliniän ymmärtämisen kannalta. Kuparikapselin hitsausliitokset ovat merkittäviä epäjatkuvuuskohtia (mikrorakenteellinen elastinen ja plastinen epäjatkuvuus, korkeat jäännösjännitykset ja voimakas jännityskonsentraatio sekä mahdollisten hitsausvirheiden vaikutus). Hitsausliitosten mikrorakenteita ei ole aiemmin karakterisoitu moderneilla orientaatiomikroskopian menetelmillä (FEGSEM/EBSD) eikä nanoindentaation avulla mikrorakenteen paikallisten elastisten ja plastisten epäjatkuvuuskohtien löytämiseksi. Näiden uusien menetelmien käyttö on välttämätöntä, jotta erilaiset mahdolliset deformaation paikallistumisen mekanismit ymmärretään syvällisesti ja niiden merkitys kuparikapselin eliniän arvioimisessa voidaan tieteellisesti ottaa huomioon. Kuparikapselin mikrorakenteellisten epäjatkuvuuskohtien ymmärtäminen on myös erityisen tärkeää arvioitaessa kuparikapselien virumisen- ja jännityskorroosionkestävyyttä. Kuparin yleisessä korroosiossa syntyvän vedyn on esitetty absorboituvan kupariin ja haurastavan kuparikapseleita ja mahdollisesti johtavan nopeaan ennaikaiseen murtumiseen. On erittäin tärkeää tuntea vedyn absorptio, liukoisuus ja diffuusio kuparissa, jotta vedyn vaikutukset voidaan tieteellisesti sulkea pois sekä haurausmekanismien että virumismekanismien yhteydessä.

TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

- Elektronisuihku- (EB) ja kitkatappihitsaus (FSW)
- Pyyhkäisyelektronimikroskopia ja energiadiispersiivinen röntgenspektroskopia (SEM/EDS)
- Elektronitakaisinsirontadiffraktio (electron backscatter diffraction, EBSD)
- Optinen mikroskopia
- Mekaaninen aineenkoetus (vetokokeet, kovuusmittaukset, nanoindentaatio)
- Optinen venymämittaus
- Mekaaninen spektroskopia (sisäinen kitka)
- Sähkökemiallinen vetyvaraus
- Vedyn terminen desorptio (thermal desorption spectroscopy, TDS)

8.7 Kuparin korroosionopeuden mittaaminen kaasufaasissa loppusijoituksen alkuvaiheessa

Jari Aromaa, Aalto-yliopisto

Hankkeessa tutkittiin kuparin korroosionopeutta kaasufaasissa ja liuosmuuttujien vaikutusta korroosioon loppusijoituksen alkuvaiheessa. Alkuvaiheessa tapahtuvan korroosion on oletettu olevan luonteeltaan vesiliuoksessa tapahtuvaa korroosiota. Tänä aikana kuparin yleinen korroosio voi aiheuttaa 1–2 mm suuruisen oheneman. Kirjallisuuden perusteella korroosionopeudet ovat luokkaa 0,1 $\mu\text{m}/\text{vuosi}$ atmosfäärissä, 2–3 $\mu\text{m}/\text{vuosi}$ bentoniitissa ja enimmillään 20 $\mu\text{m}/\text{vuosi}$ upotusratituksessa. Bentoniittipuskurin turpoamisen jälkeen yleistä korroosiota ei pitäisi enää tapahtua.

Ennen bentoniittipuskurin turpoamista kiinni kuparikapseliin niiden välillä on ohut kaasutila. Tämän tutkimuksen lähtökohta oli, että alkuvaiheessa korroosio voi olla samanlaista kuin ilmastollinen korroosio. Haihtuminen ja tiivistyminen tuottavat näytteen pinnalle nestefilmin, joka käynnistää korroosion. Ilmastollisessa korroosiossa reaktionopeudet saattavat olla suurempia kuin vesiliuoksessa, koska aineensiirtoilmiöt kondensoituneessa nestefilmissä ovat nopeampia kuin upotuksessa liuokseen. Liuoksen haihtuminen ja tiivistyminen kaasufaasissa voivat myös johtaa epäpuhtauksien rikastumiseen kapselin yläosan pinnalle. Epäpuhtauksien rikastumisella voi olla vaikutusta yleisen korroosion, pistekorroosion ja jännityskorroosion etenemiseen. Oletusten mukaan hapettoman ympäristön ei pitäisi aiheuttaa kuparin yleistä korroosiota. Riittävän korkea pH passivoi kuparin pinnan. Sulfidi-ionit passivoivat kuparin hapettomissa olosuhteissa. Kloridi-ionit taas saattavat aiheuttaa korroosion voimistumista. Pinnalle muodostuneet paikalliset vauriot voivat toimia piste- tai jännityskorroosion alkukohtina. Korroosiotutkimukset tehtiin suljetun reaktorin kaasufaasissa käyttämällä kvartsikidemikrovaaka, joka kykenee erottamaan nanogrammojen painonmuutoksen.

KESKEISET TULOKSET

Tutkimuksessa selvitettiin kuinka kvartsikidemikrovaaka soveltuu korroosiomittauksiin kaasufaasissa. Mittauksissa päästiin painonmuutosten analyysissä tarkkuuteen, joka vastaa korroosionopeutta 0,1 $\mu\text{m}/\text{vuosi}$. Laitteen mittaustarkkuus ja analyysimenetelmä todettiin riittäviksi pienten korroosionopeuksien mittaamiseen. Korroosioympäristön hallintaan rakennettu reaktoriratkaisu oli toimiva.

Kokeissa tutkittiin atmosfäärin, sen hapettavuuden, liuoksen koostumuksen ja kuparipinnan hapettumisen vaikutusta korroosionopeuteen. Pinnalle kasvaa atmosfäärissä reaktiotuotekerros, jonka paksuus on suuruusluokkaa 50–700 nm. Aluksi tapahtuu nopea logaritmisesti nopeuslain mukainen painon nousu, jota seuraa lineaarinen painon muutos ajan funktiona. Alkuvaiheen painon nousu tapahtuu muutamien kymmenien minuutin aikana. Tämän jälkeen reaktiotuotekerros pysyy joissakin

tapauksissa stabiilina, joissakin tapauksissa se alkaa liueta ja joissakin tapauksissa hapettua edelleen.

Puhdas, juuri valmistettu kuparipinta hapettuu kuivassa kaasufaasissa nopeasti. Painon nousu on 2–4 µg. Tämän jälkeen näyte saavuttaa vakiotilan. Puhtaalla, tislattulla vedellä tuotetussa kosteassa kaasufaasissa hapettumakerroksen muodostuminen näkyy kuivaan ilmaan verrattuna selvästi suurempana painon nousuna, luokkaa 20–25 µg. Kostean kaasufaasin tuottavana perusliuoksena käytettiin synteetistä Allard-pohjavettä. Kokeissa muutettiin Allard-veden kloridipitoisuutta, happamuutta sekä ammonium- ja sulfidi-ionien pitoisuutta.

Tislattun veden aikaansaaman kosteuden ja kondenssin kanssa kuparin korroosionopeus ilmassa oli lämpötilassa 40–60 °C noin 10–20 µm/vuosi, mutta lämpötilassa 80 °C vain 4–8 µm/vuosi. Typellä tehdyissä hapettomissa olosuhteissa kupari ei aina liennut vaan muodosti reaktiotuotteita, mikä näkyi painon kasvuna. Hapettomissa olosuhteissa painon muutos vaihteli korroosion aikaansaamasta ohene-masta 1 µm/vuosi oksidikerroksen kasvuun 3–4 µm/vuosi. Happikuplitus veteen tuotti niin hapettavat olosuhteet, että oksidikerroksen kasvu jatkuu voimakkaana, yli 30 µm/vuosi.

Allard-veden sisältämien suolojen vaikutus näkyy tislattua vettä suurempina korroosionopeuksina kun atmosfäärinä on ilma. Ilma-atmosfäärissä korroosionopeus oli 10–70 µm/vuosi. Typpi-atmosfäärissä veden koostumuksella ei ollut merkitystä ja painon muutos vaihteli ohene-masta 1 µm/vuosi oksidikerroksen kasvuun 3–4 µm/vuosi. Kun Allard-veden kloridipitoisuutta kasvatettiin, niin kaasufaasissa painon pieneneminen hidastui ja muuttui painon nousuksi kloridipitoisuuden ollessa yli 1000 mg/l. Upotusrasituksessa kloridin vaikutus oli päinvastainen ja kuparin korroosionopeus kasvoi kloridipitoisuuden kasvaessa. Allard-vedessä, jonka kloridipitoisuus oli välillä 2–20 g/l ja lämpötila 80 °C, korroosionopeus oli välillä 1–100 µm/vuosi. Sulfidi- tai ammoniumionien lisääminen tai pH:n laskeminen eivät merkittävästi vaikuttaneet painonmuutokseen.

Pinnan hapettumisella ja reaktiotuotekerrosten muodostumisella on vaikutus korroosion etenemiseen. Puhtaalla kuparilla alussa tapahtuu logaritmisien nopeuslain mukainen painon nousu, jota seuraa lineaarinen painon muutos. Tätä lineaarista vaihetta on käytetty korroosionopeuksien vertailussa. Hapettumakerroksesta ennen korroosiokoetta on analysoitu kuparioksidia CuO. Ohuilla oksidikerroksilla painonmuutoksen käyttäytyminen on samanlaista kuin puhtaalla kuparilla. Paksummilla hapettumiskerroksilla painonmuutos ajan funktiona ei aina noudata lineaarista nopeuslakia. Kun oksidikerroksen paksuus ennen korroosiokoetta on luokkaa 30 nm, niin painonmuutos voi alkaa noudattaa parabolista nopeuslakia. Lineaarista vaihetta ei näissä kokeissa nähty. Hieman hapettuneelle pinnalle voidaan käyttää samoja menetelmiä korroosionopeuden arviointiin kuin puhtaalle kuparille. Voimakkaammin hapettuneelle pinnalle on sovellettava ilmeisesti ilmastollisessa korroosiossa ja korkealämpötilakorroosiossa käytettäviä hapettumisen nopeuslakeja. Kaasufaasissa näytteen pinnalle hapetettu oksidikerros ei vaikuttanut

korroosionopeuteen verrattuna puhtaaseen kuparipintaan. Upotusrasituksessa ohut, ilmeisesti vain osittain pinnan peittävä oksidikerros sai aikaan saman korroosionopeuden kuin millä puhdas kuparipinta syöpyi. Paksummat oksidikerrokset eivät syöpyneet upotusrasituksessa.

TULOSTEN MERKITYS

Loppusijoituksessa olosuhteet ovat aluksi hapettavat ja muuttuvat pelkistäviksi hapen kuluessa pois suljetusta tilasta. Kosteassa atmosfäärissä, kun käytetään tislattua vettä, näytteen paino ei muuttunut hapettomissa olosuhteissa, hapettavissa olosuhteissa paino laski ja hyvin hapettavissa olosuhteissa paino kasvoi. Kun ympäristönä oli Allard-vesi, niin trendi oli sama. Tulokset vahvistavat osaltaan sitä perusolelusta, että hapettomissa olosuhteissa kuparin korroosiota ei merkittävästi tapahdu.

Veden koostumus vaikuttaa korroosionopeuteen kun ympäristössä on happea. Typikkuplitetussa hapettomassa ympäristössä painon muutos tislattun veden kanssa oli $-0,04...0,1 \text{ ng/cm}^2/\text{s}$ ja Allard-veden kanssa $-0,1...0,03 \text{ ng/cm}^2/\text{s}$ eikä painonmuutoksilla ole eroa. Ilmakuplitetussa liuoksessa eli hapettavissa olosuhteissa painon muutos tislattun veden kanssa oli $-0,1...-0,6 \text{ ng/cm}^2/\text{s}$ ja Allard-veden kanssa $-0,05-2 \text{ ng/cm}^2/\text{s}$. Hapettavissa, kosteissa olosuhteissa Allard-veden kanssa ohenema oli enimmillään kolminkertainen verrattuna tislattuun veteen. Kloridipitoisuuden kasvattaminen hidasti korroosiota kaasufaasissa mutta voimisti upotusrasituksessa. Hieman happamat olosuhteet tai sulfidi- tai ammoniumionien lisääminen eivät vaikuttaneet korroosioon kaasufaasissa. Happea sisältävässä atmosfäärissä liuoksen kondensoituessa kuparin pinnalle painon muutoksesta lasketut korroosionopeudet voivat olla kymmeniä mikrometrejä vuodessa. Hapettomassa tilassa korroosionopeudet ovat korkeintaan muutama mikrometri vuodessa. Kapselin korroosioympäristön ja erityisesti kloridien vaikutusta korroosionopeuteen olisi aiheellista tutkia lisää.

Kapselin ulkopinta ehtii hapettua ennen sen sijoittamista loppusijoitustilaan. Tällä pinnan oksidikerroksella voi olla vaikutusta korroosionopeuksiin. Erityisesti ohut oksidikerros, joka ei peitä täysin pintaa, vaikuttaa nopeuttavan korroosiota hapettavissa olosuhteissa. Oksidikerroksen ja muiden loppusijoituksen aikana muodostuvien reaktiotuotekerrosten vaikutusta korroosion nopeuteen olisi aiheellista tutkia lisää.

Tarkasteltaessa määritettyjä korroosionopeuksia on muistettava, että ne ovat lyhyiden, korkeintaan 1-3 vuorokauden mittaisten kokeiden tuloksia. Korroosionopeudet ovat todennäköisesti suurempia kuin mitä pitkäaikaisessa, vuosia kestävässä korroosiossa saadaan. Lasketut korroosionopeudet ovat olleet suurimmillaan yli kymmenkertaisia verrattuna bentoniitissa mitattuihin korroosionopeuksiin ja samaa suuruusluokkaa kuin upotusrasituksessa mitatut korroosionopeudet. Tämän tutkimuksen perusteella ei kuitenkaan voida sulkea pois mahdollisuutta, että yleisen korroosion nopeus voi olla hapettavissa olosuhteissa arvioitua suurempi.

TUTKIMUSMENETELMÄT

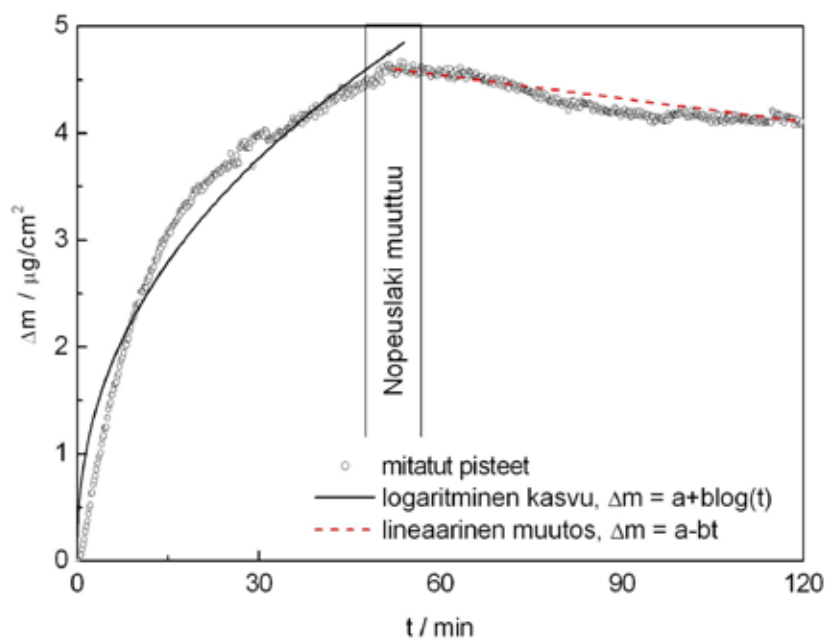
Tutkimuksessa käytettiin Stanford Research Systems SRS200 -kvartsikidemikrovaaka. Kvartsikidemikrovaakan toiminta perustuu resonanssitaajuuden muuttumiseen, kun näytekiteen paino muuttuu. Tutkimuksessa käytetylle laitteistolle esitetään yleisesti massan mittaustarkkuudeksi suuruusluokka 10 ng/cm^2 . Puhtaalle kuparille tehdyissä mittauksissa alussa tapahtuu nopea logaritmisen nopeuslain mukainen painon nousu, jota seuraa lineaarinen painon muutos ajan funktiona. Tätä lineaarista vaihetta käytettiin korroosionopeuksien vertailussa. Mittaustuloksista laskettiin trendinä lineaarinen painonmuutos ajan funktiona, jota hyödynnettiin edelleen korroosionopeuden laskemisessa. Lineaariset painonmuutokset voitiin todeta tasolla $10^{-2} \text{ ng/cm}^2/\text{s}$. Mittauksissa päästiin painonmuutosten analyysissä tarkkuuteen, joka vastaa korroosionopeutta $0,1 \text{ }\mu\text{m}/\text{vuosi}$.

Kokeet tehtiin laittamalla kuparilla pinnoitettu kvartsikidenäyte reaktorissa atmosfääriin, joka muodostui kun reaktorissa oleva koelius höyrystyi. Näytteet valmistettiin sähkösaostamalla puhdasta kuparia kuparisulfaatti-rikkihappoliuoksesta kvartsikiteen pinnalle noin $5 \text{ }\mu\text{m}$ paksuinen kerros. Puhdas kupari ei koostumukseltaan vastaa kapselien fosforiseostettua kuparia, mutta tällä ei oletettu olevan merkitystä tutkittavien yleisen korroosion ilmiöiden kannalta.

Kokeita varten tehty reaktori perustui lämpövaipalliseen suljettuun kaasutiiviseen lasiastiaan. Reaktoria kuumennetaan lämpöhauteen avulla. Reaktorin pohjalla on vakiomäärä höyrystyvää liuosta ja kvartsikidemikrovaakan mittaussanturi on reaktorin yläosassa kaasufaasissa. Atmosfäärin hallinta järjestettiin kuplittamalla ilmaa, hapetta tai typpeä pohjalla olevaan liuokseen ja johtamalla kaasu vesilukon kautta pois reaktorista. Reaktoriratkaisu oli toimiva olosuhteiden hallitsemiseen.

Kokeet perustuivat kvartsikidemikrovaakalla mitattuun painonmuutokseen ajan kuluessa. Tulokset tulkittiin kuvassa 12 esitetyn esimerkin perusteella. Kuvan 12 lineaarisen alueen kulmakerrointa, painon muutos ajan funktiona, käytettiin korroosionopeuksien laskemiseen.

Kuva 12. Korroosiokokeiden tulkinnan periaate.



8.8 Sulfidien aiheuttama kuparin jännityskorroosio

Timo Saario, VTT

TAUSTA

Kuparikapseli on ydinjätteiden loppusijoituskonseptissa keskeinen tekninen vapautumiseste. Jännityskorroosio on vaurioitumismekanismi, joka potentiaalisesti voi vaurioittaa kaikkia loppusijoituskanistereita suhteellisen lyhyessä ajassa.

Vuonna 2007 julkaistun japanilaisen tutkimuksen mukaan puhtaalla kuparilla esiintyy jännityskorroosiota myös hapettomissa olosuhteissa sulfidi-ionien (S^{2-}) läsnäollessa. Sulfideja kulkeutuu loppusijoitusolosuhteissa kuparikapselin pinnalle kolmen eri prosessin kautta: 1) pohjaveden mukana, 2) bentoniitti/kallio rajapinnalta sulfaatteja pelkistävien bakteerien (SRB) toiminnan tuloksena kohonneena pitoisuutena ja 3) SRB toiminnan tuloksena bentoniitin sisältämän pyriitin pelkistymistuotteena.

Pohjavedessä sulfidi-pitoisuudet ovat melko pieniä, normaalisti 1–3 mg/l. Bakteritoiminnan tuloksena bentoniitti/kallio-rajapinnassa syntyvää sulfidipitoisuuden maksimiarvoa ei tarkasti tunneta, mutta arvot voivat olla huomattavan korkeita, jolloin diffuusion ajava voima bentoniitin läpi (konsentraatiogradientti) muodostuu pohjavettä huomattavasti suuremmaksi. Bakteritoiminnan tuloksena bentoniitissa syntyvä sulfidipitoisuus tunnetaan bentoniitin tiheyden funktiona. Koetusten mukaan sulfideja syntyy bakteritoiminnan tuloksena jopa täysin kompaktoidussa bentoniitissa. Skenaarioissa, joissa bentoniitin tiheys paikallisesti pienentyy (mm. piping, eroosio-korroosio) tulee mahdolliseksi sulfidin nopeutunut pääsy kuparipinnan lähelle.

Hankkeen tavoitteena oli arvioida sulfidien aiheuttamaa kuparikapselien jännityskorroosioriskiä loppusijoitusolosuhteissa. Tekniset tavoitteet olivat:

- 1 Arvioida bakteritoiminnan tuloksena syntyvä sulfidipitoisuuden maksimiarvo bentoniitti/kallio-rajapinnassa.
- 2 Kehittää diffuusiomalli ja laskennallinen arvio kuparikapselin pintaan pääsevän sulfidin konsentraatiosta kolmelle eri skenaariolle.
- 3 Kehittää koejärjestelyjännityskorroosiokeiksiin sulfidipitoiselle vesiliuokselle.
- 4 Määrittää kokeellisesti sulfidin minimimäärä, joka Olkiluodon tyyppisessä pohjavedessä vielä aiheuttaa jännityskorroosiota puhtaassa kuparissa (CuOFP).

PÄÄTULOKSET

1) Osana tätä projektia tehdyssä kirjallisuusselvityksessä osoitettiin, että bentoniitti/kallio -rajapinnassa bakteritoiminnan tuloksena syntyvän sulfidin maksimikonsentraatio neutraalissa pH:ssa voi olla 400–450 mg/l. Jos pH on korkeampi, voi sulfidipitoisuus olla tätä huomattavasti korkeampi. Pohjavedessä sulfidipitoisuus on

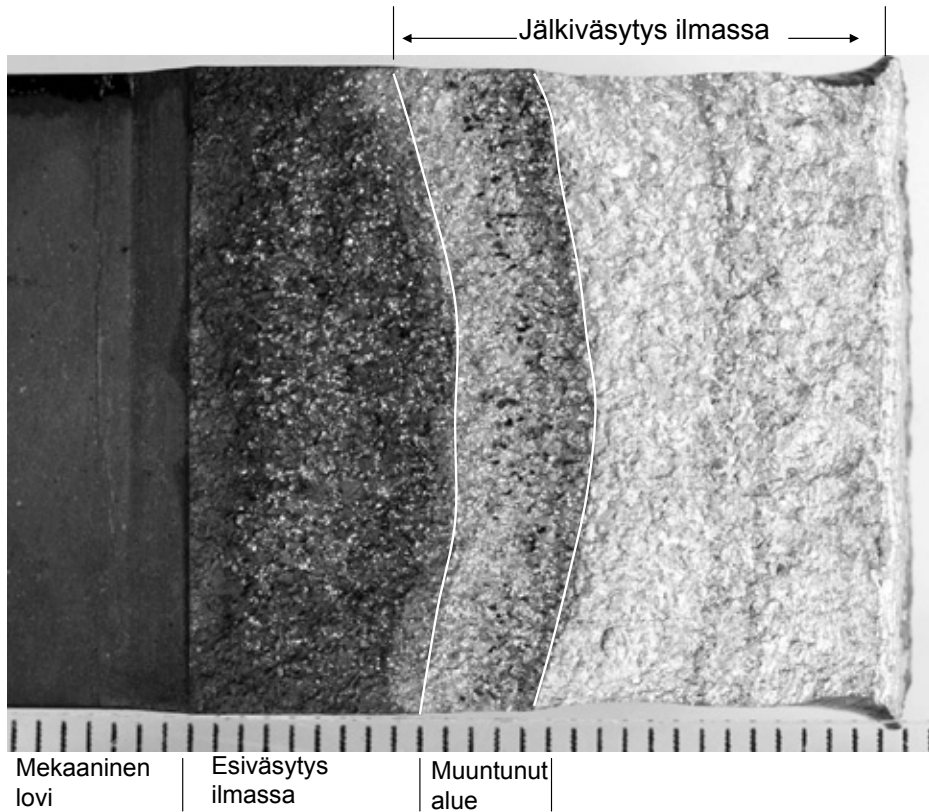
tyypillisesti 1–3 mg/l. Bakteeritoiminnan tuloksena bentoniitissa itsessään syntyvä sulfidipitoisuus on erittäin matala.

2) Projektissa kehitettiin molekyyli-diffuusioon ja advektioon perustuva diffuusio-malli sulfidin kulkeutumiselle (bentoniitin tiheyden funktiona) kompaktoidussa bentoniitissa. Skenaarioissa, joissa bentoniitin tiheys on paikallisesti pienentynyt (esim. ”piping” tai eroosio-korroosio) ja advektio on mahdollista, on sulfidin kulkeutuminen kuparikapselin pintaan helpompaa. Maksimi-arvot sulfidivuolle havaittiin advektio-tapauksissa, joissa sulfidin konsentraatio bentoniitti/kallio-rajapinnassa asetettiin tasolle 450 mg/l. Näissä tapauksissa maksimivuo saavutti arvon $200\,000\text{ mgm}^{-2}\cdot\text{a}^{-1}$. Kehitettyä diffuusiomallia voidaan käyttää arvioitaessa eri skenaarioissa kuparikapselin pintaan kohdistuvaa sulfidivuota.

3) Projektissa kehitettiin koejärjestely, jolla voidaan simuloida kuparikapselin lop-pusijointolosuhteissa kohtaamia mekaanisia ja kemiallisia kuormituksia. Koejär-jestelyä käyttäen tutkittiin huoneenlämpötilaisen sulfidipitoisen Olkiluoto-tyyppi-sen pohjaveden vaikutusta kuparikapselin rakenneaineeseen, CuOFP-materiaaliin. Esiväsytettyjä ja kuormitettuja CT-koesauvoja altistettiin pohjavedelle, johon lisät-tiin 10, 100 tai 200 mg/l sulfidia. Jännityskorroosion esiintymistä ei voitu aukotto-masti todentaa. Sen sijaan murtopinnan pyyhkäisyelektronimikroskooppitutkimuk-sissa (SEM/EDS) todettiin, että rikki/sulfidi ja vähemmässä määrin myös muut poh-javeden osalajit olivat tunkeutuneet materiaaliin särön kärjen etupuolelle tunkeu-tumisnopeuden ollessa yli 1 mm viikossa (Kuva 13). Leikattujen ja kiillotettujen koe-palojen optinen metallografia osoitti, että rikkiä/sulfidia sisältäviä sulkeumia esiin-tyi kaikissa suunnissa eikä ainoastaan särön tasossa, vaikkakin sulkeumien pinta-alaosuus oli yleensä suurin särötason lähellä.

Tutkimustulos, jonka mukaan pohjaveden osalajit voivat tunkeutua (diffuusion avulla) kiinteään CuOFP- materiaaliin huoneenlämpötilassa nopeudella yli 1 mm viikossa on täysin uusi. Tämän ilmiön mahdollisia vaikutuksia CuOFP-materiaalin mekaanisiin ominaisuuksiin selvitetään KYT2014-tutkimusohjelman osana toteu-tettavassa erillisessä projektissa.

Kuva 13. Murtopinta näytteestä, jota on altistettu viiden viikon ajan sulfidipitoisessa (200 mg/l) pohjavedessä huoneenlämpötilassa. Muuntunut alue (särön kärjen etupuolella eli "esiväsytyksessä ilmassa" -alueen oikealla puolella kuvassa), jossa näkyy mustia laikkuja (sulkeumia) ei altistuksen aikana ollut kosketuksissa veteen. Muuntunut alue on tullut näkyviin vasta altistuksen jälkeen, kun säröä on kasvatettu ilmassa jälkiväsytyksellä.



8.9 Kuparin korroosio hapettomassa vedessä

Antero Pehkonen, Aalto-yliopisto

TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

Sekä Suomessa että Ruotsissa tullaan ydinvoimalaitosten radioaktiivinen jäte loppusijoittamaan kuparikapseleihin. Kuparin on uskottu olevan kemiallisesti riittävän kestävä materiaali niin, että se kestäisi 100 000 vuoden loppusijoituksen, jossa ajassa varastoidun jätteen säteily on samaa luokkaa kuin taustasäteily. Tiedetään, että kupari ei ole täysin syöpymätön loppusijoituksessa, vaan että se syöpyy hie-
man loppusijoituksen alkuvaiheessa, noin 2000 ensimmäisen vuoden aikana, jonka jälkeen kuparin pinta mitä ilmeisimmin passivoituu ja korroosionopeus laskee erittäin alhaiselle tasolle.

Hultquist ja Szakálos /1-4/ ovat kuitenkin esittäneet, että kupari syöpyisi, toisin kuin tähän asti on uskottu, myös hapettomassa vedessä esim. reaktion $\text{Cu} + y\text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_x\text{CuO}_y + (2y-x)\text{H}_{\text{ads}}$ mukaisesti. Uusia yhdisteitä on perusteltu korroosiotuotteiden SIMS-analyysin H/O-suhteella.

Tässä projektissa pyritään puolueettomasti joko vahvistamaan tai kumoamaan tulokset, joiden perusteella kupari voisi syöpyä hapettomassa vedessä vetyä kehittäen. Eräät muutkin tutkimusryhmät ovat tutkineet kuparin korroosiota hapettomissa olosuhteissa. Hultquist et al. mukaisia tuloksia ei kukaan ole kuitenkaan saanut.

Vuonna 2010 projektin tulokset on tarkemmin kuvattu hankkeessa tehdyssä diplomityössä Corrosion of copper in oxygen free conditions /5/. Työssä on koottu aiheesta löydetty kirjallisuus ja tehty termodynaamisia tarkasteluja kuparin käytäytymisestä hapettomissa vesissä. Termodynaamisessa tarkastelussa on havaittu, että kuparin reaktio vedyn kanssa on mahdollista tislatussa vedessä vain sellaisissa ääriolosuhteissa, joita ei loppusijoitusolosuhteissa pitäisi esiintyä. Tällaiset ääriolosuhteet tarkoittavat esim. lämpötilaa yli noin 150 °C.

Hultquistin ja Szakálosin esittämät tulokset ovat ristiriidassa ilmeisen hyvin tunnetun kuparin korroosiotietouden kanssa. Joko heidän esittämänsä tulokset ovat vääriä tai kuparin korroosioreaktioiden termodynamiikasta puuttuu tietoa. Projektin termodynaamiset tarkastelut osoittavat, että kupari voi korkeassa lämpötilassa syöpyä vain, jos liuenneen kuparin pitoisuus pohjavedessä on erittäin alhainen; kun pitoisuus esim. lämpötilassa 150 °C nousee yli pitoisuuden luokkaa 10^{-8} mg/l, kuparin liukeneminen loppuu. On siis huomattavaa, että vaikka termodynaamisesti korroosioreaktio olisikin mahdollista, vasta kinetiikka määrää reaktio- ja korroosionopeuden.

Vety voi hapettomassa vedessä syntyä laboratoriokokeissa, joissa mm. reaktori-materiaalina on käytetty ruostumatonta terästä, myös muilla tavoilla.

- 1 Ruostumattoman teräksen rauta ja kromi reagoivat veden kanssa tuottaen hie-
man vetyä.

- 2 Veden osittaisen hajaantumisen myötä syntyneet H^+ -ionit yhdistyvät lisäten vedyn kehittymistä, kuparin pinnan toimiessa katalysaattorina.
- 3 Kuparissa on valmistus- ja muokausprosessien jäljiltä vetyä, joka vapautuu hiljalleen.

Projektissa on rakennettu kaksi koelaitteistoa. Koelaitteistot on rakennettu ruostumattomasta teräksestä AISI 316L. Koelaitteiston suunnittelussa on pyritty mahdollisimman lähelle Hultquistin koelaitteistoa. Tähän pääsyä on vaikeuttanut puutteelliset tiedot Hultquistin laitteistosta.

TULOSTEN MERKITYS YDINJÄTEHUOLLON TUTKIMUKSEN KANNALTA

Tutkimuksessa tehtyjen termodynaamisten tarkastelujen perusteella Hultquistin esittämä kuparin korroosiotuote (H_xCuO_y) voi esiintyä vain sellaisissa olosuhteissa, joita ei loppusijoituksessa tämän hetken tiedon perusteella esiinny.

Vaikka esitetty kuparin korroosioreaktio tapahtuisikin ydinjätteen loppusijoituksessa, pysähtyy reaktio termodynamiikan perusteella suhteellisen nopeasti pinnalle muodostuneiden korroosiotuotteiden passivoidessa pinnan. Näin kuparin syöpyminen hapettomissa loppusijoitusolosuhteissa ei mitä ilmeisimmin aiheuta sellaisia korroosiovaurioita, jotka aiheuttaisivat vakavaa säteilyä ympäristöön.

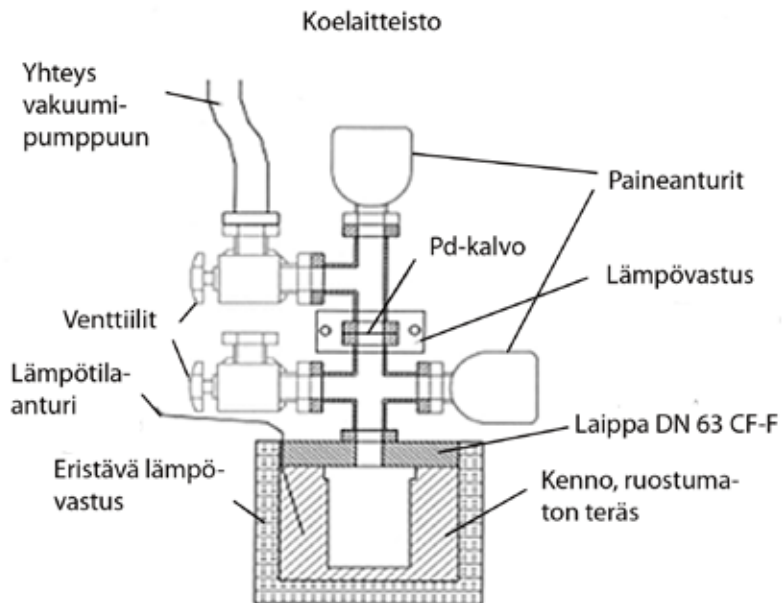
TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

Tutkimuksessa on rakennettu kaksi identtistä koelaitteistoa, joista toinen on lähetetty maaliskuun 2011 alussa Studsvik Nuclear AB:lle. Kuvassa 14 on periaatekuva laitteistosta ja kuvassa 15 Hultquistin laite sekä kuvassa 16 tässä projektissa rakennettu laite. Laitteiston kaikki ne osat, jotka ovat kosketuksessa laitteen sisäpinoillaan kaasujen tai vesihöyryn kanssa, on ruostumatonta terästä AISI 316. Kennoon asetetaan kokeissa lasiastia, johon lisätään vesi sekä kupari. Reaktiotuotteen mahdollisesti syntyvä vety kulkeutuu Pd-kalvon läpi kennon yläosaan, jossa on tyhjiö (luokkaa 10^{-6} bar). Pd-kalvon läpi ei kulkeudu muut kaasut eikä vesi. Yläosassa vedyn aiheuttama paineen muutos mitataan herkällä paineanturilla.

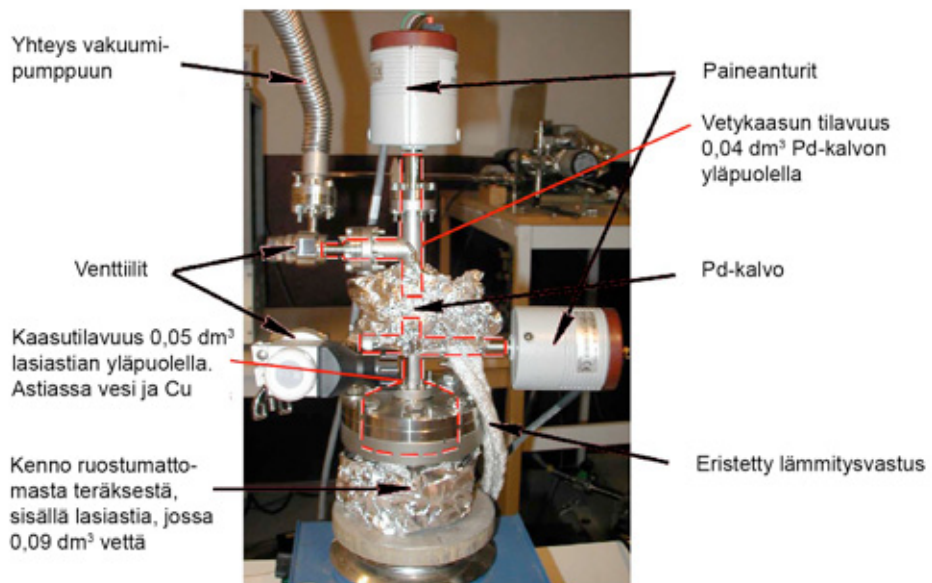
Kun kokeita tehdään korkeammassa lämpötilassa, kennoa lämmitetään sähkövastuksella. Jotta veden kondensoituminen Pd-kalvon alapinnalle voidaan estää, lämmitetään myös laippaa, jossa Pd-kalvo on.

Tutkimuksessa tehdään kokeita sekä tislatussa puhtaassa vedessä että simuloidussa pohjavedessä lämpötiloissa 20 °C ja 60 °C.

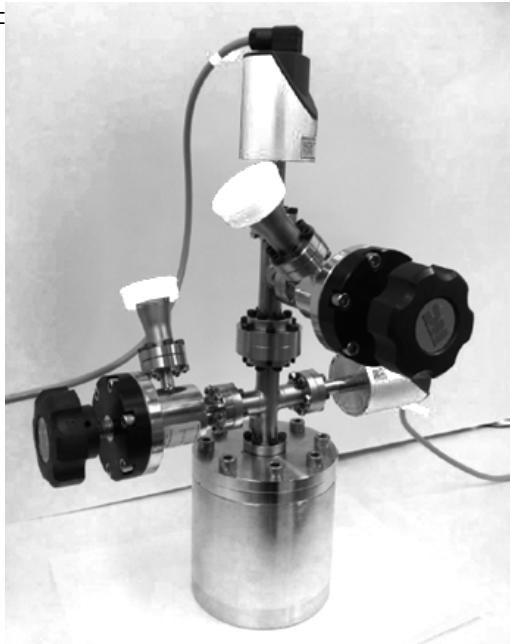
Kuva 14. Kaaviokuva koelaitteistosta.



Kuva 15. Hultquistin Häyttämä laite [3].



Kuva 16. Koelait



Viitteet

- 1 Szákalos P., Hultquist G., Wikmark G., Graham M., Spoule I. (2008). Detection of Hydrogen in Corrosion of Copper in Pure Water. International Corrosion Congress: 9 p.
- 2 Hultquist G., Szákalos P., Graham M.J., Belonoshko A.B. (2009). Water Corrodes Copper. Catalyst letters 132 311 p.
- 3 Szákalos P., Hultquist G., Wikmark G. (2007). Corrosion of Copper by Water. Electrochemical and Solid-State Letters 10(11) 5 p.
- 4 Hultquist, G. (1986). Hydrogen Evolution in Corrosion of Copper in Pure Water. Corrosion Science 26 p.
- 5 Ikonen, J. (2010) Corrosion of copper by water under oxygen-free conditions. Masters's thesis. Aalto University.

8.10 Bentomap: Bentoniitti ja tunnelin täyteainetutkimuksen osaamistason kartoitus

Elisa Rautioaho, B+Tech Oy

Leena Korkiala-Tanttu, Aalto-yliopisto

Ydinjätteen loppusijoituksessa käytettävän bentoniitin ja muiden täyteainemateriaalien osaaminen Suomessa on toistaiseksi ollut pirstaleista. Bentoniittitutkimus on perustunut pääasiassa Posivan ja SKB:n yhteistyöprojekteihin. Suomalaiset asiantuntijat ovat myös osallistuneet joihinkin kansainvälisiin yhteistyöprojekteihin. Tutkimukset ovat kuitenkin olleet luonteeltaan yksittäistutkimuksia, eivätkä ne ole muodostaneet kokonaisvaltaista aiheen osaamista tai aiheen riittävää hallintaa. Bentomap-kartoitus luotiin vastaamaan kokonaisvaltaisen osaamisen tarpeeseen. Kartoitukseen sisältyi state-of-the-art- eli yhteenvetoraportin (Rautioaho et al. 2009) ja bentoniittiaiheisen tietokannan laatiminen. Raporttia ja sen tietokantaa voivat käyttää sekä viranomaiset että asiantuntijat. Lisäksi sitä voidaan käyttää kouluttamisessa. Kartoituksen toinen merkittävä tehtävä oli osoittaa bentoniittiosaamisen puutteet ja luotettavuus. Bentomap-kartoituksessa esitetyn kaltaista kokonaisvaltaista osaamista tarvitaan loppusijoituslaitoksen rakennuslupahakemuksen valmistelussa ja sen arvioinnissa. Kaiken kaikkiaan kartoituksen tuloksia voidaan tulevaisuudessa käyttää myös bentoniittitutkimuksen suuntaamiseen.

Bentomap-kartoituksen rahoituksesta vastasi KYT-ohjelma. Kartoitus aloitettiin keväällä 2007 ja saatiin päätökseen huhtikuussa 2009. Ensimmäisenä vuonna koottiin ja luokiteltiin suuri osa materiaalista (tutkimusraportit, artikkelit ja julkaisut). Vuosien 2008 ja 2009 aikana tietokantaan tehtiin lisäyksiä, tietokantaa arvioitiin ja laadittiin yhteenvetoraportti. VTT johti ja koordinoi kartoitusta. VTT:n asiantuntijoiden lisäksi tietokantaa arvioivat Paula Keto Saanio & Riekkola Oy:stä sekä Antti Lempinen Marintelilta. Kartoituksen koordinaattorina VTT:llä toimi Leena Korkiala-Tanttu, ja muut projektiin osallistuneet tutkijat VTT:llä olivat Elisa Rautioaho, Erkki Pyy ja Rainer Laaksonen.

Kartoitus kattoi erityisesti bentoniittimateriaalien termo-hydro-mekaanisen osaamisen, mutta myös muihin täyttömateriaaleihin ja kytkettyihin prosesseihin liittyvää tutkimusta liitettiin mukaan. Tietokanta on laadittu niin, että sen ytimen muodostaa SKB:n ja Posivan tekemä bentoniitti- ja täyteainetutkimus. Laaja avainsanahaku suoritettiin VTT:n elektronisissa tietokannoissa, kuten Compendex-, Inspec-, NTIS-, Elsevierin Scopus- ja Science Direct -tietokannoissa. Näiden ohella käytettiin myös Scirus- ja Google Scholar -tietokantoja. Lisäksi lähteinä toimivat EU-projektit, kuten Febex-projekti ja Marie Curie -ohjelma, tiedejulkaisujen artikkelit sekä konferenssipaperit. Tietokantahaut rajattiin aluksi viimeiseen kymmeneen vuoteen (vuodesta 1997 vuoteen 2008). Ensimmäisen vuoden arvioinnin jälkeen ehdotettiin kuitenkin, että kartoitus laajennettaisiin kattamaan myös osan vanhemmasta tutkimuksesta, joten tutkimuksia lisättiin sen mukaisesti. Tietokantaa on päivitetty

jatkuvasti vuosina 2007–2009, ja se kattaa nyt raportteja aina vuodesta 1982 vuoteen 2009 saakka. Tietokanta luotiin Microsoft Excel ja Access -ohjelmilla. Yhteenvetoraportti laadittiin tietokantaan sisältyvien julkaisujen arvioinnin pohjalta. Raportti keskittyi kokeellisissa tutkimuksissa käsiteltyihin puskuri- ja täyteainemateriaalien termo-hydro-mekaanisiin ominaisuuksiin.

Kaksivuotisen Bentomap-kartoituksen tavoitteena oli tiivistettynä:

- kartoittaa ja luokitella puskuri- ja täyteaineelle tehtyt tutkimukset,
- arvioida tämän perusteella niiden käyttökelpoisuutta Suomen olosuhteissa,
- laatia tietokantapohjainen julkaisurekisteri, johon sisältyy myös tehtyjen tutkimusten arviointi,
- laatia erillinen yhteenvetoraportti, johon kerätään tulokset tutkimusten kattavuudesta, käyttökelpoisuudesta, mahdollisista puutteista ja rajoituksista sekä
- luoda laajempi näkemys sekä kansallisesta että ulkomaisesta bentoniittipuskurin ja tunnelin täyteaineiden tutkimuksen tilasta.

Bentomap-tietokanta sisältää yli 200 julkaisua, jotka käsittelevät bentoniittia ja täyteaineita sekä niiden termisiä (T), hydraulisia (H), mekaanisia (M), kemiallisia (C), kaasupitoisuudesta johtuvia (G) ja joissain harvoissa tapauksissa myös biologisia (B) ominaisuuksia tarkastelevia tutkimuksia. Kartoitus on kattanut sekä pienen mittakaavan laboratoriokokeita että täyden mittakaavan kokeita aidoissa syvän loppusijoitustilan olosuhteissa sekä näiden kokeiden ja muiden mahdollisten skenaarioiden mallinnusta. Tutkimusartikkeleista tietokantaan kerättyyn tietoon sisältyy materiaalien karakterisointia, menetelmäkuvausta sekä selvitystä artikkelien käyttökelpoisuudesta tai rajoituksista. Mallinnusanalyysi kuvailee lähdetietoja ja reunaeh-toja yhdessä tulosten luotettavuuden kanssa. Lukuisista tutkimuksista kerätty taulukko koostuu seuraavista kategorioista: tutkimusaihe, kirjoittajat, julkaisuvuosi, julkaisijan ja julkaisun tiedot, avainsanat, tutkitut materiaalit, jaottelu laboratorio- tai mallinnustutkimuksiin, tutkimuksen skaala, menetelmät ja mallit, tutkitut ominaisuudet, pitkän aikavälin ominaisuudet, rajoitukset, edustavuus, tulokset ja johtopäätökset, jatkotutkimuksen tarpeet, karakterisointi, luotettavuus, tulosten arviointi, käyttökelpoisuus ja kommentit. Kaikkia kategorioita ei kuitenkaan ole käytetty kaikille tutkimuksille johtuen tiedonsaantiin, arviointiin ja resursseihin liittyvistä rajoitteista.

Yhteenvetoraportti keskittyy puskuri- ja täyteainemateriaaleille, erityisesti bentoniitille, suoritettuun kokeelliseen termo-hydro-mekaaniseen tutkimukseen ja osaa-miseen ja jättää Bentomap-tietokantaan kootun mallinnustyön suurimmaksi osaksi tarkastelun ulkopuolelle. Raportissa on lueteltu lukuisia tutkimuksia ja niiden tulok-sia tiivistetyssä muodossa kattaen useiden bentoniitti- ja savimateriaalien, mukaan lukien Friedland-saven ja FEBEX-, Asha- ja erityisesti MX-80-bentoniitin, tärkeim-mät THM-ominaisuudet. Tarkastellut termiset ominaisuudet ovat lämmönjohtavuus, ominaislämpökapasiteetti ja lämpölaajenemiskerroin. Hydraulisiin ominaisuuksiin liittyvät tulokset käsittelevät puolestaan hydraulista johtavuutta sekä vedenpidätys-käyrää, ja tutkittuihin mekaanisiin ominaisuuksiin sisältyvät lujuus, muodonmuutos,

reologiset ja paisuntaominaisuudet. Raportissa kokeellisia tuloksia seuraavat sekä yksittäisiin tutkimuksiin että Bentomap-tietokantaan laajemmin pohjautuvat johtopäätökset. Raportissa on esitetty myös arviointia, kattavuutta, rajoituksia ja mahdollisia puutteita osaamisessa sekä välitetty laajempi kuva bentoniitin ja täyteaineiden tutkimuksen kansallisesta ja kansainvälisestä osaamistasosta.

Jotain yleisiä johtopäätöksiä voidaan vetää Bentomap-tietokannan ja yhteenvetoraportin kartoittamasta osaamisesta. Puskuri- ja täyteainemateriaaleista mm. MX-80- ja FEBEX-bentoniittia sekä Friedland-savea on tutkittu erityisen kattavasti viime vuosina. Artikkeleissa ja raporteissa on tarkasteltu kokeellisesti mekaanisia ja hydraulisia parametreja yleisesti ottaen laajemmin ja perinpohjaisemmin kuin termisiä parametreja. Siitä huolimatta tietoa lämpötilan ja vesipitoisuuden vaikutuksista useisiin bentoniittien ominaisuuksiin on melko hyvin saatavilla. Ydinjätteen loppusijoitustiloissa saattaa materiaalivalinnan kannalta olla huomionarvoista, että samoja soveltuvia mineralogisia perusominaisuuksia ja siten samankaltaisia sulkemisominaisuuksia saattaa esiintyä hyvin erilaista geologista alkuperää olevilla bentoniittimateriaaleilla. Suolapitoisuuden vaikutusta joihinkin tärkeisiin puskuri- ja täyteainemateriaalien ominaisuuksiin on kuvattu lähinnä pienemmille konsentraatioille kuin 3,5 % ja yhdyntyyppiselle suolalle (natrium- ja kalsiumkloridien sekoitus).

Yhteenvetoraportissa on kuvattu myös joitain aiheita, joita ei ole joko tutkittu kovin laajasti tai joiden katsotaan tarvitsevan enemmän tutkimusta Bentomap-tietokannan mukaisen nykytietämyksen mukaan. Näihin aiheisiin lukeutuvat bentoniitin pitkäaikaisominaisuudet, ajan vaikutus sulkeutumiseen ja turvallisuustoimintoihin, saturaation eteneminen puskurissa ja tunnelin täyteaineessa, kanavoituminen ja eroosio ja korkeampien suolapitoisuuksien vaikutus sekä vaikutukset, jotka aiheutuvat koeskaalasta ja pienen mittakaavan kokeiden skaalaamisesta täyteen mittakaavaan.

Viitteet

Rautioaho, E. & Korkiala-Tanttu, L. 2009. Bentomap: Survey of bentonite and tunnel backfill knowledge. State-of-the-art, VTT Working Papers 133, VTT Technical Research Centre of Finland, Espoo, Finland <http://www.vtt.fi/inf/pdf/workingpapers/2009/W133.pdf>

Rautioaho, E., Korkiala-Tanttu, L., Pyy, E., Laaksonen, R. 2009. Bentomap database, VTT Technical Research Centre of Finland, Espoo, Finland, http://www.vtt.fi/files/download/bentomap/bentomap_kyt_references_v1_3.xls

8.11 Lähialueen termo-hydro-kemiallinen mallinnus (LÄHITHC)

Bentoniittipuskurin kemiallinen jääkausieroosio (GLASE)

Markus Olin, VTT

JOHDANTO

Tiivistelmässä esitetään kahden hankkeen yhteenveto. Vuosina 2007–2008 käynnissä oli Lähialueen termo-hydro-kemiallinen mallinnus (LÄHITHC) ja vuonna 2008 Bentoniittipuskurin jääkausieroosion mallinnus (GLASE).

Ydinjätteen loppusijoitustilan lähialueen kehityskulun määräytymisessä on ilmiöiden välisillä kytkennöillä keskeinen sija. Tämä korostuu loppusijoitustilan sulkeamisen jälkeisenä suhteellisen lyhytkestoisena ajanjaksona, jolloin lämpötilan, pohjaveden virtauksen ja kemian gradientit sekä materiaalien mekaaniset vaikutukset ovat suurimmillaan. Tutkimus on kohdistunut termo-hydro-mekaanisten (THM) ilmiöiden ymmärtämiseen puristetun bentoniitin saturoitumisvaiheen kestoon liittyvän epävarmuuden vuoksi. Toisaalta lämpötilan, pohjaveden liikkeiden ja kemian kytkeväälle termo-hydro-kemialliselle (THC) mallinnukselle Suomessa oli ominaista sen tietotason sekä kehitystyön vaatimattomuus. Suomalaiset ydinjätehuollon toimijat olivatkin tunnistaneeet reaktiivisessa kulkeutumismallinnuksessa tärkeän kehitystarpeen.

Bentoniittipuskurin saturoitumiseen liittyvien epävarmuuksien lisäksi sen toimintakyvyn säilyminen on osoitettava myös odotettavissa olevista geokemiallisista muutoksista huolimatta. Termisen vaiheen aikana mahdollinen bentoniitin mineraloginen muuntuminen kiihtyy kohonneen lämpötilan vaikutuksesta. Bentoniitin pitkäaikaistoimintakyvyn kannalta olisi siten ensiarvoisen tärkeää tunnistaa mekanismit, jotka voivat johtaa sen heikentymiseen.

Eräs huoli liittyy liukoisien silikan kerääntymiseen bentoniittiin, mikä voi saostuessaan aiheuttaa materiaalin sementoitumista. Tällöin bentoniitti haurastuu ja menettää sille ominaiset plastiset ja paisumisominaisuutensa. Sementin rapautumistuotteet voivat aiheuttaa ongelmia myös bentoniitin pitkäaikaispysyvyyden kannalta liuottaen sen toimintakyvyn kannalta olennaista montmorilloniittimineraalia, josta bentoniitin edulliset päästöesteominaisuudet ovat pääosin peräisin.

Myös loppusijoitustilaa ympäröivän kallioperän pohjaveden koostumuksen vaikutus bentoniitin mineralogiseen muuntumiseen tulisi tuntea nykyistä tarkemmin. Esimerkkinä tästä on kuparikapselin korroosiokestävyyden kannalta tärkeiden aineiden, kuten sulfaatin, joka mikrobitoiminnan vaikutuksesta voi muuttua kuparia syövyttävään muotoon, saostuminen bentoniitin kuumaan päähän.

LÄHITHC-hankkeen tavoitteena oli luoda aiempaa selkeämpi käsitys puskuri-bentoniitin kemiallisesta muuttumisesta (esim. mineraloginen muuntuminen,

huokosveden kemia) ja toimintakyvystä loppusijoitustilan sulkemisen jälkeisessä termisessä vaiheessa vaihtelevissa pohjavesiolosuhteissa. Pyrkimyksenä oli kehittää laskentamalli, joka saumattomasti yhdistää kemialliset olosuhdemuutokset loppusijoituskapselin lämmöntuottoon ja bentoniitin saturoitumiseen. Malliparametrit pyrittiin tarkistamaan ja asettamaan käyttäen hyväksi aiheesta julkaistuja tutkimuksia. Vuosien 2006 ja 2007 aikana luotuja valmiuksia hyväksikäyttäen oli pitemmällä tähtäimellä tavoitteena luoda mahdollisimman todenmukainen koko loppusijoitustilan lähialueen termiset, hydrauliset ja kemialliset ilmiöt integroiva mallikuvaus.

GLASE-hankkeen tavoitteena oli luoda aiempaa selkeämpi käsitys puskuribentoniitin kemiallisesta muuttumisesta ja siitä seuraavasta eroosiosta jääkauden aikaisissa vaihtelevissa pohjavesiolosuhteissa; erityisesti laimean pohjaveden taipumuksesta muuntaa bentoniittia kolloidaaliseksi. Pyrkimyksenä oli kehittää laskentamalli, joka mahdollisimman saumattomasti yhdistää fysikaalis-kemialliset olosuhdemuutokset bentoniitin muuttuessa. Malliparametrit pyrittiin tarkistamaan ja asettamaan käyttäen hyväksi aiheesta julkaistuja tutkimuksia.

MENETELMÄT

Mallinnustyökaluna käytettiin THC-ilmiöt yhdistävää kaupallista PetraSim-ohjelmiä, jossa graafinen käyttöliittymä ohjaa TOUGH2- ja TOUGHREACT-laskentamoduuleja.

Ensi vaiheessa bentoniitin saturoitumiseen ja kemialliseen käyttäytymiseen liittyvät malliparametrit pyrittiin asettamaan käyttäen hyväksi julkaistuja tutkimuksia, joissa alkutilassaan osittain saturoituneen bentoniittipuskurin yli on asetettu vakio-lämpötilaero. Bentoniitin kylmää päätä on kyllästännyt tunnetun kemiallisen koostumuksen omaava vesiliuos. Tyypillistä asiaankuuluville kokeellisille systeemeille on niiden suhteellisen lyhyt ajallinen kesto. Mallin kehityksen tässä vaiheessa pyrittiin olemaan aktiivisesti yhteydessä THC(M)-mallinkehitystä harjoittavien kansallisten ja kansainvälisten tahojen kanssa.

Seuraavaksi asetettuja malliparametrejä käyttäen pyrittiin loppusijoitustilan bentoniittipuskurin THC-käyttäytyminen mallintamaan koko termisen vaiheen keston yli. Tällöin bentoniitin kuumen pään lämpötilareunaehdona mallissa käytetään loppusijoituskapselin todellista, ajallisesti alenevaa lämpötilaa. Mallilaskujen tuloksena saadaan bentoniitin lämpötilan, saturoitumisasteen ja kemiallisten ominaisuuksien (esim. mineralogia, liukoiset aineet) ajallinen ja paikallinen jakauma.

TULOKSET

GLASE-hankkeessa tehtiin kattava englanninkielinen kirjallisuustutkimus glasialieroosiosta (T)HC-mallinnuksen näkökulmasta (Liukkonen 2008). Kirjallisuusselvityksen pohjalta on aloitettu jääkausieroosion mallinnus, jonka tulokset julkaistiin TOUGH-kokouksessa San Franciscossa suullisessa esityksessä syksyllä 2009.

LÄHITHC-hankkeessa aloitettiin mallien (EQ3/6, PetraSim ja COMSOL Multiphysics) käytön opiskelulla. Aku Itälä kävi PetraSimin (ja TOUGH ja TOUGHREACT)

käyttäjäkurssin lokakuussa USA:ssa. Projektissa valmisteltiin myös käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen toimintakykyanalyysiä tukevaa mallinnusta. Tässä tarkoituksessa perehdyttiin COMSOL Multiphysics koodin käytettävyyteen ja aiheesta laadittiin VTT:llä yhteispaperi COMSOL konferenssiin 4.-6.10.2008. Yhteispaperin ansiosta VTT:llä järjestettiin COMSOL-kurssi ydinjätehuollon aihepiiristä 4.-5.2.2009.

Projektissa käynnistyi Aku Itälän diplomityön tekeminen bentoniitin THC-mallinnuksesta. Diplomityö oli mallinnuspainotteinen, joten mallinnettavaksi aineistoksi tarvittiin konkreettinen koeaineisto. Hankkeessa neuvoteltiin Ruotsissa Äspön kalliolaboratoriossa menossa olevan LOT-kokeen (Long Term Test of Buffer Material) mittaustilanteen käyttämisestä diplomityössä. Suomessa LOT-työhön on osallistuttu perinteisesti Posivan rahoituksella, Ruotsissa työstä vastaavat SKB ja Clay Technology. Kaikki osapuolet suhtautuivat asiaan myönteisesti ja lupa aineiston käyttämiseen saatiin.

JOHTOPÄÄTÖKSET JA TULOSTEN HYÖDYNNETTÄVYYS

Reaktiivisella kulkeutumismallinnuksella voidaan nykyistä yhtenäisemmin arvioida vaihtelevista termo-hydro-(geo)kemiallisista olosuhteista aiheutuvia loppusijoitustilan lähialueen ilmiöitä sekä niiden vaikutuksia bentoniittipuskurin toimintakykyyn ja viime kädessä koko loppusijoituksen pitkäaikaisturvallisuuteen. Olosuhdemuutokset voidaan ulottaa kattamaan jääkausivaihteluista aiheutuvan kallioperässä virtaavan ioniköyhän ja mahdollisesti happipitoisen jäätikön sulamisveden vaikutus normaalisti hapettomaan loppusijoitustilaan.

Työ loi uutta osaamista ja kasvatti nuorta tutkijasukupolvea Suomen ydinjätehuollon tarpeisiin. Sekä viranomaisia että luvanhakijoita hyödyttävässä työssä luodut valmiudet palvelevat laajemmin jatkohankkeissa suoritettavaa pitkäjänteistä tutkimusta, jossa pyritään luomaan koko loppusijoitustilan lähialueen kytketyt THC-ilmiöt mahdollisimman todenmukaisesti integroiva mallikuvaus.

Projektin tulokset olivat välittömästi hyödynnettävissä osana loppusijoitustilan toimintakykyanalyysiä. Projektissa saavutettavat valmiudet luovat edellytyksiä kokeellisen ja mallinnustyön saumattomampaan yhdistämiseen ja ovat sellaisenaan käytettävissä aiempaa haastavampien THC-ongelmien ratkaisemiseen. Valmiudet palvelevat laajemmin KYT:n jatkohankkeisiin kaavailtua todenmukaiseen loppusijoitustilan lähialueen integroituun termo-hydro-kemialliseen mallikuvaukseen tähtäävää tutkimusta.

Viitteet

Liukkonen M. 2008. Literature study of the glacial erosion of the bentonite buffer - Theoretical background for modelling. 33 p., VTT-R-11267-08.

8.12 Bentoniittipuskurin kytketty käyttäytyminen (PUSKURI)

Markus Olin, VTT

JOHDANTO

Kiinnostus bentoniittipuskurin mallinnukseen on ollut kasvussa viime vuosina Suomessa. Alalle on tullut useita uusia nuoria tutkijoita, jotka ovat lähes poikkeuksetta olleet joko juuri maisteritason tutkinnon suorittaneita tai sitten ovat tehneet opinäytetyönsä erilaisissa bentoniittihankkeissa. Useimmilla heistä on nyt käynnissä jatko-opinnot.

KYT2010-ohjelmassa oli käynnissä joukko bentoniittiaiheisia hankkeita, joista laajin on ollut VTT:n, Jyväskylän yliopiston ja Numerola Oy:n yhteishanke Bentoniittipuskurin kytketty käyttäytyminen (PUSKURI), jota edelsivät mm. hankkeet: Reaktiivinen kulkeutumismallinnus loppusijoitusolosuhteissa (REKU, VTT, 2006); Lähialueen termo-hydro-kemiallinen mallinnus (LÄHITHC, VTT, 2007–2008), Bentoniittipuskurin kemiallinen jääkausieroosio (GLASE, VTT, 2008) ja Bentoniittipuskurin toimintakyvyn mallinnus ja simulointi (Jyväskylän yliopisto, 2007–2008).

PUSKURIIN osallistui lisäksi GTK ja Aalto-yliopisto. PUSKURI-hankkeen koordinaattorina toimi Kari Rasilainen (VTT) ja tieteellisestä koordinoinnista vastasi Markus Olin (VTT). Jyväskylän yliopiston osuudesta vastuussa oli Markku Kataja, Numerola Oy:n osuudesta vastasi Antti Niemistö, GTK:n osuudesta Lasse Ahonen ja Aalto-yliopiston osuudesta Rolf Stenberg.

PUSKURI-hankkeessa oli puhtaasti tieteellis-teknisten tavoitteiden lisäksi tavoitteena laatia tutkimussuunnitelma bentoniitin tutkimisesta lähivuosina. Sen laatimiseen osallistuivat PUSKURI-hankkeen osapuolten lisäksi Emmi Myllykylä ja Merja Tanhua-Tyrkkö (montmorilloniitin liukeneminen), Pirkko Hölttä (kolloidit) ja Merja Itävaara (mikrobit). Laadittu suunnitelma raportoidaan erikseen englanninkielisenä.

MENETELMÄT

PUSKURI-hankkeessa tehtiin sekä kokeellista työtä että mallinnusta. Kokeellisessa tutkimuksessa Jyväskylän yliopistossa pyrittiin määrittämään bentoniitin mekaanisia ominaisuuksia ja erityisesti soveltamaan tomografisia menetelmiä.

Mallinnuksessa tehtiin sekä teorian kehittämistyötä että numeerista mallinnusta erilaisilla työkaluilla. Teoreettista mallia laadittiin Petri Jussilan THM-mallin pohjalta isoille muodonmuutoksille ja kastumisen, diffuusion sekä kationinvaihdon kytkemiseksi mukaan. Lisäksi kehitettiin teoriaa veden kulkeutumiselle bentoniitissa sen kastuessa. Numeerista mallinnusta tehtiin usealla eri työkalulla kuten TOUGH-REACTilla, Numertimella ja COMSOL Multiphysics -ohjelmistolla. Numeerista mallinnusta tehtiin myös kokeellisen tomografiadatan tulkintaan. Numertimeen implementoitiin Jussilan malli laajennuksineen ja COMSOLiin Jussilan malli sellaisenaan.

Pilot- ja täyden mittakaavan THC-mallinnusta tehtiin TOUGHREACTilla ja COMSOLilla. Lisäksi tehtiin numeriiikan kehitystyötä erityisesti Aalto-yliopistossa.

TULOKSET

Tuloksia PUSKURI-hankkeessa saavutettiin runsaasti ja tähän tiivistelmään on kerätty vain esimerkkejä eri osa-alueista. Tarkemmin tuloksista kerrotaan PUSKURI-hankkeen loppuraportissa (Olin et al. 2011).

THC-mallinnuksessa Aku Itälä teki diplomityön ja sen pohjalta joukon seminaari-riesiintymisiä ja tieteellisiä julkaisuja. Itälän työssä onnistuttiin mallintamaan LOT-kokeen tuloksia menestyksellä. Lisäksi työn tuloksena saatiin selkeä tilanneanalyysi kehittämisehdotuksineen bentoniitin THC-mallinnuksesta.

Jarmo Lehtikainen osallistui kutsuttuna esitelmäsihtijänä Japanin Atomic Energy Society'n syyskokoukseen Sapporossa 15.-17.9.2010 otsikolla "Research on Bentonite Chemistry for Spent-Fuel Disposal in Finland". Niin ikään kutsuttuna esitelmäsihtijänä hän piti esityksen bentoniitti-workshopissa Hokkaidon yliopistossa 18.9.2010 otsikolla "Diffusion model for ions from the viewpoint of the EDL theory".

VTT ja Numerola laativat yhdessä kastumisen, diffuusion ja kationinvaihdon kytkävän mallin, jota testattiin Numertimella, COMSOLilla ja TOUGHREACTilla. Vertailusta pidettiin suullinen esitys COMSOL-kokouksessa 17.-19.11.2010 Pariisissa ja laadittiin julkaisu kokousjulkaisuun.

Petri Jussilan väitöskirjassaan laatima THM-malli implementoitiin COMSOLille ja pidettiin suullinen esitys COMSOL-kokouksessa 17.-19.11.2010 Pariisissa ja laadittiin julkaisu kokousjulkaisuun.

Hankkeen aikana aloitettiin keskustelu Merja Itävaaran (VTT) kanssa mahdollisesta mikrobitoiminnan mallinnuksesta.

Geologian tutkimuskeskuksessa suunniteltiin bentoniittien mineralogista karakterisointia eri menetelmillä. PUSKURI-hankkeen puitteissa tehtiin montmorillonittista yksityiskohtainen 3D-kiderakennemalli, jonka avulla voidaan havainnollistaa monia bentoniitin käyttäytymiseen liittyviä prosesseja (ks. Olin et al. 2011).

Aalto-yliopiston Matematiikan laitoksella tutkittiin maamekaniikan yhtälöiden numerikkaa erityisesti ns. Brinkmanin yhtälöille sekä massaa säilyttävälle FE-menetelmille.

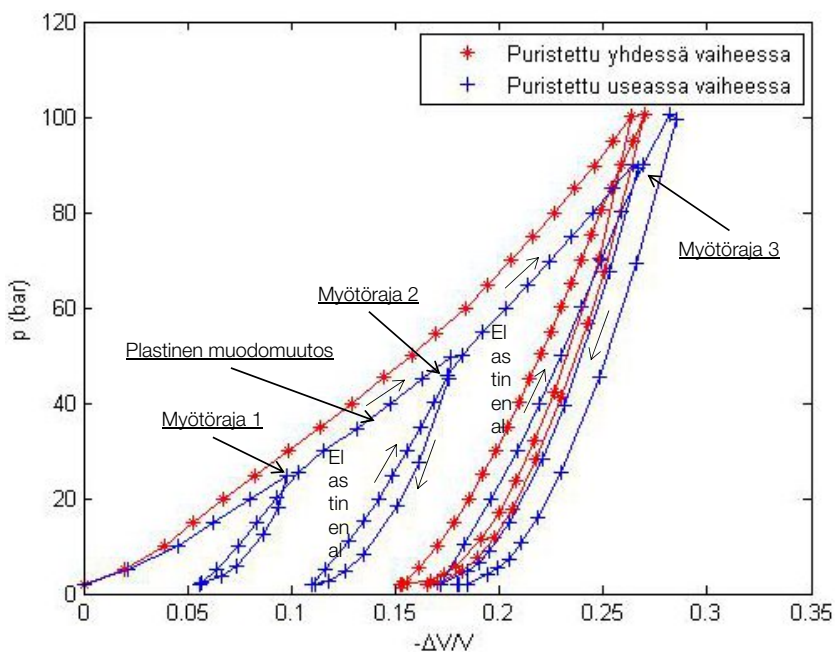
THM-mallinnus osaprojektin yleisenä tavoitteena oli sisällyttää jo olemassa olevaan THM-malliin mahdollisuus kuvata suuria muodonmuutoksia sekä käynnistää bentoniitin materiaali- ja kulkeutumisominaisuuksien kokeellinen tutkimus hyödyntäen mm. röntgenmikrotomografiaa ja 3D kuva-analyysiä.

Petri Jussilan THM-malliin pystyttiin lisäämään mahdollisuus suurten muodonmuutosten kuvaamiseen siten, että teorian alkuperäinen vapaaenergiaformalismiin perustuva rakenne voidaan säilyttää. Kehitetty malli perustuu kovarianttiin spatiaaliseen formalismiin, jossa muodonmuutosmitta määritellään metrisen tensorin avulla käyttäen erityisesti sen esitystä materiaalin mukana kulkevassa koordinaatistossa. Osoittautui, että teorian avulla voidaan myös yhdistää suurten

muodonmuutosten ns. hypoelastinen ja hyperelastinen teoria. Tämä puolestaan näyttäisi antavan ainakin yhden tavan sisällyttää teoriaan myös äärelliset plastiiset muodonmuutokset.

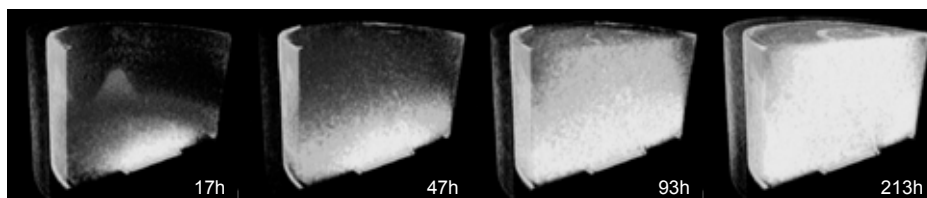
Bentoniitin elastoplastisten ominaisuuksien mittaamiseksi kehitettiin kokeellinen menetelmä, jossa kumilla päällystettyä bentoniittinäytettä puristetaan kokoon paineistetussa vesikammiossa. Näiden kokeiden tuloksena saadaan bentoniitin elastinen ja plastinen käyttäytyminen hydrostaattisessa puristuksessa. Laitteistoa modifioitiin edelleen siten, että sillä voidaan määrittää vastaava käyttäytyminen myös yksiulotteisessa puristustilanteessa. Molemmilla menetelmillä voidaan tutkia kompaktoidun bentoniitin käyttäytymistä sekä elastisella että plastisella alueella. Kuvassa 17 on esitetty esimerkkitulos bentoniitin hydrostaattisesta puristuskokeesta n. 10 MPa maksimipaineeseen saakka.

Kuva 17. Kompaktoidun bentoniitin hydrostaattinen puristuskäyttäytyminen kahdelle samanlaiselle näytteelle. Toisessa tapauksessa puristus on tehty yhdessä vaiheessa ja toisessa syklistä useammassa vaiheessa. Tuloksista nähdään mm. tyypillinen myötörajan siirtyminen plastisessa muodonmuutoksessa (härkeneminen) sekä käyttäytyminen elastisella alueella.



Röntgentomografiaan perustuvalla kokeellisella menetelmällä selvitettiin myös veden kulkeutumista kompaktoidussa bentoniitissa. Kuvassa 18 on esitetty tomografiakuvien avulla analysoitu kastunut alue bentoniittinäytteessä eri ajanhetkillä. Tulokset viittaavat siihen, että diffuusio dominoi veden kulkeutumista bentoniitissa.

Kuva 18. Röntgentomografiakuvasarja veden imeytymisestä puhdistettuun kompaktoituun bentoniittiin. Kuvissa on esitetty halkileikkaus vakiotilavuuteen suljetusta sylinterimäisestä näytteestä, jota kastellaan sen alapinnan kanssa kosketuksessa olevan huokoisen materiaalin läpi. Vaalea värisävy ilmaisee kastumisen seurauksena kasvannutta tiheyttä.



JOHTOPÄÄTÖKSET JA HYÖDYNTÄMINEN

Bentoniittia on tutkittu pitkään, mutta se on edelleen vaikeasti hallittava materiaali, koska materiaalin rakenne on mutkikas ja lisäksi ominaisuudet tulee hallita monenlaisissa olosuhteissa ja mittakaavoissa.

Edistystä on kuitenkin tapahtunut koko ajan ja tarjolla olevilla uusilla kokeellisilla menetelmillä ja mallinnustavoilla moniin ongelmakohtiin saadaan vähintään uutta tietoa, jos eivät sinällään kokonaan ratkea. Uusia kokeellisia menetelmiä PUSKURI-hankkeessa ovat olleet röntgentomografia, jonka toivotaan tulevaisuudessa ulottuvan aina 100 nanometrin luokkaa oleviin rakenteisiin asti, ja erilaisten röntgendiffraktiomenetelmien soveltamisen aloittaminen; diffraktiolla voidaan havaita molekyyli-tason muutoksia rakenteessa.

Uusia mallinnustapoja, joissa pyritään yhdistämään THM- ja TMC-mallinnusta, asennettiin uudentyyppisille laskenta-alustoille kuten COMSOL ja Numerrin. Lisäksi laskentaa jatkettiin TOUGH-perheen tuotteilla. Yhteistyötä laajennettiin jo PUSKURI-hankkeessa ja vuonna 2011 alkavassa BOA-hankkeessa yhteistyö on vielä sitäkin laajempaa.

Viitteet

Olin, M., Rasilainen, K., Itälä, A., Pulkkanen, V.-M., Matuszewicz, M., Tanhua-Tyrkkö, M., Muurinen, A., Ahonen, L., Kataja, M., Kekäläinen, P., Niemistö, A., Laitinen, M., 2011. Bentoniittipuskurin kytketty käyttäytyminen. PUSKURI-hankkeen tuloksia, julkaistaan VTT Research Notes -sarjassa.

8.13 Montmorilloniitin liukeneminen pohjavesisimulanteissa

Emmi Myllykylä, VTT

Bentoniitin käyttäytymisen tunteminen mahdollisesti muuttuvissa pohjavesiolosuhteissa on merkittävä osa ydinjätteiden loppusijoitustilan turvallisuuden arvioimista. Bentoniitti koostuu pääosin smektiitteihin kuuluvasta montmorilloniitti-mineraalista, jonka kemiallinen kaava kirjoitetaan usein muodossa: $(\text{Ca}_{0.06}\text{Na}_{0.16}\text{K}_{0.025})(\text{Al}_{1.51}\text{Fe}_{0.205}\text{Mn}_{0.005}\text{Mg}_{0.28}\text{Ti}_{0.01})(\text{Si}_{3.99}\text{Al}_{0.01})\text{O}_{10}(\text{OH})_2$. Loppusijoituksen kannalta bentoniitin hyvät ominaisuudet, kuten suuri paisumiskyky ja kationinvaihtokapasiteetti, perustuvat pitkälti montmorilloniitin ominaisuuksiin. Tästä syystä montmorilloniitin mahdollinen muuntuminen loppusijoitustilan olosuhteissa tulisi ymmärtää mahdollisimman hyvin. Useimmissa tähänastisissa kokeellisissa prosessitutkimuksissa on tutkittu bentoniittia, joka sisältää myös sivumineraaleja (mm. kvartsia, maasälpää ja kalsiittia). Sivumineraalien läsnäolo kokeissa kuitenkin vaikeuttaa johtopäätösten tekoa analyysitulosten pohjalta.

Myös mallinnuksen kannalta olisi tärkeää saada liuosfaasista sellaisia analyysituloksia, joissa olisi mahdollisimman vähän virhemarginaalia ja tulkinnan varaa. Tähänastisissa tutkimuksista saaduista uutis- ja eluutiovesissä liuostausta on useimmiten kemialliselta koostumukseltaan liian monimutkainen. Tämän lisäksi esim. alumiinin ja raudan pitoisuudet ovat olleet niin matalia, ettei niiden pitoisuuksia ole saatu kyseisistä vesistä luotettavasti määritettyä (pitoisuudet alle näytteiden määrittysrajojen). Alumiini, rauta, magnesium ja pii ovat kiinteä osa montmorilloniitin kiderakennetta ja niiden esiintyminen ja pitoisuudet liuoksesta kertovat montmorilloniitin liukenemisestä ja käyttäytymisestä.

Tämän hankkeen päätarkoituksena on saavuttaa nykyistä parempi käsitys montmorilloniitin (bentoniitin) ja pohjaveden välisistä vuorovaikutuksista sekä tuloksena syntyvien muuntumistuotteiden ja sekundaarimineraalien luonteesta. Työssä yhdistetään kokeellinen tutkimus ja mallinnus. Kokeellisella tutkimuksella saatuja tuloksia verrataan malleihin ja malleja pyritään kehittämään eteenpäin. Hankkeen aikana kehitetään myös luotettavat analyysimenetelmät, joilla voidaan määrittää matalat alkuainepitoisuudet (Al, Fe, Si, Mg) yksinkertaistetuista pohjavesisimulanteista. Liuosnäytteet analysoidaan korkean massaresoluution induktiivisesti kytketyllä plasma massaspektrometrillä (HR-ICP-MS). Hanke on kokonaisuudessaan suunniteltu kolmevuotiseksi ja sen ensimmäinen osio toteutettiin vuonna 2010. Ensimmäisessä osiossa tutkittiin Na-montmorilloniitin liukenemistä ja jatkossa on tarkoitus tehdä vastaavat kokeet Ca-montmorilloniitille.

Tutkimus aloitettiin kirjallisuuskatsauksella. Tarkoituksena oli kerätä taustatietoa liukenemiseen vaikuttavista tekijöistä ja samankaltaisista montmorilloniitin liukoisuuskokeista. Varsinaiset kokeet suunniteltiin kirjallisuuskatsauksen ja esimallinnusten pohjalta.

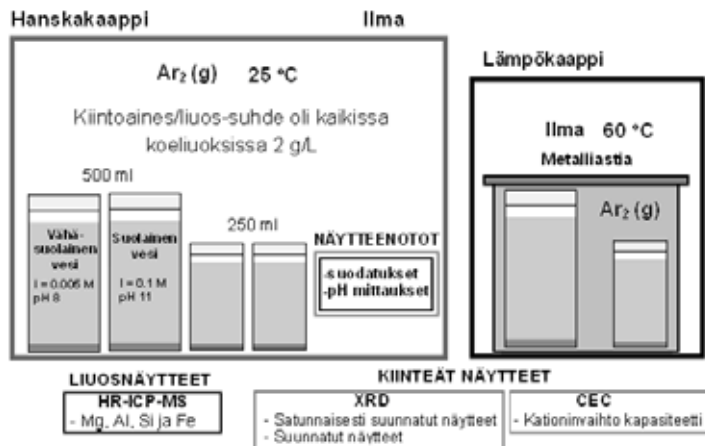
Ennen kokeita laskettiin simulanttivesien tasapainot ja montmorilloniitista liukenevien alkuaineiden vapautumista ajan ja pH:n funktiona. Simulanttivesien tasapainot laskettiin käyttämällä EQ3/6 geokemiallista tasapainomallia. Simulanttivesien tasapainojen laskemisen avulla taattiin (ainakin teoreettisesti) se, että itse simulanttivesistä ei saostu mitään. Mallinnettujen simulanttivesien koostumukset ovat esitettyinä taulukossa 5.

Taulukko 5. Kemiallisen tasapainomallin avulla (EQ3/6) lasketut koostumukset kokeissa käytettäville vesille.

	Vähäsuolainen vesi mmol/L	Suolainen vesi mmol/L
Na ⁺	3,23	40,38
Ca ²⁺	0,36	20,41
K ⁺	0,28	0,17
Cl ⁻	3,66	79,70
SO ₄ ²⁻	0,28	-
Br ⁻	-	0,24
pH	8	11
Ionivahvuus	0,005	0,1

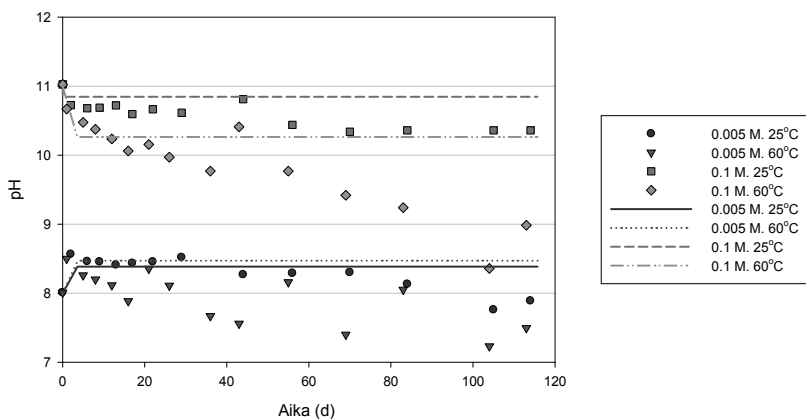
Kokeet tehtiin puhdistetulla Swy-2 montmorilloniitilla kahdessa erityyppisessä vedessä sekä 25 °C että 60 °C lämpötilassa anaerobisissa olosuhteissa (kuva 1). Vähäsuolaisen veden pH oli 8 ja kokonaisonikonsentraatio 0.005 M. Suolaisen veden pH oli 11 ja I = 0.1 M. Kiinteäaine/liuos-suhde oli kaikissa kokeissa 2 g/L. Kokeet tehtiin kahtena erilaisena koe-eräsarjana. Toisessa sarjassa koevedet vaihdettiin tuoreisiin muutaman viikon välein ja toisessa montmorilloniitin annettiin tasapainottua samassa vedessä koko kokeen ajan (144 päivää). Kokeet ja niistä tehdyt analyysit on esitetty kuvassa 19.

Kuva 19. Koejärjestely hanskakaapissa (vasemmalla) ja lämpökaapissa (oikealla) sekä kuvaukset tehdyistä analyyseistä.



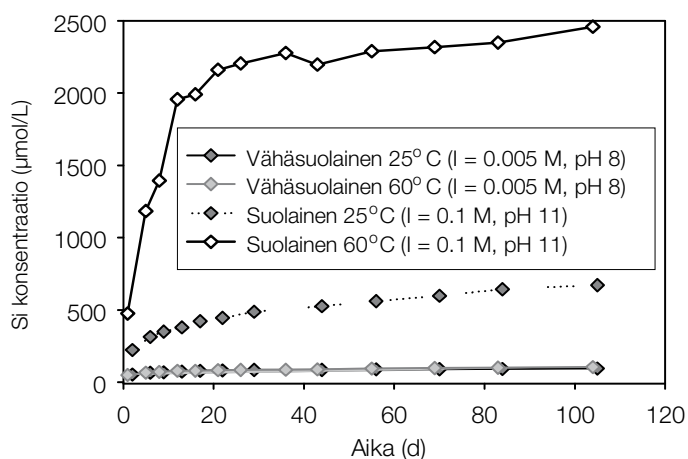
Montmorilloniitin liukenemisnopeutta (ajan ja pH:n funktiona) arvioitiin kirjallisuudesta löytyvän datan avulla ja sen perusteella suunniteltiin kokeellisen työn näytteenottoaikataulu. Tämän lisäksi kokeita on esimallinnettu TOUGHREACT:lla ottaen huomioon liuosten suolaisuus. TOUGHREACT:lla saatuja mallinnustuloksia pH:lle on verrattu kokeellisiin tuloksiin (Kuva 20). Kuvasta nähdään, että aluksi kokeelliset sekä mallinnustulokset vastaavat hyvin toisiaan (ensimmäiset noin 30 päivää) mutta ajan kuluessa mallinnus ei enää vastaa kokeellista dataa. Tämä osoittaa, että mallinnusta on tarve kehittää tulevaisuudessa. Malleja pyritään jatkossa tarkentamaan kokeellisen datan pohjalta.

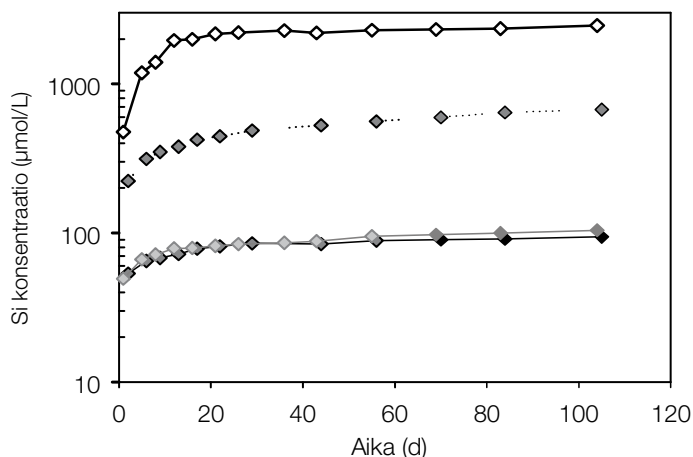
Kuva 20. Kokeelliset sekä mallinnustulokset pH:lle kokeista, joissa vettä ei vaihdettu vaan tähdättiin tasapainon saavuttamiseen. Kokeelliset tulokset on merkattu pisteillä ja mallinnustulokset viivoilla.



Kokeellisessa osiossa ultrasuodatettujen (10 kD = 1 nm) liuosnäytteiden alkuainepitoisuudet (Al, Mg, Si ja Fe) saatiin pääosin määritettyä. Alumiini, magnesium ja rauta pitoisuuksissa ei tapahtunut kovinkaan suuria muutoksia kokeiden aikana verrattuna piin konsentraatioon. Näytteistä mitatut Al-, Mg- ja Fe-pitoisuudet olivat välillä (0.01–2 $\mu\text{mol/L}$). Pitoisuuksissa ei voitu havaita selkeää kasvua. Tuloksissa alumiinin ja raudan konsentraatiot heilahtelivat ajan funktiona. Magnesiumin tapauksessa konsentraatiot olivat alussa jopa suurempia kuin lopussa, paitsi suolaisen veden tapauksessa (60 °C), jossa magnesiumin määrä ensin väheni ja sitten alkoi kohota uudelleen. Tulokset sopivat kirjallisuudesta löydettyyn havaintoon siitä, että varsinkin alumiini ja rauta osallistuvat tai sorboituvat muodostuviin sekundäärifaaseihin. Liuosten piikonsentraatiot olivat taas huomattavasti muita konsentraatioita suurempia, tästä syystä monialkuaineanalyyseissä piin pitoisuudet eivät mahtuneet kalibrintivälille. Piille saatuja ja tässä esitettyjä tuloksia voidaan pitää jonkinlaisina arvioina todellisista pitoisuuksista, mutta eksaktien tulosten saamiseksi liuosten Si-pitoisuus tulee vielä analysoida uudestaan laimennetummista liuksista. Kuvassa 21 on annettu alustavat Si-tulokset eri koeolosuhteissa. Kuvasta nähdään, että olosuhteilla on suuri, jopa kertaluokan vaikutus, piin liukenemiseen montmorillonitiimatriisista. Vähäsuolaisessa vedessä, lähellä neutraaleja olosuhteita (pH 8) lämpötilalla ei näyttäisi olevan suurtakaan merkitystä tetraedrikerroksen liukenemiseen (vrt. 25 ja 60 °C), kun taas korkeassa suolapitoisuudessa ja pH:ssa lämpötilallakin näyttää olevan merkittävä vaikutus liukenemisen määrään.

Kuva 21. Alustavat tulokset piille. Konsentraation kehittyminen eri koeolosuhteissa ajan funktiona (kokeet ilman veden vaihtoa). Tulokset on esitetty sekä lineaarisella (vasemmalla) että logaritmisella (oikealla) konsentraatioasteikolla.





Puhdistettu montmorilloniitti ja kokeissa liuotetut kiinteät montmorilloniittinäytteet analysoitiin XRD:lla (Röntgen diffraktiolla) ERM:ssä (Etudes Recherches Matériaux) Poitiersissa, Ranskassa. Varsinaisia mineraalimuutoksia ei havaittu (jokainen näyte sisälsi alumiinipitoista smektiittiä). Sen sijaan itse smektiitin rakenne (esim. pinoutuminen) muuntuu enemmän tai vähemmän riippuen koeolosuhteista. Mineraalianalyysissä havaittiin sekundaarisina mineraaleina haliittia (NaCl) sekä tridymiittiä (SiO_2). Haliittia saattoi syntyä simulanttivesien sisältämästä suolasta liuostasapainon muututtua tai näytepreparaatin valmistuksen yhteydessä. Mahdollisesti muodostunutta tridymiittiä havaittiin vain korkeammassa lämpötilassa ja suolapitoisuudessa.

Mitatuissa spektreissä pääpiikkien paikat vaihtelivat smektiitin interlamellaaritilan kationien ja vesikerrosten lukumäärän (0,1 tai 2) mukaan. Lähtöaineen interlamellaaritilan pääkationi natrium, näyttäisi kaikissa koeolosuhteissa korvautuvan jossain määrin kalsiumilla. Korvautuminen voitiin havaita suolaisissa vesistä otetuille näytteille, mutta myös vähäsuolaisissa vesissä, joissa kalsiumipitoisuus oli huomattavasti matalampi, näyttäisi tapahtuneen jonkin verran korvautumista. Vähäsuolaisen veden näytteiden XRD-spektreistä voitiin puolestaan havaita smektiittiapiikkien lisäksi sekakerrostuneille mineraaleille tyypillisiä piikkejä. Nämä piikit voisivat viitata joko satunnaisesti järjestyneeseen illiitti/smektiitti mineraaliin tai satunnaisesti järjestäytyneeseen rakenteeseen, jossa on sekä smektiittiä että romahtaneita mineraalikerroksia. Vaihtoehtoisesti interlamellaaritilan pienentyminen voisi viitata kerrosten liimaantumiseen esim. sementaation kautta. Tarkemman identifioinnin ja parempien johtopäätösten tekeminen edellyttää jatkotutkimuksia.

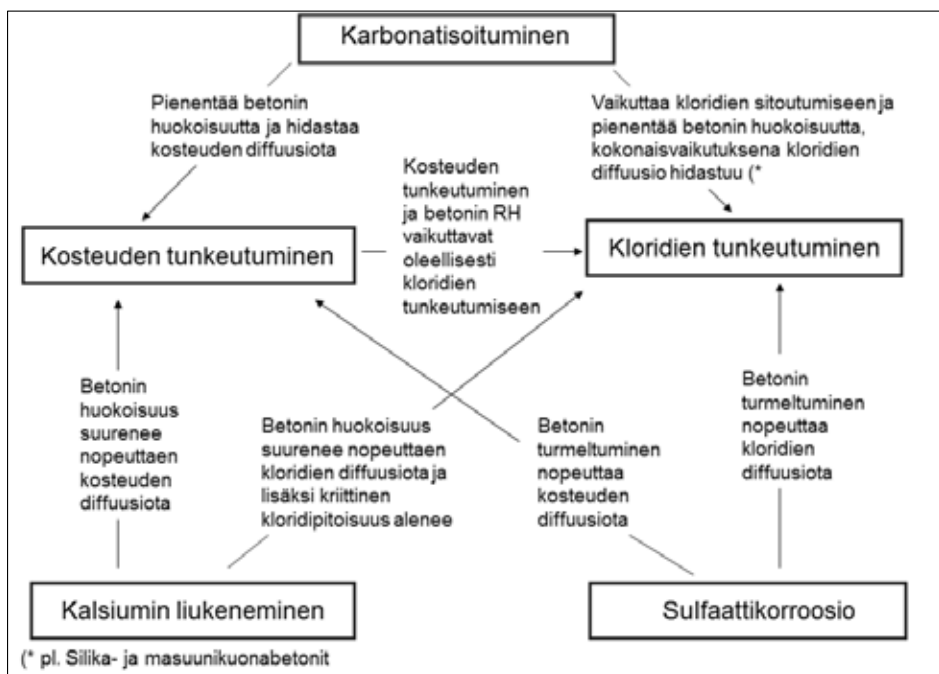
8.14 Kokonaismalli teräsbetonirakenteen ikääntymiselle voimalaitosjätteen loppusijoituksessa

Olli-Pekka Kari, Aalto-yliopisto

TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

Tutkimuksen pääasiallisena tuloksena oli teoreettinen malli, joka yhdistää betonin tärkeimmät ikääntymismekanismit loppusijoitusolosuhteissa. Matemaattinen malli perustuu ryhmään differentiaaliyhtälöitä, jotka ratkaistaan vaiheittain aika-askeleissa. Mallin numeerinen implementointi tehtiin elementtimenetelmällä soveltaen kaupallisesti saatavaa tietokoneohjelmistoa. Täten malli on julkisesti hyödynnettävissä teräsbetonien ikääntymismekanismien vuorovaikutusten simulointia varten. Mallin numeerinen implementointi tehtiin huomioiden erityisesti loppusijoitusolosuhteet. Tämä vaikutti malliin sisällytettyihin parametreihin. Mallissa tarkastellut ikääntymismekanismit olivat (kuva 22): ilmassa tapahtuva betonin karbonatisoituminen, kosteuden ja kloridien tunkeutuminen, sulfaattien ja magnesiumin aiheuttama betonin korroosio sekä sementtipastan liukeneminen pohjaveteen.

Kuva 22. Tärkeimmät ikääntymismekanismit ja niiden keskinäinen vuorovaikutus.



Mallia voidaan käyttää myös kuvaamaan yhden ikääntymismekanismin aiheuttamaa betonin vaurioitumista tyypillisellä tavanomaisen teräsbetonirakenteen käyttöiän ajanjaksolla. Lisäksi betonin muiden sideaineiden, tässä tapauksessa silikan ja masuunikuonan, vaikutukset sisältyivät malliin. Näin ollen tutkimuksen sivutuotteena saatiin koottua ja analysoitua viimeisin saatavissa oleva tieto aiheesta. Elementin implementointi on periaatteessa kolmiulotteinen, vaikka tehdyt analyysit olivatkin kaksiulotteisia keskittyen ensisijaisesti selvittämään eri ikääntymismekanismien vuorovaikutuksen tärkeyttä loppusijoitustiloissa.

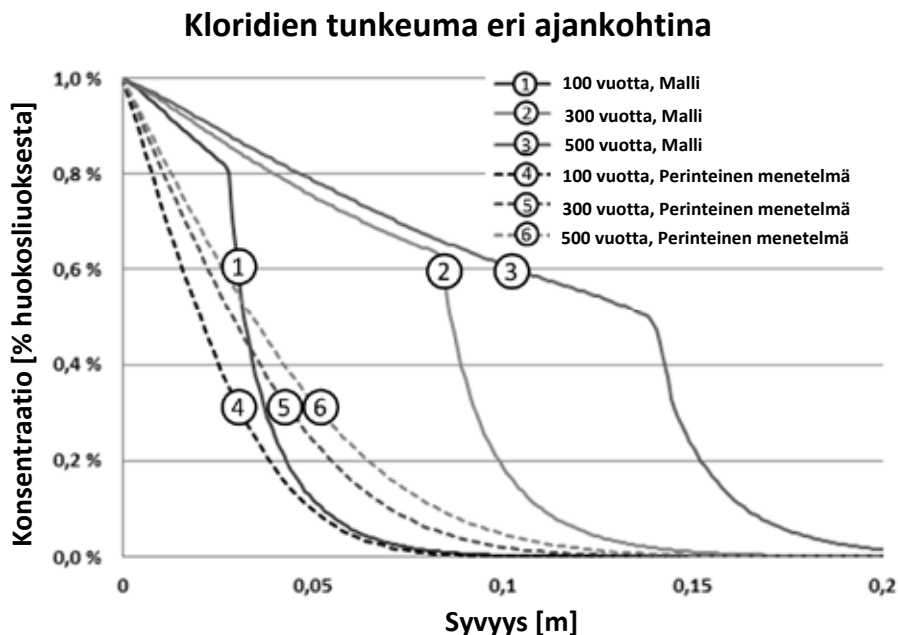
Saadut tulokset indikoivat selvästi, että vuorovaikutus eri ikääntymismekanismien välillä muuttaa kloridien tunkeutumisen luonnetta betonin pintakerroksessa. Tässä ensisijainen huolenaihe on kloridien tunkeutumiseen tarvittava aika raudoitteiden syvyydelle kloridien ollessa peräisin ulkoisesta lähteestä, kuten suolaisesta pohjavedestä. Kloridien tunkeutuminen ei noudata normaalia diffuusioryhtymää, mutta tulokset, jotka ovat peräisin esimerkiksi sementin liukenemisestä voidaan havaita lasketuista tunkeutumaprofileista. Tässä tapauksessa sementin liukeminen vaikuttaa betonimatriisin teholliseen diffuusiokertoimeen muuttamalla paikallista huokoisuutta. Tulokset korostivat myös sulfaattien merkityksen ymmärtämisen tärkeyttä kloridien tunkeutumiseen. Kirjallisuustarkastelun perusteella sulfaatteilla olisi kiihdyttävä vaikutus kloriditunkeumaan. Asiaa yritettiin selvittää kokeellisesti, mutta saadut tulokset eivät tukeneet sulfaattien kiihdyttävää vaikutusta. Kuitenkin sulfaattien vaikutus kloriditunkeumaan loppusijoitusolosuhteissa edellyttää jatkoselvityksiä, jotta voidaan varmistua sulfaattien roolista loppusijoitustilojen elinkaaren aikana. Tutkimuksessa saadut tulokset tukevat silikan tai masuunikuonan käyttöä loppusijoitustilojen betoneissa sideaineina tietyin osin ja alhaisella vesisementti-suhteella. Tehdyt simulaatiot indikoivat, että betoniraidoitteiden asennussyvyyden olisi oltava vähintään 50 mm tai enemmän, jotta voitaisiin suojata raudoitteita korroosiolta tyypillisissä suomalaisissa loppusijoitustiloissa. Tärkeä tutkimustulos oli myös ymmärtää betonimatriisin monimutkaisuus. Kehitetty malli kattaa yleisesti eri ikääntymismekanismit. Tavallaan se myös muuttaa luontaista tai aleatorista epävarmuutta episteemiseksi epävarmuudeksi. Malli itsessään ei lisää tietoa. Tämä myös havaittiin generoidessa tutkimustarpeita mallin validoimiseksi, joita ei olisi voitu ennustaa KYT2010-ohjelman alussa. Numeerisen implementoinnin deterministinen luonne on tarkoitus muuttaa sisältämään epävarmuuksia liittyen mallin parametreihin. Dominoivat parametrit ovat sovelluksesta riippuvaisia. Saadut tulokset indikoivat, että tärkein parametri tutkimustilojen betonirakenteissa on tehollinen huokoisuus. Tulevaisuudessa on tärkeää parantaa ymmärrystä betonin pintakerroksen käyttäytymiseen, mutta tilastolliset menetelmät ovat tarpeen malliin sisältyvien epävarmuuksien määrittämiseksi systemaattisesti. Raidoitteiden korroosion käynnistymiseen vaadittavan kloridipitoisuuden määrittäminen erityisesti loppusijoitustiloissa olisi hyödyllinen tieto rakenteen käyttöiän ennustamisen tarkkuuden parantamiseksi. Näiden dominoivien parametrien erottaminen määrittää jatkotutkimuksen fokuksen.

TULOSTEN MERKITYS YDINJÄTEHUOLLON TUTKIMUKSEN KANNALTA

Matala- ja keskiaktiiviset jätteet, jotka kertyvät ydinvoimaloiden toiminnan aikana loppusijoitetaan maanalaiseen luolastoon. Turvallisuus on varmistettu usein teknisin vapautumisestein, jotka ovat pääosin betonirakenteisia. YVL-ohjeen 8.1 vaatimuksen mukaan teknisten vapautumisesteiden on oltava käyttökelpoisia vähintään 500 vuotta loppusijoitustilojen sulkemisen jälkeen. Kokemusta teräsbetonirakenteista ei ole kuitenkaan kuin hieman alle 150 vuoden ajalta. Lisäksi olisi huomioitava, että loppusijoitustilojen rakenteet altistuvat aluksi betonin karbonatisoitumiselle, minkä jälkeen rakenteet joutuvat kosketuksiin suolaiseen pohjaveeteen. On tärkeää, että ympäristön muutos voidaan simuloida numeerisin menetelmin etukäteen.

Perinteisesti teräsbetonisten rakenteiden säilyvyys on matemaattisesti tutkittu tarkastelemalla yksittäisiä ikääntymisilmiöitä kerrallaan. Tässä projektissa saadut tulokset osoittavat selvästi tarvetta tutkia eri ikääntymismekanismien vuorovaikutusta, mikä saattaa tukea nykyistä paksumman suojabetonikerroksen käyttöä pääraudoitteille. Vuorovaikutuksen merkitys kloridien tunkeutumiseen voidaan nähdä kuvassa 23, jossa on esitetty kloridipitoisuudet määrättyinä ajankohtina esimerkitapauksessa käyttäen laskentaan tavanomaista yhden mekanismin menetelmää ja kehitettyä mallia. Mallin ennustama kloridien tunkeutuminen 500 vuoden aikana on huomattavasti haitallisempaa kuin perinteisen menetelmän ennustamana saatu tulos. Projekti myös paljasti hankaluudet soveltaa lyhytaikaisten kokeiden tuloksia tai käytäntöjä 500 vuoden ajanjaksolle. Kehitetty malli auttaa tunnistamaan ilmiöitä, jotka pienentävät todennäköisesti loppusijoitusrakenteiden käyttöikää, mikä edistää asianmukaisten suunnitteluratkaisujen löytämistä.

Kuva 23. Kloridien tunkeuma eri ajankohtina; Malli vs. perinteinen menetelmä.



Kehitetyn mallin käyttö ei ole rajoittunut pelkästään loppusijoitustilojen rakenteluihin, vaan sitä voidaan käyttää myös uusien tai olemassa olevien ydinvoimalaitosten suunnittelussa ja elinkaarien hallinnassa. Mallia voidaan lisäksi soveltaa tavanomaisiin betonirakenteisiin. Tulokset hyödyttävät myös muita vastaavia elinkaaren hallintaan liittyviä tutkimusprojekteja SAFIR-ohjelmassa. Ydinenergia-alan yritykset sekä turvallisuusanalyysijä tekevät konsulttiyritykset voivat hyödyntää tuloksia. Tutkimuksessa saatujen tulosten voidaan olettaa olevan hyödyllisiä myös valvonnasta vastaavalle viranomaistaholle (STUK).

Tutkimus suoritettiin Aalto-yliopistossa. Saadut tulokset sisällytettiin välittömästi osaksi opetusta, jossa mallin suurin merkitys on demonstroida vallitsevien ilmiöiden kompleksisuutta, jotka vaikuttavat rakenteiden käyttöiän arviointiin ja esittelee opiskelijoille mahdollisuuden simuloida näitä ilmiöitä numeerisesti.

TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

Malli rakennettiin soveltamalla erilaisia kirjallisuudesta löytyviä ikääntymisteorioita, joista lopuksi muodostettiin ryhmä differentiaaliyhtälöitä. Mallin ratkaisu perustui elementtimenetelmään, joka on painotetun jäännöksen sovellus. Simuloinnissa käytettiin kaupallisesti saatavaa ohjelmistoa ja PC:ta. Mallin validointi tehtiin käyttämällä osittain tässä tutkimuksessa tehtyjä kokeita.

Kokeelliseen tutkimukseen käytettiin tutkimuksessa seuraavia menetelmiä: kloridien titraus, mikroanalysaattori, sulfaattianalyysit gravimetrisellä menetelmällä, elohopeaporosimetri, ESEM yhdistettynä EDS-menetelmään sekä tavanomaiset karbonatisoitumismääritykset. Kolme erilaista betonityyppiä altistettiin kahdelle erilaiselle säilyvyysliukselle. Silikajauhetta (Micropoz) ja/tai masuunikuonaa (KJ400) käytettiin osittain sementin korvikkeena kahdessa betonityypissä, siinä missä yksi betonityyppi koostui pelkästään sulfaatinkestävästä Portlandsementistä. Säilyvyysliukset sisälsivät joko pelkästään klorideja tai klorideja yhdistettynä sulfaattiin ja magnesiumiin.

Loppusijoitustilojen säilyvyyden ennustaminen simuloitiin käyttäen konservatiivisia reuna-arvoja ja olosuhteita. Avonaisessa ilmatilassa ennen säilytystilojen sulkemista tapahtuvan betonin karbonatisoitumisen keston oletetaan olevan 50 vuotta. Tilojen sulkemisen jälkeisen ajan, jolloin rakenteet altistuvat pohjaveden rasituksille, oletetaan olevan 500 vuotta. Simulointi suoritettiin samoille betoneille kuin mitä käytettiin mallin validoinnissa.

8.15 Kalliolaatu: Rakennusgeologiset kallioluokitukset ja niihin liittyvien epävarmuuksien määrittäminen ja esittäminen käyttäen tilastollista päättelyä ja geologisia 3D- ja paikkatieto-ohjelmistoja

Mira Markovaara-Koivisto, Aalto-yliopisto

TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

Hankkeen tarkoituksena on visualisoida ja mallintaa kallioperän laatutekijöitä 1-3-ulottuvuudessa ja arvioida ja visualisoida tuotettujen mallien luotettavuutta. Kallioperän laatutekijöiden mallintamisen lähtötietoina käytetään geologisia havaintoja, geofysiikan tutkimuksen tuloksia sekä tilastollisia menetelmiä. Mallien luotettavuuden arvioinnissa otetaan huomioon mm. varmojen havaintojen etäisyys arviotavasta pisteestä sekä havainnon laatu.

Työ alkoi vuonna 2006 K.H Renlundin säätiön myöntämällä apurahalla. Aloitusvuonna kartoitettiin nykyiset kallioluokitukset kotimaassa ja ulkomailla ja haastateltiin yhdeksää alan kotimaista toimijaa kalliolaadun karakterisoinnista käytännössä. Haastatteluista julkaistiin kotimainen artikkeli *Materia*-lehden 3/2010 numerossa: Markovaara-Koivisto M: "Kalliomassan laadun karakterisointi käytännössä - haastattelu". Lisäksi aloitusvuonna valittiin kalliolaadun tutkimuksiin ja menetelmien kehittämiseen neljä Etelä-Suomen kivilouhosta: Mäntsälä, Lohja, Talma ja Karkkila.

Vuonna 2007 K.H Renlundin rahoituksella Mäntsälän kohteessa tehtiin rakennegeologisen kartoituksen lisäksi maatutkaluotausta ja Mäntsälän ja Lohjan kohteiden seinämistä otettiin stereokuvia. Mäntsälän louhoksen rakoilua mallinnettiin Gocad-ohjelmalla 3D:ssä perustuen edellä mainittuihin tutkimusmenetelmiin. Vuodesta 2009 lähtien hanke on ollut osa KYT2010-tutkimusohjelmaa. Mallinnuksesta kirjotettiin vuonna 2009 ensimmäinen väitöskirjatyöhön liitettävä artikkeli EUREGEO-konferenssiin. Maatutkaluotaukseen perustuvassa mallinnuksessa tulee mm. ottaa huomioon heijasteiden samankaltaisuus, ja vierekkäisiltä tutkimuslinjoilta havaittujen heijasteiden yhdistämisessä pinnoiksi voidaan huomioida rakennegeologisen kartoituksen tulokset.

Mäntsälän louhoksen 3D-rakomallin kattavassa tilassa laskettiin rakoiluun liittyviä kalliolaatuparametreja: rakoluku kuutiometrissä kiveä, josta voitiin empiirisellä kaavalla johtaa Rock Quality Designation (RQD). Aiheesta pidettiin esitys Suomen Geoteknillisen yhdistyksen (SGY), Maanalaisten tilojen rakentamisyhdistyksen (FTA-MTR), Suomen Kalliomekaniikkatoimikunnan ja Suomen Betoniyhdistyksen (BY) järjestämässä seminaarissa ja julkaistiin vuonna 2009 toinen väitökseen sisällytettävä artikkeli.

Vuosina 2007–2009 tehtiin Mäntsälän kohteessa yksityiskohtaisia rakomittauksia scanline-tekniikalla. Vuonna 2008 tehtiin Mäntsälän batoliitin alueella, jossa myös louhos sijaitsee, kaksi n. 10 km risteävää tutkimuslinjaa, joilta tehtiin yhteensä 15 rakennegeologista havaintoa.

Scanline-tekniikalla kerätään paikkaan sidottuja havaintoja, joiden visualisointiin ei ollut työkaluja. Mathworks:n MATLAB-ohjelmalla kehitettiin rakopintojen visualisointiin yksinkertainen koodi, jolla tuotettiin havaituista raoista pintoja. Nämä siirrettiin Gocad-ohjelmaan tarkentamaan rakomallia. Tarkennetusta rakomallista ja sen kattavassa tilavuudessa lasketuista kalliolaatuparametreista kirjoitettiin vuonna 2010 kolmas väitökseen sisällytettävä artikkeli IAEG-konferenssiin. Artikkelissa pohdittiin havaintoavaruuden ja laskenta-avaruuden erilaisten dimensioiden vaikutusta laskettujen parametrien luotettavuuteen.

Myöhemmin tästä yksinkertaisesta koodista kehitettiin scanline-tekniikalla tehtyjen erilaisten havaintojen visualisointi- ja analysointityökalu. Vuonna 2009 ohjelmaa esiteltiin kansallisilla Geologian tutkimuspäivillä. Lisäksi aiheesta julkaistiin lyhyt tiivistelmä. Väitöskirjatyöhön sisällytetään ohjelmasta kertova artikkeli, joka on lähetetty vuoden 2011 alussa Computers & Geosciences -lehteen arvioitavaksi. Ohjelma on esitetty julkaistavaksi artikkelin liitteenä. Artikkelissa demonstroidaan lisäksi insinöörigeologian alalle uusia tapoja esittää suuntadataa.

Yksittäisessä kohteessa vallitsevien kallion rakenteiden ja rakoilun ennustamista ympäröivän alueen geologiasta tutkitaan Lohjan esimerkkitapauksen avulla. Lohjan louhokselta vuonna 2006 tehtyjä rakennegeologisia havaintoja verrataan ympäröivältä alueelta tehtävään geologiseen 3D-malliin. Mallin lähtötietoina käytettyjä liuskeisuusmäärittäjiä, kivilaji-, rakenne- ja rakoilutietoja on kerätty Geologian tutkimuskeskuksen arkistoista ja tietokannoista. Lisäksi alueelta tehtyjä geologisia karttoja käytetään kivilajirajojen määrittämiseen.

Rakopinnan vaikutusta maatutkaheijasteen käyttäytymiseen tutkittiin laboratorio-olosuhteissa. Palin Granit Oy antoi tutkimukseen erikokoisiksi sahattuja kivilohkoja. Maatutkaheijasteen muutoksia tutkittiin kivilohkojen väliin jätetyn raon avaumaa varioiden. Aiheesta kirjoitetaan artikkeli EAGE:n Near Surface 2011-konferenssiin.

Tähän mennessä väitöskirjatyö on käsitellyt suoria tai välillisiä (maatutka) havaintoja. Seuraavaksi tarkoitus on maanpinnalta tehtyjen havaintojen perusteella ekstrapoloida rakenteita syvemmälle kallioperään. Lopuksi tarkastellaan teoreettisesti rakoilua ja kalliolaatua niitä kuvaavien parametrien kautta ja ennustetaan parametrien arvoja sellaisessa tilassa, josta havaintoja ei ole.

TULOSTEN MERKITYS JA HYÖDYNNETTÄVYYS

Tutkimustuloksilla on merkitystä tuleville kalliorakennushankkeille Suomessa ja Suomen kaltaisilla kallioperäalueilla. Hankkeen aikana kehitettävä algoritmi kallion rakojen ominaisuuksien kolmiulotteiseen visualisointiin on todennäköisesti sovel-

lettavissa erityisesti ydinjätiesijoituskohteisiin, koska niistä on olemassa runsaasti geologista ja geofysikaalista 3D-aineistoa.

Tutkimuksen ohella julkaistuissa artikkeleissa esitellään käytännön esimerkein menetelmiä kalliolaadun 3D-mallintamiseen ja keskustellaan niiden hyvistä ja huonoista puolista. Tutkimustuloksia voidaan suoraan hyödyntää KYT2014-tutkimusohjelmassa mainitussa loppusijoituksen turvallisuuteen tähtäävien kallioperätutkimusten tekemisessä ja käsittelyssä.

TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

Kallion rakennegeologiset parametrit kartoitettiin Geologian tutkimuskeskuksen Taajamageologia-hankkeessa kehitetyllä kartoituslomakkeella ja tallennettiin lomaketta varten kehitettyyn Access-tietokantaan (Microsoft). Scanline-kartoituksessa käytettiin tässä hankkeessa kehitettyä kartoituslomaketta, joka otti huomioon myös tulosten myöhemmän 2D- ja 3D-visualisoinnin.

Kallioseinämiä valokuvauksessa käytettiin mm. stereokuvausmenetelmää, jolla saatiin SiroVision-ohjelmalla (CSIRO) luotua 3D-kuvia seinämistä ja niiden muodoista. 3D-kuvissa erottuvien rakopintojen suunnat kartoitettiin SiroJoint-ohjelmalla (CSIRO).

Kallioseinämillä näkyvien rakojen jatkuvuutta syvemmälle kallioon tutkittiin maatulka-menetelmällä. Tutkimuksessa käytettiin RAMAC-GPR-yksikköä suojatuun 250 MHz, 500 MHz ja 800 MHz antennilla. Maatulka-antennien tulokset tulkittiin Reflexw 4.5 -ohjelmalla (Sandmeier Scientific Software). Ohjelmalla voi mm. digitoida heijasteet ja tallentaa ne ASCII-muodossa.

Digitoidut maatulkaheijasteet yhdistettiin pinnoiksi Surpac-ohjelmalla (Gemcom) sekä myöhemmin Gocad-ohjelmalla (ParadigmTM). Gocad-ohjelmalla tehtiin 3D-rakomallit sekä kalliolaatuparametrien laskut mallin sisällä.

Scanline-kartoitusten tulosten visualisointi ja analysointi aloitettiin yksinkertaisilla Excel-taulukkolaskelmilla (Microsoft), mutta tähän tarkoitukseen kehitettiin pian työkalu MATLAB-kielellä (MathWorksTM). Ohjelmointityön tueksi Mira Markovaara-Koivisto osallistui MathWorks:n järjestämälle MATLAB-kurssille Helsingissä 13.-15.4.2010.

Mäntsälän ja Lohjan alueiden jo olemassa olevia kallioperähavaintoja etsittiin Geologian tutkimuskeskuksen arkistoista sekä tietokannoista. Tietokantahavaintoja voidaan selata ArcView-ohjelmistoilla. Havaintojen käsittelyssä käytettiin kuitenkin Excel-taulukkoja.

8.16 KABIO – kaasut ja biogeokemian prosessit kallioperässä

Ilmo Kukkonen, Lasse Ahonen, Arto Pullinen, Geologian tutkimuskeskus

Tutkittaessa kiteisen kallioperän käyttämistä ydinjätteen loppusijoitukseen on olennaista tuntea kallioperässä olevan kalliopohjaveden koostumus, sen sisältämät kaasut, mahdolliset mikrobit ja niitä yhdistävät biogeokemian prosessit. Kaasujen ei-biogeeniset sekä mikrobitoimintaan liittyvät reaktiot veteen liuenneiden aineiden ja kallioperän mineraalien kanssa vaikuttavat erityisesti loppusijoitussysteemin lähi-alueen (erit. bentoniitti ja kapseli) toimintaan ja pysyvyyteen. KABIO-tutkimuksen aiheena olivat kaasujen esiintyminen kallioperässä ja kaasuihin vaikuttavat biogeokemialliset prosessit. Kalliopohjavesisysteemin biogeokemiallisiin prosesseihin liittyä edelleen huonosti tunnettuja ja tuntemattomia tekijöitä, jotka edellyttävät perusselvityksiä, näytteenottoa, prosessien mallintamista ja mikrobiologisia tutkimuksia. KABIO-hanke toteutettiin kiinteässä yhteistyössä VTT:n GEOMOL-hankkeen kanssa.

KABIO-hankkeessa 2008–2010 käytettiin tutkimuskohteena Suomen syvintä kairareikää, joka sijaitsee Outokummussa. Outokummun 2516 m syvä tutkimusreikä antaa ainutlaatuisen mahdollisuuden tutkia kallioperän rakovyöhykkeitä ja syviä prosesseja syvyyssalueella, joka ulottuu kallion pinnasta ”loppusijoitussyvyydelle” ja aina 2,5 km:n syvyyteen saakka. Täten on mahdollista tunnistaa ja tutkia asioita suuremmassa syvyyssmittakaavassa kuin matalampia reikiä käyttämällä. Vaikka Outokummun kivilajit poikkeavat Olkiluodon kivilajeista ja metamorfoosiaste on matalampi, voidaan Outokummun kallioperää pitää kuitenkin varsin tavanomaisena ja samantyyppisenä kuin Olkiluodon (lukuun ottamatta Outokummun muuttuneita ultraemäksisiä kivilajeja). Siten Outokummun kallioperästä todennettavien biogeokemiallisten prosessien voidaan odottaa esiintyvän myös muualla kiteisessä kallioperässä, missä esiintyy vastaavia suolaisia pohjavesiä ja kaasuja.

Kallioperän syvien fluidien näytteenottoa tehtiin syväreissä kenttäkausien aikana koko KABIO-hankkeen ajan. Näytteenottoa tehtiin käyttäen GTK:n perinteellistä letkunäytteenotinta reiän pohjavesiprofilin selvittämiseksi. Lisäksi hanke kehitti valmiuksia ja menetelmiä hydraulisten pakkerien välissä tapahtuvaan pump-paukseen rakovyöhykkeistä. Pumppausnäytteenotossa tehtiin yhteistyötä Posivan ja Lapela Oy:n kanssa, jotka rakensivat syväreikään (halk. 22 cm) sopivat pakkerit. Syväreikäpaikalla olevaan tutkimusparakkiin asennettiin monitorointilaitteistot veden pumppausta sekä sähkönjohtavuuden, pH:n, Eh:n ja redox-potentiaalin automaattista mittausta varten. Pumppausjaksot olivat 2–4 kk pituisia.

Tehtyjen näytteenottojen ja aikaisempien reikämittausten perusteella tiedetään, että reiän vesi muuttuu vähitellen suolaisemmaksi. Tämä on voitu todeta kairauksen aikana (2004–2005) sekä sen jälkeen tehdyissä näytteenotoissa ja reikämittauksissa. Reiässä on muutamia aktiivisia rakovyöhykkeitä, joista vesi virtaa reikään tai reiästä pois. Virtaus on hyvin hidasta, eikä pinnallisia, meteoriseen kiertoon osallistuvia

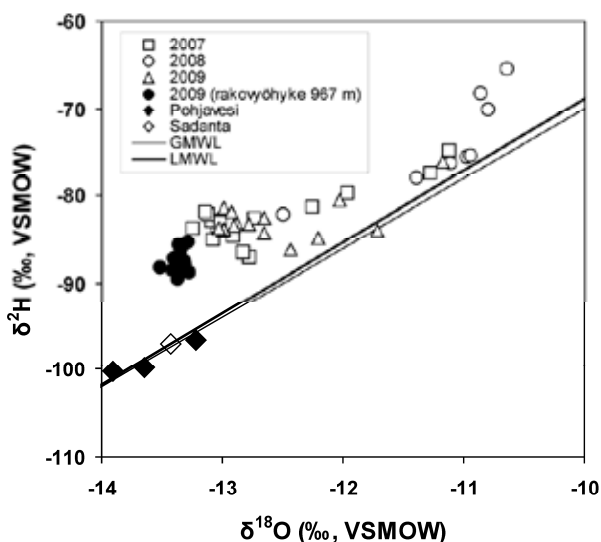
makeita vesiä esiinny edes reiän yläosassa. Reikä on siten sovelias kallioperän hydrogeologiseen ja mikrobiologiseen tutkimukseen.

Taulukko 6. Kaasun koostumus Outokummun syväreiässä. Pitoisuudet ovat til-% NTP:ssä.

Syvyys (m)	N ₂	O ₂	Ar	He	CH ₄	C ₂ H ₆	C ₃ H ₈	Yhteensä
500	22	0,51	1	2,2	72	0,56	0,014	98,3
600	15	1,2	0,9	0,35	79	0,8	0,018	97,3
700	17	0,42	0,69	0,53	78	0,68	0,017	97,3
800	18	0,37	0,6	0,42	77	0,66	0,018	97,1
900	26	0,53	0,52	2,5	67	0,46	0,012	97
1000	16	0,64	0,71	0,34	79	0,75	0,018	97,5
1100	28	0,45	0,66	2,1	66	0,45	0,012	97,7
1200	18	0,48	0,96	0,63	77	0,65	0,017	97,7
1300	21	1,4	0,71	0,7	73	0,62	0,017	97,4
1400	21	0,6	1	1,6	73	0,57	0,017	97,8
1500	22	0,64	0,72	5,6	68	0,5	0,019	97,5
Keskiarvo	20,4	0,66	0,77	1,54	73,5	0,61	0,016	

Syväreiän vedet ovat Ca-Na-Cl-fluideja, joille on tyypillistä korkea kaasupitoisuus. Pinnalle pumpatuista näytteistä eroaa runsaasti kaasua (noin tilavuussuhteina 1:1), joka on koostumukseltaan pääasiassa metaania ja tyypeä (Taulukko 6). Veden stabiilien isotooppien koostumus osoittaa, että syväreiän kallioperässä olevat fluidit eivät ole meteorisessa kierrossa mukana, vaan ilmeisesti pitkäaikaisen veden ja kiven välisen vuorovaikutuksen tulosta. Reikävesi näyttää olevan vallitsevasti peräisin yksittäisistä toisistaan useiden satojen metrien etäisyydellä olevista rakovyöhykkeistä, jotka eivät ole hydraulisesti tekemisissä keskenään (Kuva 24). Eri rakovyöhykkeiden vedet eroavat toisistaan sekä kemiallisen ja isotooppikoostumuksen että mikrobiologisten tutkimusten perusteella.

Kuva 24. Veden stabiilien isotooppien koostumus ($\delta^2\text{H}$ and $\delta^{18}\text{O}$) Outokummun syväreiän vesinäytteissä v. 2007–2009 letkunäytteiden ja 967 m:n rakovyöhykkeestä pumpattujen näytteiden perusteella. Kallioperän suolaiset fluidit eivät ole tekemisissä meteorisen kierron kanssa, jota edustavat kuvan globaali GMWL-suora ja paikallinen Itä-Suomen LMWL-suora sekä sadannan (precipitation) ja kvartäärimuodostumien pohjaveden (groundwater) isotooppiarvot. Pilkkuviivalla ympyröidyt näytepisteet edustavat eräitä mahdollisia isotooppikoostumuksen päätejäseniä.



Mikrobiologisia tutkimuksia on tehty yhteistyössä VTT:n GEOMOL-hankkeen kanssa alkaen v. 2007. Mikrobeja on analysoitu fluidinäytteistä käyttäen sekä letkunäytteenottoa että rakovyöhykkeisiin kohdistettua pumppausta. Merkittävä havainto on, että Outokummun kallioperässä on voitu todeta lajistoltaan moninainen ja vaihteleva 'syvä biosfääri'. Molekyylibiologiset tutkimukset ovat osoittaneet, että noin 15–20 % todetuista bakteereista ja arkeista muistuttaa perimältään muualta raportoituja metaaninmuodostajia ja sulfaatinpelkistäjiä. Suurinta osaa mikrobeista ei pystytä tällä hetkellä luokittelemaan funktionaalisesti.

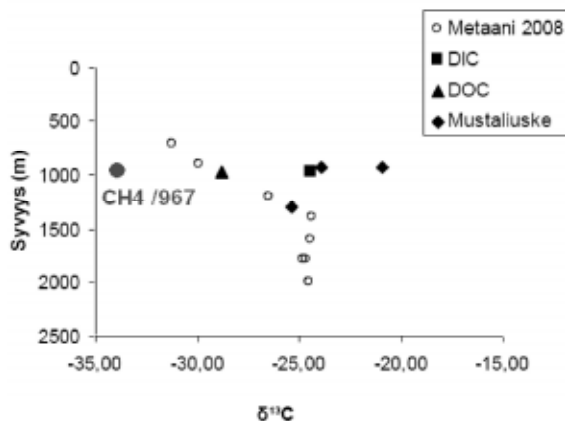
KABIO-hankkeen erityisen mielenkiinnon kohteena ovat mahdolliset kaasujen, pohjaveden kemiallisen koostumuksen ja mikrobien väliset yhteydet Outokummun syväreiässä. KABIO:ssa tutkittiin kaasujen, etenkin metaanin stabiilien C- ja H-isotooppien vaihtelua. Metaanin hiili-isotooppikoostumus voi viitata siihen, että metaani olisi Outokummussa termogeenistä eli korkeammassa lämpötilassa hajonneiden pitempien hiilivetyjen tuottamaa metaania, jolloin se olisi joko hyvin vanhaa tai syvemmältä kulkeutunutta. Toisaalta metaanin biogeenistä alkuperää ei ole voitu sulkea pois, sillä jos hiili kiertää suljetussa systeemissä, ei kaasulla ole odotettavissa merkittäviä isotooppisuhteiden muutoksia suhteessa käytettävissä oleviin

lähtöaineisiin. Myös havainnot metanogeenisistä arkkibakteereista tukevat tätä olettamusta. Vesinäytteistä ei ole pystytty analysoimaan havaittavia sulfaattipitoisuuksia, mikä voisi viitata mikrobiologiseen sulfaatin pelkistykseen.

Letkuprofiilinäytteenoton perusteella reikäveden metaanin hiili-isotooppikoostumus muuttuu syvyyssuunnassa. Rakovyöhykkeistä pumpatun kaasun koostumus poikkeaa jonkin verran reikävedessä havaitusta trendistä, samoin kivistä analysoitu grafiitin koostumus. Liuenneen orgaanisen hiilen koostumus letkuvesinäytteessä taas sopii em. trendiin.

KABIO-hankkeessa on tarkasteltu teoreettisesti syvän biosfäärin mahdollisia energialähteitä. Energialähteiden ymmärtäminen on tarpeen biogeokemiallisten ja mikrobiologisten prosessien ymmärtämiseksi. Niiden avulla voidaan myös mallintaa makroskooppisesti havaittavia kemiallisia prosesseja, joilla voi olla vaikutusta loppusijoituksen kannalta. Tarkasteltiin kahta perusajatukseltaan erilaista energian siirtoketjua: (1) Maan pinnan biosfäärin energian välittymistä syvälle kallioperään heterotrofisessa elektronin siirtoketjussa (hapellinen hengitys => käymisreaktiot) ja (2) maan pintabiosfääristä riippumattomia autotrofisia energiansiirtoketjuja, joista metaanin hapetus sulfaattia pelkistämällä on yksi tärkeä ja mielenkiintoinen esimerkki. Metaania muodostavat autotrofiset prosessit vaativat mitä ilmeisimmin elektronin luovuttajaksi vetyä. Lisäksi tarkastelun kohteena olivat rikin reaktiot energian lähteenä. Termodynaamisen tarkastelun johtopäätös oli, että kaiken kaikkiaan syvän reiän tutkimuksessa todetuista kemiallisista komponenteista vapautettavissa oleva energiavuoto on pieni verrattuna jopa geotermiseen energiavuohon. Mahdollisten syvältä (manttelista) diffusiivisesti tuleva kaasuvuoto on entistä tärkeämpi tutkimuksen kohde, mutta myös luonnonsäteilyn aiheuttama radiolyysi on otettava tarkemmin käsittelyyn.

Kuva 25. Liuenneen orgaanisen (DOC) ja epäorgaanisen (DIC) hiilen isotooppi-koostumukset Outokummun syväreiässä verrattuna metaanin hiili-isotooppeihin (Metaani 2008) ja mustaliuskeiden hiili-isotooppeihin (Mustaliuske) syvyyden suhteen esitettynä. Hiilen isotooppikoostumukset ($\delta^{13}\text{C}$) on esitetty vaakakselilla PDB standardiin verrattuna.



KABIO-hankkeeseen kuului myös uuden tutkijavoiman kouluttaminen pohjavesi- ja kaasututkimuksiin. Hankkeessa ohjattiin ja toteutettiin pro gradu -projekti, jossa geol. yo. Taru Toppi laati opinnäytetyönsä ”Kallioperän kaasujen koostumus ja isotoopit Outokummun syväreiässä” Helsingin yliopistolle.

Tärkeänä KABIO-hankkeen spin-off-vaikutuksena syntyi GTK:n, VTT:n ja Helsingin yliopiston geotieteiden laitoksen yhteishanke DEEP LIFE (2010–2013), jossa tutkitaan syvän biosfäärin prosesseja esimerkkinä Outokummun syväreikä. Hanke on Suomen Akatemian osittain rahoittama ja siinä työskentelee kaksi tohtorikoulutettavaa.

8.17 Syvien biosfäärien geomikrobioprosessit – Molekyylibiologiset monitorointimenetelmät – GEOMOL

Merja Itävaara, Malin Bomberg, VTT

Korkea-aktiivisen ydinpolttoaineen loppusijoitus kallioperään edellyttää turvallisuuden vaikuttavien tekijöiden monipuolista tutkimusta ja tuntemusta. Mikrobioprosessien ymmärtäminen on keskeisessä asemassa ydinjätteiden loppusijoituksen kannalta geobiokemiallisten muutosten aiheuttamien riskien arvioinnissa, jotka liittyvät kuparikapselin biokorroosioon, materiaalien hajoamiseen, kaasujen muodostumiseen ja bentoniittisaven ominaisuuksiin. Mikrobitoiminnan merkitys on loppusijoituksen kannalta toisaalta positiivinen esimerkiksi loppusijoitustilan hapen kulu- tusta katalysoivana prosessina, toisaalta nähdään mikrobien katalysoiman sulfaatin pelkistykseen olevan erityisesti kuparikapselin kannalta haitallinen asia. Loppusijoitusympäristön geokemialliseen stabiilisuuteen vaikuttavat hyvin suuresti mikrobiologisten prosessien katalysoimat kaasujen muodostusprosessit ja hapetus-pelkistysprosessit. Syvien geologisten ympäristöjen mikrobiologisista prosesseista on toistaiseksi hyvin vähän tietoa. Aiemmat tutkimukset ovat perustuneet viljelytekniikkiin menetelmiin. Suurin osa syvämikrobeista ei kuitenkaan kasva tunnetuilla alustoilla ja niiden lajisto on vielä tuntematon. Tässä projektissa on ollut tavoitteena saada tietoa mikrobilajistoista ja löytää oikeat menetelmät, joilla tutkitaan mikrobien esiintymistä ja toimintaa.

Tämän tutkimushankkeen päätavoitteena on ollut kehittää näytteenottomenetelmiä ja molekyylibiologisia mikrobien tunnistusmenetelmiä syviin geologisiin ympäristöihin. Koska aiemmissa tutkimuksissa on sulfaatinpelkistäjät todettu merkittävimmäksi mikrobiryhmäksi kuparin biokorroosiossa, tutkimuksessa on erityisesti keskitytty sulfaatinpelkistäjien ja niiden rajapinnassa elävien metanogeenien tutkimiseen ja menetelmien kehittämiseen. Kuitenkin sulfaatinpelkistäjätkin ovat vuorovaikutuksessa muiden mikrobilajien kanssa, minkä vuoksi koko mikrobiyhteisön vuorovaikutuksia ja yhteisvaikutuksia tutkittiin.

Geomol-projektin aikana on kehitetty mittava määrä osaamista liittyen kentällä tehtäviin mikrobiologisiin syvien geologisten ympäristöjen näytteenottomenetelmiin. Lisäksi kehitettiin näytteiden kestäväintimenetelmiä kentällä tehtäväksi ja hankittiin anaerobiseen työskentelyyn soveltuva liikuteltava anaerobikaappi (Kuva 26). Tutkimus on toteutettu kiinteässä yhteistyössä GTK:n tutkijoiden kanssa ja Kabio-hankkeen kanssa yhteistyössä.

Kuva 26. Kenttälaboratoriossa Outokummussa mikrobiologinen näytteenotto häynnissä.



Mikrobiologisia syviä pohjavesinäytteitä otettiin sekä letkunäytteenottona että paineistetulla PAVE-näytteenottimella pakkerinäytteenottona vuosina 2006–2009. Tutkimuskohteina oli Nummi-Pusulän kairareikä R-387, Outokummun syväreikä (2,516 m) sekä Olkiluodon kairareikä ONK-PVA₃, OL-KR8, OL-KR4₂, OL-KR4₃ ja OL-KR4₀. Letkunäytteenotto mahdollisti mikrobiologisten ja geokemiallisten sekä kaasunäytteiden samanaikaisen tutkimuksen ja tutkimuskairareian syvyysprofiilissa esiintyvien muutosten vertailun.

Mikrobiodiversiteetti ei korreloinut mikrobiitiheyden kanssa, sen sijaan syvyys-suunnassa mikrobiitiheys väheni pintaosien 10^4 – 10^5 solua/ml aina 10^3 solua/ml asti. Mikrobiyhteisöt olivat hyvin erilaiset eri kairareikien pohjavesissä Nummi-Pusulassa, Outokummussa ja Olkiluodossa. Mikrobiitiheysmääritykset tehtiin suodatetuista näytteistä, joissa mikrobisolut värjättiin fluoresoivilla väriaineilla ja määritettiin mikroskooppisesti. Syvänäytteiden mikrobien morfologiaa tutkittiin myös pyyhkäisy elektronimikroskopialla. Mikrobilajistojen tunnistaminen tapahtui molekyylibiologisin menetelmin, 16S rRNA PCR-DGGE -menetelmällä tutkittiin bakteerien ja arkkien esiintymistä näytteissä. Spesifisempiä lajistotunnistuksia tehtiin funktionaalisten geenien kautta, kuten sulfaatin pelkistäjien tunnistaminen sulfittireduktaasi geenin (*dsrB*) ja metanogeeninen *mcrA* geenin kautta. Myös kloonikirjastoja tehtiin ja laajempi määrä mikrobilajistoja tunnistettiin. Tutkimukset tehtiin vesinäytteillä, joista mikrobibiomassa suodatettiin kalvolle niiden konsentroimiseksi.

Nummi-Pusulassa, jossa tutkittiin vesinäytteitä luonnolliselta uraanesiintymäalueelta, todettiin molekyylibiologisten tutkimusten perusteella (16S rRNA) päämikrobilajiston joukossa esiintyvän uraania pelkistäviä mikrobeja. Nummi-Pusula oli ensimmäinen kenttätutkimus, josta menetelmien kehittäminen käynnistyi v. 2006.

Olkiluodon loppusijoitusalueelta saatiin useita PAVE-näytteitä Posiva Oy:n toimesta. Olkiluodossa tutkittiin PAVE:n puhdistuvuutta ja mahdollisia kontaminaatiolähteitä selvitetiin. Sylinterin todettiin puhdistuvan hyvin mutta pakkereiden ja letkustojen todettiin voivan muodostaa kontaminaatiolähteen siirrettäessä kairareistä toiseen.

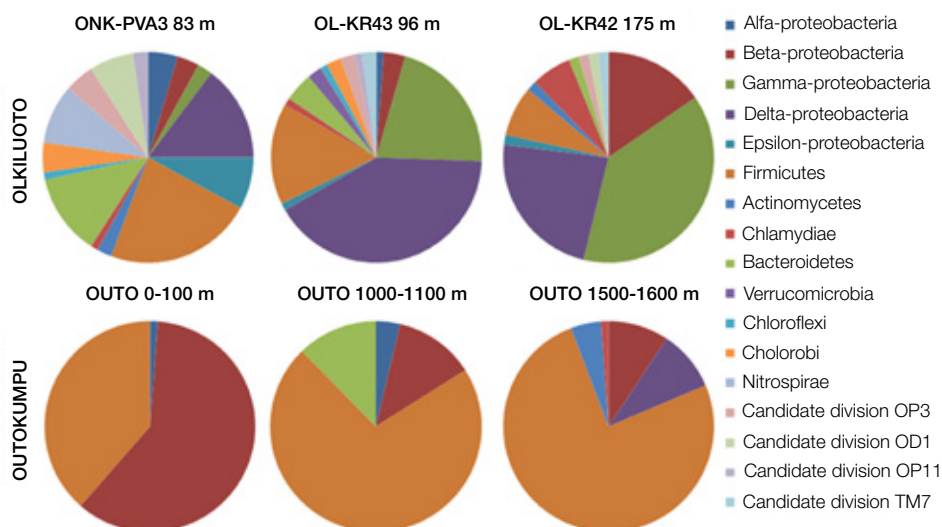
Olkiluodosta saadut näytteet olivat kaikki eri syvyydeltä peräisin olevia näytteitä. Pakkerinäytteissä voitiin todeta mikrobiitiheyden väheneminen pumppauksen aikana sekä lajiston muutos, joka on merkittävä havainto indikoiden pumppauksen aikaansaavan kairareikäalueen puhdistumisen ja endeemisen pohjaveden olevan näytteenoton kohteena. Tämä kertoi myös kaluston puhdistuvuudesta pumppauksen aikana. Ympäristöolosuhteiden mikrobilajistoa ohjaava vaikutus näkyy selkeästi myös tuloksissa. Näytteenottosyvyyden merkitys tutkimuksessa korostui ja geologian merkitys mikrobien esiintymisessä. Pohjavesien suolaisuus lisääntyy syvyyden lisääntyessä, joka osaltaan vaikuttaa mikrobien esiintymiseen. Mikrobipopulaatiot vaihtelivat myös syvyyssuunnassa eri mikrobiryhmien ja lajien esiintyessä eri näytteenottosyvyydellä. Pohjaveden kaasujen ja geokemian vaihtelu sekä hapetus-pelkistys olosuhteet näyttävät vaikuttavan tuloksiin. Tutkimusreikien lukumäärä on kuitenkin ollut niin vähäinen ja näytteet peräisin eri syvyydeltä geokemialtaan erilaisista olosuhteista, ettei tilastollista analyysiä mikrobien suhteesta geokemiaan ja kaasuihin voida tehdä. Joitakin trendejä on kuitenkin havaittavissa, kuten syvyyden merkitys suolaisuuden lisääntymisenä, mustaliuskeen mahdollinen vaikutus mikrobilajiston monimuotoisuuteen ja korkean magnesiumpitoisuuden omaavien vesien runsaamman mikrobilajiston muihin geologisiin olosuhteisiin verrattuna.

Outokummun syväreikästudkimusta (2,516 km) koordinoi professori Ilmo Kukkonen GTK:lta. Syväreikä on kairattu 2004–2005, jonka jälkeen siellä on suoritettu mittava kansainvälinen geofysikaalinen ja geokemiallinen tutkimus. Outokummussa tehtiin mikrobiologisia näytteenottoja tämän projektin puitteissa vuosina 2007, 2008 ja 2009.

Outokummun syväreikästudkimuksissa todettiin selkeät erot mikrobilajistoissa eri syvyydellä (Kuva 27). Geokemian korrelaatio mikrobien esiintymisessä tulee selkeästi ilmi Outokummun tutkimuksissa, joissa voitiin tutkia kairareikää syvyyso-
profiilissa. Sulfaatinpelkistäjiä esiintyi kaikissa tutkituissa näytteissä, tosin Outokummussa voitiin todeta, että syvimmissä näytteissä esiintyvät sulfaatinpelkistäjät olivat eri lajeja kuin pintaosissa, pääasiassa autotrofisia hiilidioksidia fiksoivia lajeja.

Sulfaatinpelkistäjät esiintyvät yleensä metaania tuottavien mikrobien rajavyöhykkeessä ympäristössä, jos sekoittumista ei tapahdu. Outokummussa kairareikästä kuplii metaania 1000 m syvyydestä. Suolaista vettä virtaa reikään myös muista rako-
vyöhykkeistä, joka aikaansaa virtauksia kairareikässä ja aiheuttavat jonkin asteista sekoittumista. Sekoittuminen ei kuitenkaan ole niin voimakasta, että se estäisi mikrobien esiintymisen vyöhykkeittäin.

Kuva 27. Mikrobiyhteisöjen koostumus (16S rRNA kloonikirjastot) Olkiluodon pohjavesinäytteissä (ylempi rivi) ja Outokummun syväreiän mikrobiyhteisöt 0–100m, 1000–1100m, 1500–1600m syvyydellä.



Outokummun syväreiän syvyysprofilissa voidaan nähdä, että jotkut lajit esiintyvät koko kairareian yläosasta alas asti, esim *Hydrogenophaga* sp., jonka määrä vähenee alaspäin. Sen sijaan Firmicutes heimon kuuluvat mikrobit lisääntyvät syvyys-suunnassa. Näistä huomattava osa on sulfaatinpelkistäjiä. Outokummun syväreiässä todettiin 1000–1500 m syvyydessä runsaampi mikrobilajisto kuin muissa syvyyksissä.

Tutkituissa näytteissä esiintyi sekä autotrofisia sulfaatinpelkistäjiä, jotka sitovat hiilidioksidia että heterotrofisia orgaanisen aineksen hajottajia. Metaania tuottavia mikrobeja, eli metanogeenieja, ei esiintynyt kaikilla syvyyksillä eikä kaikissa näytteissä. Anaerobisesti metaania hapettavia mikrobeja esiintyi tietyissä näytteissä. Sulfaatinpelkistäjien suhteellinen osuus Olkiluodon kairareikävesissä oli yleisesti matala, korkeimmillaan 0,5 % koko mikrobiyhteisöstä. Outokummun syväreiässä sen sijaan sulfaatinpelkistäjien suhteellinen osuus oli huomattavasti korkeampi, jopa 7–20 %. Metanogeenien suhteellinen määrä koko mikrobipopulaatiosta oli molemmissa paikoissa matala 0–2 %. Geokemian ja kaasuanalyytitulosten yhdistäminen mikrobiologisiin tuloksiin antoi viitteitä kivilajien merkityksestä mikrobilajistojen esiintymisessä kallio-pohjavesissä.

Sulfaatin esiintyminen pohjavesissä ei ole edellytys sulfaatin pelkistäjien esiintymiselle, koska useilla lajeilla on kyky hajottaa orgaanista ainesta. Orgaanisen aineksen esiintyminen sekä yhteistyö rikkiä hapettavien mikrobien kanssa voi rapauttaa kallio-perästä rikkiyhdisteitä ja hapetuspelkistysreaktioissa voi muodostua

sulfaattia, joka välittömästi pelkistetään sulfideiksi sulfaatinpelkistäjämikrobien ansiosta. Yhteistyö eri mikrobiryhmien kanssa esim. anaerobisten metaanin hapettajien kanssa voi luoda otolliset olosuhteet korrodoivien sulfidien muodostumiselle. Mikrobien metaboliatuotteet on toinen potentiaalinen riskitekijä. Mikrobit voivat sitoa tyypeä ja muodostaa ammoniumioneja sekä muodostaa amiineja, joilla molemmilla on kuparia korrodoiva vaikutus.

Geomol-tutkimusprojektissa kehitetyt näytteenottomenetelmät ja mikrobiologiset analyysimenetelmät ovat luoneet vahvan pohjan tutkia syvien geologisten ympäristöjen geomikrobiologiaa. Projektin aikana on käynnistetty lisärahoituksella kahden tohtori-opiskelijan, Lotta Purkamon ja Maija Nuppusen opinnot ja Pauliina Rajalan pro gradu -työ.

Projektin tutkijat ovat osallistuneet useisiin kansainvälisiin koulutuksiin Itävallassa, Saksassa ja USA:ssa sekä lukuisiin konferensseihin, joissa on esitetty tutkimustuloksia vuosittain. Geomikrobiologian koulutusohjelmien puuttuminen on ollut katalysoimassa VTT:n osallistumista Pohjoismaisen geobiokoulutusohjelman suunnitteluun, joka käynnistyy kesällä 2011 Islannissa.

Geomol-tutkimukseen osallistuivat tutkijat FT Mari Nyssönen, FM Aura Nousiainen, FM Anu Kapanen, FT Malin Bomberg VTT:ltä. Projektia johti johtava tutkija dosentti Merja Itävaara VTT:ltä. Geomol-projekti oli yhteistyöhanke Geologian tutkimuskeskuksen dosentti Lasse Ahosen kanssa 2006–2008, jonka jälkeen näytteenotto geobiokemian osalta erkani erilliseksi Kabio-hankkeeksi. Tutkimusyhteistyö GTK:n kanssa sai Suomen Akatemialta rahoitusta Deep Life -hankkeen muodossa (2010–2013). Tutkimus liittyy Outokummun syväreikään ja stabiilien isotooppien hyödyntämiseen syvämikrobien energiaprosessien tutkimisessa.

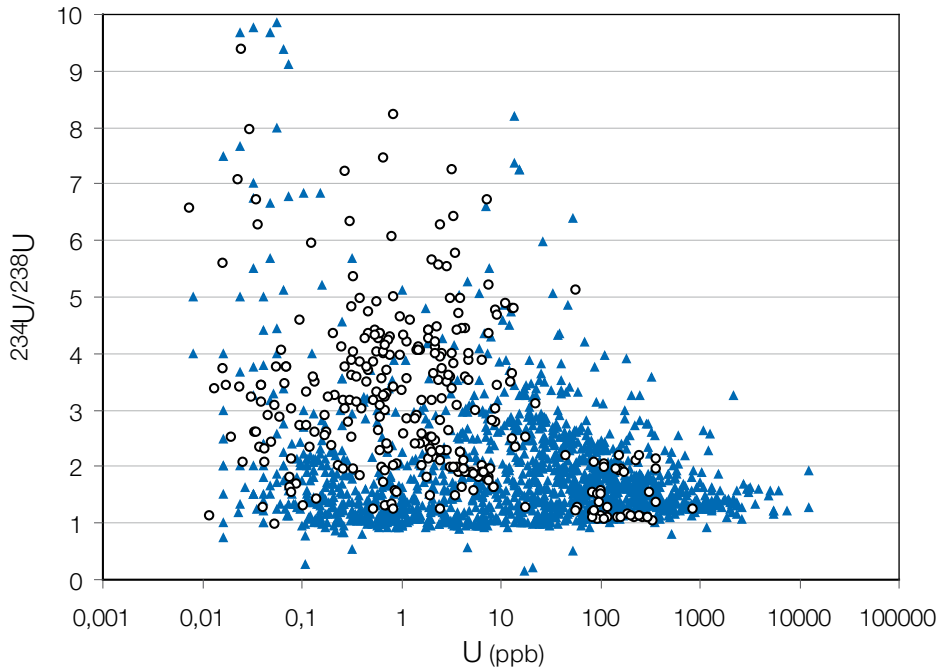
8.18 Uraanin käyttäytyminen pohjavesiolosuhteiden indikaattorina

Juhani Suksi, Helsingin yliopisto, Radiokemian laboratorio

JOHDANTO

Pohjavesiolosuhteiden vaihteluiden ymmärtäminen on olennainen osa käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoitustilan turvallisuusanalyysiä. Teknisten päästöestöiden toimintakyky, radioaktiivisten aineiden vapautuminen ja kulkeutuminen riippuvat pohjaveden kemiallisista olosuhteista. Kallioperään infiltroituvien erilaisten vesien (sadanta, merivesi, glasiaalisperäinen sulavesi) tiedetään muuttavan pohjaveden kemiallista koostumusta hetkellisesti mutta muutoksen turvallisuusmerkitystä ei ole lopullisesti selvitetty. Hankkeen tarkoituksena oli selvittää, minkälaisia mahdollisuuksia on käyttää pohjaveteen liuennutta uraania infiltraatioiden kemiallisten vaikutusten kuvaamisessa. Infiltraation ja virtauskanavien seinämien välisessä vuorovaikutuksessa uraanin isotooppeja siirtyy veteen muokaten veden $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -suhdetta. Koska veteen muodostunut isotooppisuhde ei muutu vaan pysyy samana myös muutoksen palauduttua ennalleen, sitä voidaan periaatteessa käyttää hyväksi arvioitaessa isotooppien vapautuessa vallinneita olosuhteita. Nyt havaittavat pohjavesien uraanipitoisuudet ja isotooppisuhteet (Kuva 28) voidaan katsoa muodostuneen pääasiassa viime jääkauden jälkeen tapahtuneissa infiltraatioissa. Uraanin isotooppien pitkistä puoliintumisaajoista johtuen radioaktiivisen hajoamisen vaikutus $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -suhteen muodostumiseen ja muuttumiseen vedessä voidaan pitää merkityksettömänä. Miksi $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -suhde vaihtelee pohjavesissä kuvan 28 esittämällä tavalla? Voidaanko isotooppisuhteen vaihtelua käyttää hyväksi infiltraatioiden vaikutusten selvittämisessä? Nämä kysymykset esitettiin projektin käynnistyessä. Hankkeen suomenkielinen loppuraportti on julkaistu viitteessä Suksi (2009).

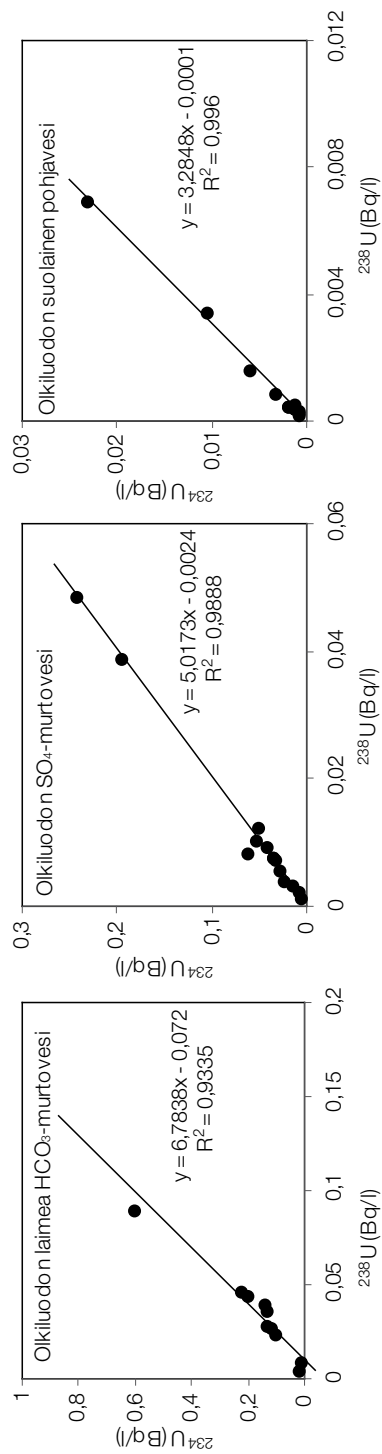
Kuva 28. Uraanipitoisuuksia ja isotooppisuhteita eri tutkimuspaiikkojen pohjavesissä. Kolmiot edustavat porakaivonäytteitä. Suurimmat uraanipitoisuudet esiintyvät yleensä hapellisessa kallioperän yläosassa. Uraanipitoisuuden suuri vaihtelu heijastelee kivilajien vaihtelua ja labiiliin uraanin saatavuutta virtauskanavissa. Labiili uraani koostuu sekundaarisista uraaniyhdisteistä, jotka ovat rapautumistuotteissa kiveä muodostavien mineraalien välisissä tiloissa. Porakaivojen yleensä suuremmat uraanipitoisuudet johtuvat todennäköisesti kairauksen aiheuttamasta muutoksesta kemiallisissa olosuhteissa, jotka suosivat uraanin liukenemista. Syynä $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -suhteen vaihteluun uskotaan olevan vesien infiltraatio kallioperään.



TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

Tutkimusten keskeinen tulos oli pohjavesiolosuhteiden ja uraanin isotooppisuhteen $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ välisen mahdollisen riippuvuuden osoittaminen. Riippuvuus voitiin osoittaa vertaamalla erilaisille pohjavesityypeille määritettyjä uraanin isotooppien vapautumissuhteita. Vapautumissuhde saatiin isotooppien pitoisuuksien mittaus-tuloksista regressioanalyysillä. Kuvassa 29 esitetään regressioanalyysin tulokset kolmelle Olkiluodon vesityypille. Erinomainen korrelaatio voidaan selittää onnistuneella näytteenotolla.

Kuva 29. Uraanin isotooppien $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -vapautumissuhteen (suoran kulma-herroin) määrittäminen.



$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -vapautumissuhde vaihteli rannikkoalueella (Olkiluoto) vesityypeittäin (Taulukko 7). Sisämaan paikoilla (Kivetty ja Romuvaara) pohjavesityyppien välillä ei esiintynyt merkittävää vaihtelua. Todennäköinen syy rannikolla havaittuun vaihteluun on monipuolisempi infiltraatiohistoria. Olkiluodossa ja Hästholmenissa näkyy Itämeren kehittymiseen liittyvien infiltraatioiden vaikutus. Olkiluodossa suurin vapautumissuhde (~6.8) saatiin kallioperän yläosan laimealle HCO_3 -murtovedelle ja pienin suolaiselle pohjavedelle (~3.3). Hästholmenin pohjavesissä nähdään sama trendi: SO_4 -murtoveden vapautumissuhde on suurempi (3,6) kuin suolaisen pohjaveden vapautumissuhde (2,6). Havaintojen perusteella uraanin isotooppien vapautumissuhteen voidaan sanoa riippuvan veden suolapitoisuudesta. Se, että suurin määritetty isotooppien vapautumissuhde saadaan laimeaan murtoveteen, on tärkeä havainto, koska kyseinen vesi edustaa normaalia pohjaveden suotautumista eli kemiallisesti reaktiivisimman vesityypin infiltraatiota.

Taulukko 7. Uraanin isotooppien vapautumissuhteen riippuvuus pohjavesiolosuhteista.

Tutkimuspaikka	Hydrokemia	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -vapautumissuhde	Kommentteja
Olkiluoto	HCO_3^- -murtovesi	6,8	Makeaa vettä 150 m saakka; hydrogeologisesti dynaaminen vyöhyke: Litorina-vaiheen infiltraatio 300 m asti; sulaveden jäämiä; vesi muuttuu suolaiseksi 400–500 m syvyydessä
	SO_4^{2-} -murtovesi	5,0	
	Cl^- -murtovesi	3,3	
	Suolainen vesi	3,3	
Hästholmen	SO_4^{2-} -murtovesi	3,6	Laimean HCO_3^- -vesi 100 m saakka; Litorina-vaiheen infiltraatio 300 m asti; sulaveden jäämiä; vesi muuttuu suolaiseksi 500–600 m syvyydessä
	Suolainen vesi	2,6	
Romuvaara	Virtausreitti I	3,8	Makea vesi ulottuu satojen metrien syvyyteen. Pohjavesi kehittyy Ca-Na-Mg- HCO_3 -tyypistä Na-Ca- HCO_3 -tyyppiin. Ei havaintoja sulaveden infiltraatiosta.
	Virtausreitti II	3,0	
	Virtausreitti III	3,4	
Kivetty	Virtausreitti I	4,3	Makea vesi ulottuu satojen metrien syvyyteen. Pohjaveden evoluutio samanlainen kuin Romuvaarassa. Merkkeitä sulaveden infiltraatiosta.

Hankkeessa tutkittiin myös uraaniaineisto yli 1200 porakaivosta (ks. Kuva 1). Muusta pohjavesiaineistosta poiketen osassa näytteitä $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -aktiivisuussuhde oli selvästi tasapainoarvon yksi alapuolella. Vastaavia arvoja ei ole havaittu tavanomaisissa pohjavesinäytteissä. Epätavallisen alhaiset aktiivisuussuhteet voidaan selittää porakaiden kairaamisen aiheuttamalla häiriöllä. Porakaivot tehdään paljon paksummalla terällä ($\phi 15$ –25 cm) kuin tavanomaiset kairanreiät (4–5 cm). Porakaiden kairaaminen on todennäköisesti muuttanut pohjaveden virtaussysteemiä niin, että hapelista vettä on päässyt hapettomiin virtauskanaviin liuottaen siellä vanhaa ^{234}U -kõyhää uraania. $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -aktiivisuussuhdetta, joka on alle 1, voidaan täten pitää todistena redox-olosuhteissa tapahtuneesta muutoksesta.

TUTKIMUKSEN MERKITYS YDINJÄTEHUOLLOSSA

Ydinjätehuollon yksi keskeisistä kysymyksistä on, säilyvätkö pohjaveden kemialliset olosuhteet riittävän vakaina tulevien infiltraatioiden yhteydessä. Lopullisen vastauksen saaminen edellyttää loppusijoituspaikan hydrogeokemiallisen evoluution ymmärtämistä ja erilaisten vesien infiltraatioiden vaikutusten tuntemista. Hankkeessa kehitetty tekniikka tarjoaa uuden tavan tutkia infiltraatioiden vaikutusta. Infiltraatioiden vaikutuksia kuvaavan tiedon käyttäminen loppusijoituksen turvallisuuserustelussa voi avautua ei-asiantuntijoille laskennallisia perusteluja helpommin. Infiltraatioiden vaikutuksiin liittyvistä havainnoista voidaan johtaa perusteltua tietoa turvallisuuden laskennallisten herkkyyštarkastelujen tarpeisiin. Havainnoilla voi olla myös merkittävä rooli muodostettaessa vaihtoehtoisia käsitteellisiä malleja ja tulkintoja, joita voidaan hyödyntää turvallisuusanalyysin skenaarioiden koostamisessa.

TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

Tutkimus toteutettiin pääasiassa analysoimalla julkaistua aineistoa pohjavesien uraanin isotooppien pitoisuuksista. Aineistoa kerättiin Suomesta ja Ruotsista. Aineiston analyysissa käytettiin lineaarista regressioanalyysia. Tulosten tulkinnaissa käytettiin hyväksi tutkimuspaikkojen pohjavesikemiaa, tietoa hydrogeokemiallisesta evoluutiosta ja uraanin isotooppien ydingeokemiasta. Aineiston alustava analyysi on julkaistu viitteessä Suksi et al. (2006). Tutkimuksessa käytettiin hyväksi myös luonnollisessa raossa tehdyn migraatiokokeen uraanin isotooppituloksia. Koe on julkaistu viitteessä Kienzler et al. (2006).

Hankkeen toisessa vaiheessa $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -vapautumissuhdetta oli tarkoitus tutkia laboratoriossa kontrolloiduissa olosuhteissa, jotta $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ -suhteen muodostuminen voitaisiin paremmin kytkeä uraanin liukenemiseen ja kemiallisiin olosuhteisiin. Tätä varten radiokemian laboratoriossa kehitettiin kivi-vesi-vuorovaikutussimulaattori. Laitteiston toiminta testattiin mutta varsinaiset tutkimukset jouduttiin lopettamaan riittämättömän rahoituksen vuoksi.

Viitteet

Kienzler, B., Vejmelka, P., Römer, J., Luckscheiter, B., Kisely, T., Soballa, E., Walschburger, C., Seither, A., 2006. Actinide Migration Experiment in the ÄSPÖ HRL in Sweden: Analysis of Retained Uranium and Technetium in Core #7 (Part V), Forschungszentrum Karlsruhe, FZKA 7196, 23 p.

Suksi, J., 2009. Uraanin käyttäytyminen pohjavesiolosuhteiden indikaattorina. http://www.ydinjate-tutkimus.fi/julkaisut/KIVES-2006_2008_LR.pdf

Suksi, J., Rasilainen, K. and Pitkänen, P., 2006. Variations in the $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratio in groundwater - a key to characterise flow system? *Physics and Chemistry of the Earth* 31 (2006) 556-571.

8.19 Kallion rikkonaisuusrakenteet ja hydrogeologia

Lasse Ahonen, Geologian tutkimuskeskus

Muuttuvissa maan pinnan olosuhteissa kiteinen kallioperä tarjoaa pitkällä aikavälillä vakaan loppusijoitusympäristön ydinvoimatuotannossa syntyvien jätteiden loppusijoitukseen. Teknisten päästöesteen mahdollisesti heikentyessä peruskallio toimii radioaktiivisen jätteen päästöesteenä varmistaen loppusijoituksen turvallisuutta hydrogeologisilla ja hydrogeokemiallisilla pidätysominaisuuksillaan. Loppusijoituksen turvallisuuden perustelu edellyttää, että kallioperän ominaisuudet ja ilmiöt ymmärretään, niitä pystytään havainnointimenetelmin mittaamaan ja luokittelemaan sekä kuvaamaan eritasoisten mallien avulla.

Kiteisen kallioperän tyypillinen ominaisuus on eri mittakaavainen rakoilu ja rikkonaisuus. Etelä-Suomen kallioperän osalta se nivoutuu noin 1800 miljoonan vuoden geologiseen historiaan. Rakoillut kiteinen kallio on monien prosessien osalta erilainen verrattuna muualla tutkittuihin huomattavasti nuorempiin savi-, suola- ja vulkaanisperäisiin muodostumiin. Hanke ”Kallioperän rikkonaisuusrakenteet ja hydrogeologia” aloitettiin edellisen KYT-ohjelman puitteissa (Ahonen 2006) ja päättyi 2006. Hankkeen tarkoituksena oli metodinen tutkimus, joka yhdistää rakennegeologisen tulkinnan, hydrogeologiset mittaukset, geofysikaaliset mittaukset, kairasydänhavainnot ja reiän videokuvauksen.

Tutkimus keskitettiin aluksi Inkoon Kopparnäsin alueelle ja vuoden 2006 aikana myös Palmotun luonnonanalogiakohteeseen, jonka jälkeen tutkimuksen painopiste siirtyi Outokummun syväreikään. Työ eteni eri mittakaavaisten kartta- ja ilmakuvaineistojen tulkinnasta yhden rikkonaisuusvyöhykkeen lävistävään kairaukseen ja kairareikä tutkimuksiin. Kairasydänaineistosta tulkittiin rikkonaisuuden esiintymistä kalliossa ja verrattiin sitä kairareiän videokuvauksen tuloksiin. Sekä Kopparnäsin että Palmotun tutkimusreiässä tehtiin myös monipuolisesti geofysikaalisia mittauksia, ja saatuja havaintoja verrattiin muilla menetelmillä, erityisesti reikävideolla, todettuihin rikkonaisuusvyöhykkeisiin.

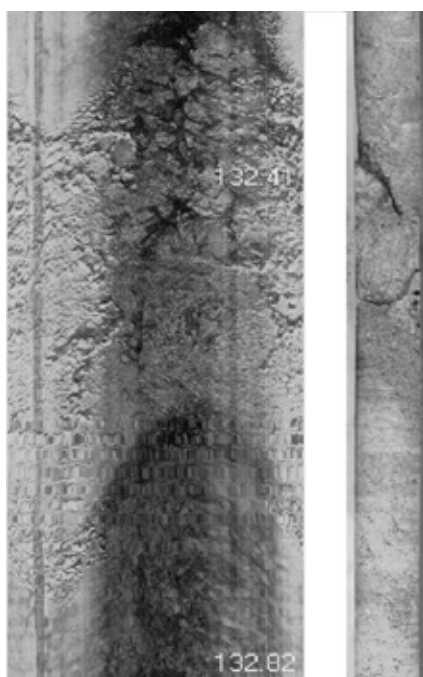
Kopparnäsin tutkimuksessa saatiin hyvälaatuinen videokuvauksen tutkimusreiän seinämästä ja kallion seinämässä olevien rakojen avoimuudesta, mitä puolestaan voitiin verrata yksityiskohtaisesti tutkittuun kairasydännäytteeseen ja siitä tulkittuihin rakojen avautumiin (kuva 30). Edelleen vertaamalla geofysikaalisia reikämittauksia havaittuihin rakovyöhykkeisiin saatiin lisätietoa geofysiikan tulkinnan tueksi niissä tapauksissa, joissa suoraa rakoiluhavaintoa ei ole käytettävissä.

Palmotun tutkimuspaikalla (R387) tehtiin lisätutkimuksia kehittäen ja testaten reikägeofysiikan mittausten menetelmiä hydrogeologian sovellutuksiin, koska kyseisessä tutkimusreiässä oli aikaisemmin tehty hydrogeologinen erovirtausmittaus Posiva Oy:n kalustolla. Todettiin, että geofysikaalisesta reikäluotauksesta saadaan lisäinformaatiota pumppaamalla vettä reiästä samanaikaisesti luotauksen kanssa,

jolloin rakovirtaukset näkyvät selvemmin. Reikäluotauksena tehtävä omapotentialimittauksen todettiin myös mahdollisesti antavan hydrogeologisesti merkittävää tietoa, koska menetelmällä havaittiin selviä anomaliaita syvyyksillä, joissa aikaisemmin oli erovirtausmittauksessa todettu rakovirtausta.

Hankkeen loppuvaiheessa tutkimus kohdistui enenevässä määrin juuri valmis-tuneeseen Outokummun syväreikään, jonka reikägeofysikaalisen aineiston hydrogeologisesta tutkimuksesta tehtiin diplomityö (Tarvainen 2006). Kaiken kaikkiaan hankkeen puitteissa tehtiin kaksi diplomityötä ja nuoret tutkijat käyttivät suuren osan työpanoksesta.

Kuva 30. Tutkimusreiän seinämä ja seinämässä olevien rakojen avoimuus.



Viitteet

Ahonen, L. 2006. Bedrock Fracturing and Hydrogeology. In Rasilainen, K. (ed.) 2006. The Finnish Research Programme on Nuclear Waste Management (KYT) 2002-2005. Final Report. VTT Tiedotteita 2337, 119-134.

Ahonen, L., Jääskeläinen, P., Tarvainen, A.-M., Korhonen, K. 2006. Kallion rikkonaisuusrakenteet ja hydrogeologia: Vuosiraportti 2005. 23 s., 5 liites. Geological Survey of Finland, Archive report, Y 50/2006/1.

Tarvainen, A.-M. (2006). Outokummun syväkairareiän vettä johtavien rakenteiden tunnistaminen reikägeofysikaalisin menetelmin. Diplomityö. Teknillinen korkeakoulu, Geoympäristötekniikan laboratorio. Diplomityö. Teknillinen korkeakoulu, Materiaali- ja kalliotekniikan koulutusohjelma.

8.20 Kallion in situ -tutkimukset, Grimsel Test Site – Phase VI, Long Term Diffusion -project (LTD)

Marja Siitari-Kauppi, Helsingin yliopisto, Radiokemian laboratorio

TUTKIMUKSEN TAUSTA

Tämä yhteenveto koskee vuonna 2005 aloitetun Grimsel Test Site (GTS) – Phase VI -kokonaisuuteen liittyvän Long Term Diffusion (LTD) -projektin tuloksia vuosilta 2006–2010. LTD-projekti koostuu kahdesta osakokonaisuudesta, joista ensimmäinen jaettiin neljään aliprojektiin: in situ -kulkeutumiskoe, in situ -impregnointikoeket, kiven huokosveden koostumuksen tutkimus ja radionuklidien kulkeutumisreittitutkimus.

Radiokemian laboratorion tutkijat ovat olleet mukana suunnittelemassa tätä projektia ja vastanneet in situ huokosrakenteen selvittämiseksi tehdystä kokeista ja in situ kokeita tukevista kiven huokosrakennetutkimuksista laboratoriossa.

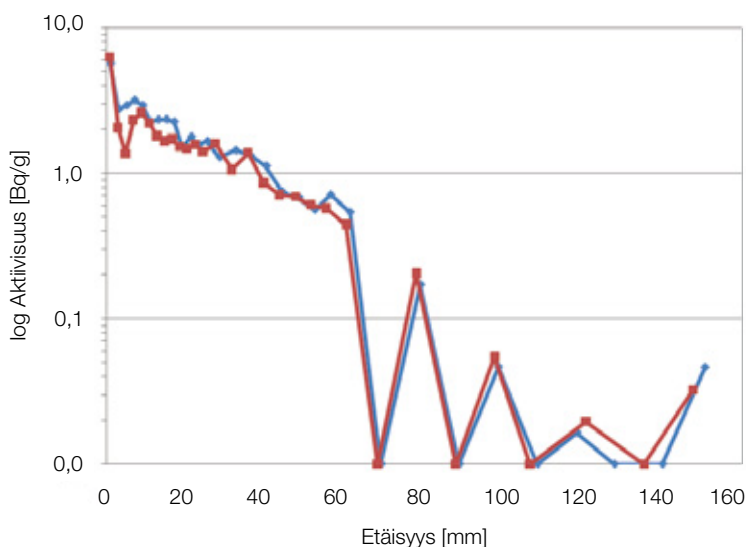
Ydinjätteen kallioperäloppusijoituspaikan turvallisuus riippuu mm. kallion kyvystä viivästyttää pohjaveteen mahdollisesti joutuneita radioaktiivisia aineita. Radionuklidien viivästyminen tapahtuu niiden diffundoituessa vettäjohtavista raoista kalliomatriisin huokosiin ja kiinnittyessä huokosten pinnoille. Koska pohjaveden kulkeutumisreitteihin ja kallioperän huokoisuuteen liittyy vielä epävarmuustekijöitä, geosfäärin roolia niiden pidättämisessä on arvioitu alaspäin nykyisissä turvallisuusanalyysissä. Kiviaineksen huokostilavuuteen liittyvät epävarmuudet ovat johtaneet myös muutoksiin radionuklidien kulkeutumisen mallinnusperiaatteissa. Kyseiseen epävarmuuteen on sidoksissa kiinteästi kalliomatriisin pidätyskyvyn arvioiminen. Laboratoriossa tehdyt matriisidiffuusio- ja sorptiokokeet kiviäytteille eivät välttämättä vastaa ominaisuuksiltaan *in situ* olosuhteissa vallitsevan kiviaineksen ominaisuuksia, jolloin laboratoriokokein saatujen pidätys-kulkeutumisparametrien paikkansapitävyyttä ja siirrettävyyttä *in situ* olosuhteisiin on tutkittava. Tässä työssä on otettu askel eteenpäin ydinjätteiden loppusijoitustilan turvallisuuden arviointitutkimuksissa siirryttäessä laboratoriotutkimuksista kallion *in situ* tutkimuksiin.

TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

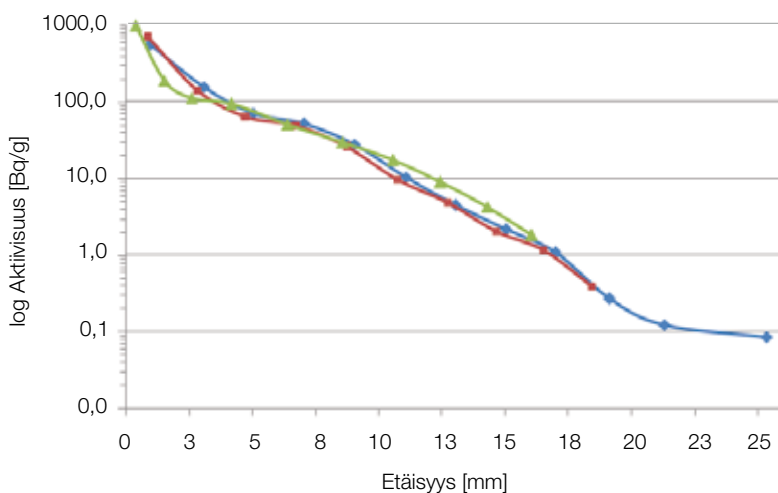
Hankkeen ensimmäisessä osatyössä määritettiin radionuklideille Na-22, Cs-134 ja HTO sekä stabiilille isotoopille I-127 diffuusioprofiilit 2,5 vuotta kestäneessä *in situ* kulkeutumiskokeessa. Merkkiaineet oli laimennettu Grimselin pohjaveteen, joka oli kerätty testialueen rakovyöhykkeestä. Koealue oli 8.2 metrin etäisyydellä tunnelin seinämästä, eheässä kivimatriisissa. Vettä kierrätettiin 8 litran kokonaistilavuudessa 70 cm:n levyisessä injektioalueessa, halkaisijaltaan 56 mm:n kairanreiässä. Injektioalueen molemmin puolin oli kaksinkertainen paineentasausjärjestelmä. Cesiumin tunkeutumisvyvyys on 25 mm ja natriumin noin 60 mm. Tritiumia

ja jodia löytyy injektiopinnasta niin syvälle kuin halkaisijaltaan 30 cm alinäytteessä on mahdollista asiaa tutkia eli max 19 cm:n syvyyteen. Kuvissa 31 ja 32 on esitetty radionuklidien Na-22 ja Cs-134 diffuusioprofiilit; cesium on voimakkaasti kiven tummiin mineraaleihin pidättyvä alkuaine, kun taas natrium pidättyy heikosti maasälpään. HTO ja jodi ovat ns. pidättymättömiä alkuaineita ja ne diffundoituvat kiven huokosissa kahden ja puolen vuoden aikana kymmeniä senttimetrejä.

Kuva 31. Na-22:n diffuusioprofiili on esitetty HYRL1-kivinäytteen injektiokohdasta kiven sisään logaritmisella asteikolla. Diffuusioaika oli 2.5 vuotta.



Kuva 32. Cs-134:n diffuusioprofiili on esitetty HYRL1-kivinäytteen injektiokohdasta kiven sisään logaritmisella asteikolla. Diffuusioaika oli 2.5 vuotta.



Hankkeen toisessa osatyössä tehtiin kaksi laajamittaista *in situ* impregnointikoetta kiven huokoisuuden ja rakoavaumien visualisoimiseksi. Merkkiaineina käytettiin kahta orgaanista yhdistettä; veteen liukeneva NHC-9 ja veteen liukenematon C-14-PMMA. PMMA-tekniikassa kivi on siis kuivattava ennen kuin merkkiaine voi tunkeutua kiven huokosiin. Tämän työn tuloksena C-14-PMMA-autoradiografiatekniikka kehitettiin *in situ* olosuhteissa käytettäväksi. *In situ* ja laboratorioissa määritettyjä huokoisuuksia verrattaessa havaittiin, että *in situ* huokoisuudet ovat 10–30 % pienemmät. PMMA-menetelmällä määritetty huokoisuus on noin 30 % pienempi kuin laboratorioissa määritetyn vastaavan kiven ¹⁴C-PMMA huokoisuus.

TULOSTEN MERKITYS JA HYÖDYNNETTÄVYYS

Hankkeessa on kehitetty PMMA kivenhuokosrakenteen tutkimusmenetelmä *in situ* olosuhteisiin käytettäväksi. Tietotaito ja osaaminen ovat siirrettävissä ja hyödynnettävissä erityyppisissä loppusijoitustilaolosuhteissa. Projektin tuloksena on saatu turvallisuusrelevanttia tietoa *in situ* radionuklidien kulkeutumisesta ja vuorovaikutuksista kalliosta, kallion rakenteesta, vettä johtavien rakojen geometriasta ja reuna-alueiden heterogeenisuudesta sekä pohjavesikemian tutkimusten kautta migraation pitkäaikaiskäyttäytymisestä ja cesiumin sorptiosta *in situ* olosuhteissa. Hanke on lisännyt prosessien ymmärtämistä. Tuloksia on hyödynnetty mallinnettaessa ja arvioitaessa kivimatriisin pidätyskykyä radionuklidien kallioperäkulkeutumisen yhteydessä myös kiven rakenteen heterogeenisuus huomioon ottaen. Hankkeessa on koulutettu ja perehdytetty useita radiokemistejä ydinjätteiden loppusijoituksen ongelmakenttään kansallisessa ja kansainvälisessä tutkijajoukossa.

TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

Kiven huokosrakenteen tutkimiseksi sekä *in situ* että laboratorioissa käytettiin C-14-PMMA-autoradiografiamenetelmää. Menetelmässä kivinäyte impregnoidaan ¹⁴C leimatulla metyylimetakrylaatilla, joka polymeroidaan näytteen huokostilaan kuumentamalla tai säteilyttämällä. Näytteestä valmistetut kivipinnat sijoitetaan röntgenfilmille, johon radioaktiivisen hajoamisen seurauksena muodostuu kuva huokostilasta. Kuvien käsittelyyn perustuvilla laskentamenetelmillä määritetään mineraalien huokoisuuksia, kivinäytteiden kokonaishuokoisuuksia ja huokoisuusprofileja vettä johtavien rakojen reuna-alueilta tutkittavista näytteistä. PMMA-autoradiogrammeja käytetään edelleen matriisidiffuusiomallinnuksessa määrittämään diffuusiosyvyys- ja -nopeuksia ns. TDD-menetelmällä.

Kiven rakennetutkimuksissa käytettiin elektronimikroskopiaa (FESEM) huokos-avaumien tutkimisessa ja energiadiispersiivistä spektrometriaa (FESEM-EDS) kiven mineraalien alkuainekoostumuksen määrittämiseksi. Petrografiämääritykset tehtiin polarisaatiomikroskoopilla.

Muita tutkimusmenetelmiä olivat laboratorioskaalan diffuusiokokeet pidättymättömillä merkkiaineilla (HTO ja Cl-36). Radionuklidien määritykset vesiliuoksista ja kivinäytteistä tehtiin normaalein radiometrisin menetelmin esim.

nestetuikelaskennalla tai gammaspektrometrisin mittauksin (Na-22 ja Cs-134). Laser ablaatio-induktiivisesti kytkettyä massaspektrometriä (LA-ICP-MS) käytettiin radionuklidien kulkeutumisreittitutkimuksissa määrittäessä radionuklideja Np-237, U-235 ja U-234. Pohjavesiliuosten alkuaineiden määrittämisessä käytettiin laajamittaisesti ICP-MS-tekniikkaa.

8.21 Rakovirtaus ja radionuklidien kulkeutuminen graniittisessa kallioperässä

Pirkko Hölttä, Helsingin yliopisto, Radiokemian laboratorio

Antti Poteri, VTT

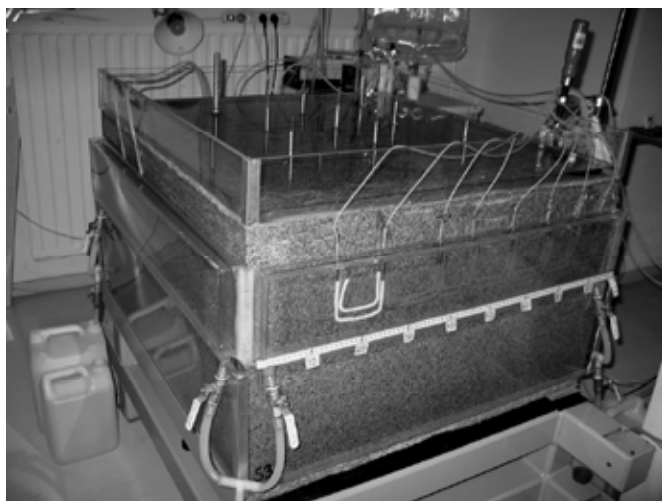
Käytetyn uraanipolttoaineen loppusijoituksen pitkäaikaisturvallisuutta arvioitaessa epävarmuutena on se, että rakovirtausta ja kallioperän todellista pidätyskykyä ei tunneta riittävän tarkasti. Kokeellisesti rakokulkeutumista ja matriisidiffuusion osuutta ei ole ollut mahdollista selvittää suljettua loppusijoitustilaa vastaavissa virtausoloissa, jolloin kulkeutumisen arviointi perustuu olennaisten prosessien ja niiden välisten kytkentöjen tunnistamiseen ja mallinnukseen. Tulkinnan perusta on luonnonrakojen virtausominaisuuksien selvittäminen ja rakovirtauksessa esiintyvien ilmiöiden tunnistaminen ja ymmärtäminen yksityiskohtaisesti. Turvallisuusanalyysin kannalta erityisen kiinnostavaa on liikkuvien radionuklidien kuten ^{129}I , ^{36}Cl ja ^{99}Tc aiheuttama pitkän aikavälin riski. KYT-tutkimusohjelmassa on aiemmin tutkittu radionuklidien kulkeutumista ja pidättymistä eri mittakaavoissa ja skaalausta laboratoriosta in-situ kalliolaboratorio olosuhteisiin ottaen huomioon kallioperän heterogeenisuus. Vuosina 2006–2007 koottiin tulokset yhteen ja tehtiin täydentäviä kokeita havaittujen epävarmuuksien selvittämiseksi ja matriisidiffuusion osoittamiseksi kokeellisesti.

Kurun harmaa graniitti blokin (Kuva 33) luonnonraossa on tutkittu radionuklidien kulkeutumista pidättymättömillä ja pidättyvillä merkkiaineilla hyvin kontrolloiduissa virtausoloissa. Tavoitteena oli selvittää blokkikokein rakokulkeutumisessa pidättymistä aiheuttavia prosesseja, erityisesti matriisidiffuusion kontrolloimaa rakovirtausta ja radionuklidien kulkeutumista ja pidättymistä luonnonraossa. Peräkkäisissä toistokokeissa havaittiin vaihteluja virtauskentässä siten, että nopeuden pienentyessä veden virtauskanavassa ja merkkiaineen kulkeutuminen keskityi 1–2 pääkanavaan. Havaittuja epävarmuuksia selvitettiin tekemällä tulkintaa täydentäviä merkkiainekoesarjoja varioiden veden virtausnopeutta ja virtauskenttää. Merkkiainekokeita tehtiin ^{131}I :lla hitailla veden virtausnopeuksilla (2–20 $\mu\text{L min}^{-1}$) matriisidiffuusion osoittamiseksi kokeellisesti myös pidättymättömän merkkiaineen läpitulokäyrissä. Rinnakkain blokkikokeiden kanssa on tehty kairansydämistä valmistetuilla kolonneilla (Kuva 34) yksinkertaisia dynaamisia diffuusio- ja sorptio-kokeita, joiden tavoitteena oli arvioida etukäteen radionuklidien pidätysparametreja blokissa. Merkkiainekokeita jatkettiin pidättymättömillä tritiumilla (HTO), kloridilla (^{36}Cl) ja jodidilla (^{131}I) sekä pidättyvällä natriumilla (^{22}Na) hitailla veden virtausnopeuksilla (1–5 $\mu\text{L min}^{-1}$).

Aiemmin saadut tulokset ja tarkentavat kokeet osoittivat, että on mahdollista tutkia matriisidiffuusiota luonnonraossa laboratorio-olosuhteissa. Kahdella eri koejärjestelyllä, blokilla luonnonraossa ja kairansydänkolonneilla, saatuja merkkiaineiden läpitulokäyriä voitiin mallittaa käyttämällä yhteneviä parametreja. Matriisidiffuusion

vaikutukset voidaan nähdä lievästi pidättyvän natriumin läpitulokäyrissä kolonnin keinotekoisessa kanavassa ja blokin luonnonraossa. Matriisidiffuusion vaikutukset nähdään pidättymättömän jodidin läpitulokäyrässä kolonnin keinotekoisessa kanavassa ja blokin luonnonraossa. Rakovirtauksessa esiintyvät prosessit, advektio-dispersio ja matriisidiffuusio on voitu kuvata riittävällä tarkkuudella toistettavien tulosten saamiseksi, vaikka tuloksia ei vielä toistaiseksi voida suoraan siirtää loppusijoitusolosuhteisiin. Peräkkäisissä toistokokeissa havaitut vaihtelut korostavat virtauskentän hallitsemisen tärkeyttä arvioitaessa radionuklidien kulkeutumista oletetuissa loppusijoitustilan olosuhteissa. Saatu tieto ja ymmärrys radionuklidien kulkeutumis- ja pidättymisprosesseista on siirrettävissä eri skaaloihin ja virtausolosuhteisiin. Rakovirtaus- ja kulkeutumiskokeiden konkreettisena tuloksena on hyvin testatut toimiviksi havaitut koejärjestelyt ja hyvin karakterisoitu luonnon rako jatkok tutkimuksia varten.

Kuva 33. Kurun harmaa graniitti blokki, jossa on vettäjohtava luonnon rako (0.9 m x 0.9 m) n. 17 cm päässä blokin yläpinnasta. Blokkiin on päältä haihattu reiät, jotka on varustettu pakkereilla merkkiaineen injektointia tai raon sulkemista varten. Raon leikkauskohdat blokin pystyreunoilla on varustettu vesisäiliöillä hydraulisen tilanteen hallitsemiseksi ja merkkiaineiden keräystä varten.



Kuva 34. Kairansydän kolonnikokeiden koejärjestely. Kolonnit on valmistettu Kurun harmaa graniitti blokista kairatuista kairansydämistä. Keinotekoinen virtauskanava on kairansydämen ja putken välissä.



8.22 Kolloidien muodostuminen ja niiden vaikutus radionuklidien kulkeutumiseen

Pirkko Hölttä, Mari Lahtinen, Helsingin yliopisto, Radiokemian laboratorio

KYT2010-tutkimusohjelmassa aloitettiin vuonna 2008 uusi hanke, jossa tutkitaan kolloidien muodostumista käytetyn uraanipolttoaineen loppusijoitustilan eri materiaaleista. Radionuklidien kiinnittyminen liuoksessa stabiileihin ja pohjaveden virtauksen mukana liikkuviin kolloideihin saattaa merkittävästi edistää etenkin aktinidien kulkeutumista loppusijoitustilasta biosfääriin arvioitaessa käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen turvallisuutta. Kolloidit ovat kooltaan yhdessä dimensiossa 1–1000 nm partikkeleita, joilla on pintavaraus ja erittäin suuri spesifinen pinta-ala radionuklideille kiinnittyä. Kolloidien merkitys radionuklidien kuljettajina riippuu kolloidien koosta ja stabiilisuudesta, sorption irreversiibeliydestä ja geokemiallisista olosuhteista. Bentoniittipuskurin eroosion seurauksena bentoniitin massaa häviää kolloidisessa muodossa termisen ja pitkäkestoisen pohjavesi vuorovaikutus ajanjaksojen aikana. Kolloideja muodostuu myös tunnelin täyteaineena käytettävästä kivimurskeesta, korroittuneesta kuparista ja rapautuneesta uraanipolttoaineesta sekä loppusijoitustilan rakennuksen aikana rakojen injektioaineina käytetyistä sementistä ja kolloidisesta silikasta. Hankkeen tavoitteena oli määrittää loppusijoitustilan materiaaleista muodostuvien epäorgaanisten kolloidien stabiiliutta, selvittää bentoniitin kolloidisessa muodossa tapahtuvaa hajoamista sekä testata ja soveltaa eri karakterisointimenetelmiä.

Jauhemaista MX-80-bentoniittia, kivimurskeita, sementtiä ja silikaa sekoitettiin vähäsuolaiseen Allard- ja suolaiseen OLSO-referenssipohjaveteen sekä deionisoituun veteen. Lisäksi seurattiin bentoniittikolloidien stabiiliutta ionivahvuuden (0.0010.1 M) funktiona laimennetussa OLSO-vedessä ja NaCl- ja CaCl₂-elektrolyyttiliuoksissa. Kiinteä aine-vesi seoksesta otettiin vesinäytteet, joista erotettiin kolloidinen fraktio suodattamalla 0.45 µm membraanin läpi. Suodatetuista näytteistä analysoitiin partikkelikoko, kolloidien määrä, stabiilisuutta kuvaava zetapotentialiaali ja alkuaineakoostumus sekä partikkelien morfologia. Kolloidien kokojakautuman ja pitoisuuden sekä zetapotentialin mittaamiseksi käytettiin dynaamista laservalonsirontaa (DLS/PCS). Rinnakkaisena menetelmänä partikkelikokojakauman määrittämiseen testattiin epäsymmetristä poikittaisvirtaus-kenttävirtausfraktiointia (AsFFFF), jossa kolloidien erotus perustuu ainoastaan partikkelin kokoon eikä muotoon. Kolloidien morfologiaa selvitettiin käyttäen pyyhkäisyelektronimikroskopiaa (FESEM). Muodostuneiden kolloidien määrä arvioitiin partikkelikoko määrittämisessä saadun laskentataajuuden ja standardisarjan avulla. Kolloidien alkuaineakoostumus analysoitiin käyttäen massaspektrometriaa (ICP-MS).

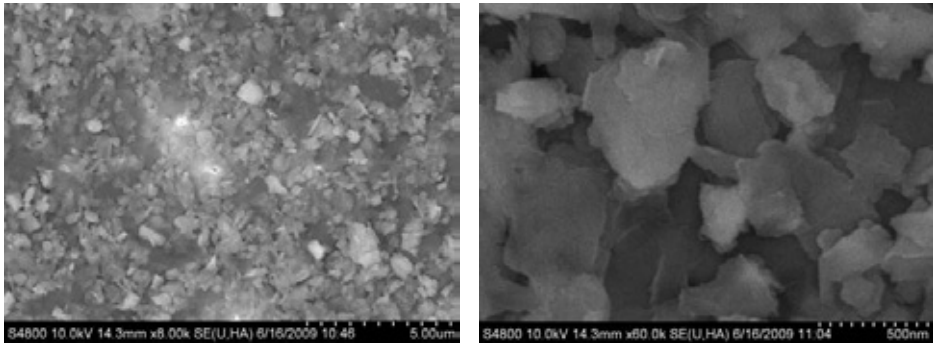
DLS- ja AsFFFF-menetelmillä saadut partikkelikokojakaumat ovat melko yhtenevät. Hajonta DLS-tuloksissa aiheutuu mittausmenetelmän toimintaperusteista. DLS määrittäminen riippuu partikkelien koosta, määrästä ja muodosta, pieni määrä suuria

partikkeleita tuottaa suurimman osan siroavan valon intensiteetistä. AsFFFF määrittämissä partikkelin koko perustuu pelkästään sen diffuusioon poikittaisessa virtauskentässä. Laservalonsirontamenetelmällä määritetty keskimääräinen partikkelikoko niukkasuolaisessa Allard- ja deionisoidussa vedessä oli 60–350 nm ja suolaisessa OLSO-vedessä 1–900 nm. Muuntuneesta tonaliitista irronneiden kolloidien muoto nähdään kuvan 35 elektronimikroskooppikuvista. Kivimurskeesta ja myös bentoniitista irronneet kolloidit ovat levymäisiä ja partikkelien keskimääräinen halkaisija on yhtenevä DLS ja AsFFFF määritysten kanssa. Zetapotentiaalit olivat niukkasuolaisessa Allard-vedessä välillä -10 mV – -45 mV ja suolaisessa OLSO-vedessä +10 mV – -10 mV. Eniten nollasta poikkevat negatiiviset zetapotentiaalit mitattiin bentoniittikolloideille Allard-vedessä.

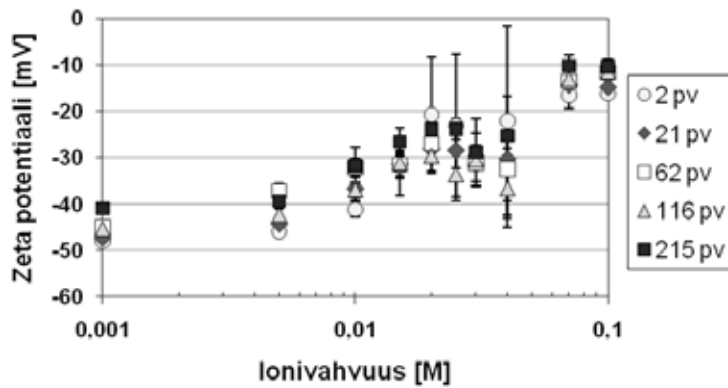
Bentoniittikolloidien stabiilisuus laimennetussa OLSO-vedessä ja elektrolyyttiliuoksissa ei muuttunut merkittävästi vuoden aikana. Stabiilisuus riippui voimakkaasti liuoksen ionivahvuudesta ja kationista. Bentoniittikolloidien zetapotentiaali laimennetussa OLSO-vedessä on esitetty veden ionivahvuuden funktiona kuvassa 36. Keskimääräinen zetapotentiaali oli -40 mV, kun veden ionivahvuus oli 0.005 M, josta se nousi noin -10 mV:iin ionivahvuudessa 0.07 M. Natriumkloridissa kolloidit olivat stabiileja (zetapotentiaali alle -30 mV), kun ionivahvuus oli 0.04 M tai sitä pienempi. Kalsiumkloridissa kolloidit olivat stabiileja, kun ionivahvuus oli 0.01 M tai sitä pienempi. Partikkelikoko kasvoi ionivahvuuden mukana ollen molemmissa elektrolyyttiliuksissa noin 400 nm, kun ionivahvuus oli 0.001 M. Natriumkloridissa partikkelikoko ylitti 1000 nm ionivahvuudessa 0.025 M, kun taas kalsiumkloridissa se ylitti 1000 nm jo ionivahvuudessa 0.015 M, minkä jälkeen partikkelit olivat paljon suurempia kuin natriumkloridissa.

Suolaisessa OLSO-vedessä keskimääräinen partikkelikoko yli 500 nm, laaja partikkelikokojakauma sekä lähellä nollaa olevat zetapotentiaalit merkitsevät kolloidien aggregoitumista ja epästabiileja kolloideja. Niukkasuolaisessa Allard-vedessä pieni, alle 200 nm:n partikkelikoko ja voimakkaasti negatiivinen zetapotentiaali tarkoittavat sitä, että kolloidit ovat stabiileja. Suolaisen veden vaikutus kolloidien stabiilisuuteen saatiin selvästi näytettyä kahdella referenssipohjavedellä ja elektrolyyttiliuksilla. Nykyisissä olosuhteissa Olkiluodon pohjaveden suolaisuus on noin 0.5 M, jossa kolloidit aggregoituvat eikä niillä ole vaikutusta radionuklidien kulkeutumiseen. Tutkimusta bentoniitin eroosiosta kolloidisessa muodossa voidaan kuitenkin hyödyntää arvioitaessa bentoniittipuskurin toimintakykyä. Kolloidien merkitys radionuklidien kuljettajina riippuu kolloidien muodostumismekanismeista ja stabiilisuudesta eri pohjavesiolosuhteissa ja radionuklidien kiinnittymisestä niihin. Kolloidien stabiilisuus tulee olemaan merkittävä tekijä jääkausieroosion sulamisvaiheessa, jolloin suolaton sulamisvesi muuttaa pohjavesikemiala ja kolloidien vaikutus radionuklidien kuljettajina on otettava huomioon. Kolloidien ominaisuuksia määritettiin usealla rinnakkaisella ja toisiaan täydentävällä menetelmällä tuloksena monipuolinen kokoelma testattuja ja toimivia menetelmiä jatkoa varten.

Kuva 35. Pyyhkäisyelektronimikroskooppikuva (FESEM) voimakkaasti muuntuneesta tonaliitista Allard-vedessä irronneista kolloideista.



Kuva 36. Bentoniittikolloidien stabiilisuus (zetapotentiaali) laimennetussa OLSO-vedessä ionivahvuuden funktiona.



8.23 Kiven huokostilavuuden kuvaus tomografiamenetelmillä ja sen yhdistäminen matriisidiffuusiomallinnukseen

Jussi Timonen, Jyväskylän yliopisto

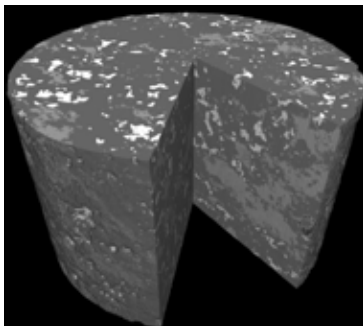
Projektin ensimmäinen vaihe, Kiven huokostilavuuden kuvaus tomografiamenetelmällä, ajoittui vuosille 2006–2008 ja toinen vaihe, Kiven kolmiulotteisen huokosrakenteen yhdistäminen matriisidiffuusiomallinnukseen, ajoittui vuosille 2009–2010. Hankkeen molemmat vaiheet kuuluivat ydinjätteiden loppusijoituksen pitkäaikais-turvallisuutta edistävään tutkimuskokonaisuuteen ja ovat läheisesti kytkeytyneet myös Grimsel Test Phase VI -puiteohjelman Long Term Diffusion (LTD) -projektiin.

Ohjelmajakson aikana vuonna 2009 hankittiin ja otettiin käyttöön kaksi eri röntgentomografialaitetta, Xradia microXCT-400 (paras resoluutio 0.7–1.0 μm) ja Xradia nanoXCT (paras resoluutio 50 nm). Laitteiden hankinnan yhteyteen liittyi näytteiden käsittelylaitteistojen hankinta ja kehitys sekä mittausten menetelmien melko laajamittainen, erityisesti kivinäytteisiin kohdistunut kehittäminen.

Röntgentomografian käyttö kolmiulotteiseen materiaalitutkimukseen vaati voimakasta panostusta kuvankäsittely- ja kuva-analyysimenetelmien kehittämiseen. Laajasti käytössä olevat kaksikulotteiset menetelmät ovat yleensä liian hitaita tomografiakuvien suurille datamäärille. Kohinan poisto tomografiakuvista ennen niiden analysointia on oleellista. Tähän tarkoitukseen testattiin lukuisia erilaisia menetelmiä ja kehitettiin lopulta uusi kohinan paikallista varianssia hyödyntävä menetelmä, joka on osoittautunut hyvin nopeaksi ja tehokkaaksi. Kuvien segmentointi on välttämätöntä kvantitatiivista karakterisointia varten. Segmentointiin on kehitetty useita uusia menetelmiä. Erilaiset rakenteelliset piirteet vaativat useimmiten omat menetelmänsä, ja niinpä menetelmiä on kehitetty huokosten, mikrorakojen, mineraalikomponenttien jakautumisen ja pintojen tunnistamiseksi. Lisäksi on kehitetty menetelmät huokoskokojakaumien ja ominaispinta-alojen määrittämiseksi tomografiakuvista.

Tiivistä yhteistyötä HYRL:n kanssa sisältänyt tutkimuskohde oli radiohiilileimautun PMMA:n avulla tehtävän huokoisuusanalyysin yhdistäminen kiven rakenteen tomografiatutkimukseen. PMMA-menetelmällä saadaan näkyviin sellaista (johtavaa) huokoisuutta, joka on röntgentomografian tarkkuuden alapuolella. Kun mineralogisessa analyysissä käytettiin apuna elektronimikroskopiaa, voitiin PMMA-menetelmällä määrätä kivinäytteiden mineraalispesifinen huokoisuus. Tämä voitiin yhdistää tomografiakuvauksen tuottamaan mineraalien kolmiulotteiseen jakaumaan, jolloin saatiin kolmiulotteinen huokoisuuden jakauma (Kuva 37).

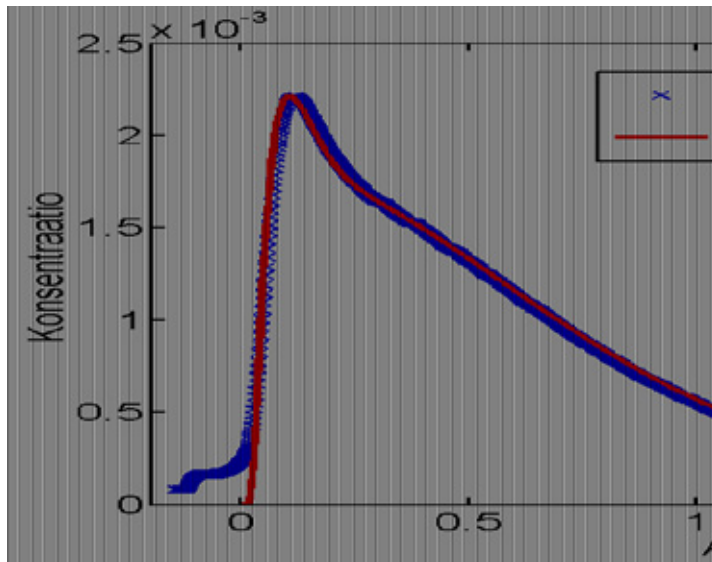
Kuva 37. Sievin muuntuneen tonaliitin kolmiulotteinen huokoisuuskartta. Tummat harmaasävyt indikoivat matalaa ja vaaleat korkeaa huokoisuutta.



Projektin aikana on tutkittu monia erilaisia näytteitä, Kurun graniittia, Grimselin granodioriittia ja graniittia, näytteitä porauksen aiheuttamasta häiriövyöhykkeestä, 40 vuotta erityisolosuhteissa ikäännytettyä betonia (yhteistyö Berkeleyn yliopiston kanssa), bentoniittia (siirretty toiseen projektiin) ja erityisesti Sievin muuntunutta tonaliittia. Viimeinen näyte valittiin erityisen huomion kohteeksi sen takia, että muuntumisen aiheuttama suuri huokoisuus (n. 10 %) teki sen analysoinnin ja sitä kautta menetelmien kehittämisen helpommaksi. Huokoisuuden, mikrorakojen ja mineraalien jakaumien lisäksi on näistä näytteistä analysoitu mm. huokoskokojakaumaa ja erikokoisten alueiden sisältämän huokoisuuden jakautumista suuremmissa näytteissä.

Projektin toisessa vaiheessa yllä kuvattuja menetelmiä hyödynnettiin radionuklidien kallioperäkulkeutumisessa tärkeän matriisidiffuusion entistä tarkempaan analysointiin. Aluksi validoitiin matriisidiffuusion mallinnukseen yleisesti käytetty advektio-diffuusiomalli. Useille erilaisille tilanteille johdettiin analyyttinen ratkaisu, ja kahdessa tapauksessa sitä verrattiin tarkoitusta varten konstruoidulla laboratoriokoelaitteistolla suoritettuihin kokeisiin. Kokeissa käytettiin merkkiaineena kaliumkloridia ja vettä kantajanesteenä. Merkkiaineen paikallisesti ja ajallisesti vaihteleva konsentraatio mitattiin veden paikallisen johtavuuden avulla. Mitatut läpäisykäyrät pystyttiin erinomaisesti selittämään malliratkaisuilla ja lisäksi havaittiin joitakin ennen tuntemattomia erityispiirteitä aineellisen tunkeutumisyyvyyden (matriisissa) vaikutuksesta läpäisykäyrään. Tämän jälkeen kehitettiin yhteistyössä Poitiersin yliopiston (Ranska) kanssa numeerinen matriisidiffuusiomalli, jota voidaan käyttää tomografia-analyysiä ja PMMA-analyysiä yhdistämällä saatavaan kolmiulotteiseen huokoisuusrakenteeseen. Näin voitiin analysoida esimerkiksi huokoisuuden heterogeenisen rakenteen vaikutusta vettä johtavasta raosta kivimatriisiin tapahtuvaan merkkiaineen diffuusion. Toisaalta samaa mallinnusta voitiin käyttää HYRL:ssä tehdyille ns. kairankuppinäytteiden läpιδiffuusiokokeille, joille analyyttisiä ratkaisuja ei ole olemassa.

Kuva 38. Mitattu ja siihen analyttisellä ratkaisulla sovitettu tulos kolonnikokeen läpäisykäyrälle, kun tilavuusvirta on 2 µl/min. Matriisin äärellisen syvyyden aiheuttama kyhmy on selvästi näkyvissä.



Yhteenvedona voidaan todeta, että kehitettyjä kuvausmenetelmiä voidaan käyttää ja on jo käytetty monenlaisten ydinjätteen loppusijoitukseen liittyvien ongelmien tarkastelussa. Projektin toisessa vaiheessa aloitettu matriisidiffuusion tarkastelu tähtää mm. Grimselissä ja Olkiluodossa tehtävien in situ -kokeiden tulkintaan. Kun mallinnuksen perusteet on validoitu ja siinä voidaan ottaa huomioon aikaisemmissa tarkasteluissa huomioimattomia piirteitä, voidaan näistä kokeista olettaa saatavan entistä paremmin hyödynnettävää tietoa. Projekti on tuottanut useita julkaisuja, yhden väitöskirjan (2011) ja osasuorituksia kahteen muuhun väitöskirjaan.

8.24 GeoChem: Havainnot uraanin käyttäytymisestä kiteisissä kivissä turvallisuusperustelun tukena

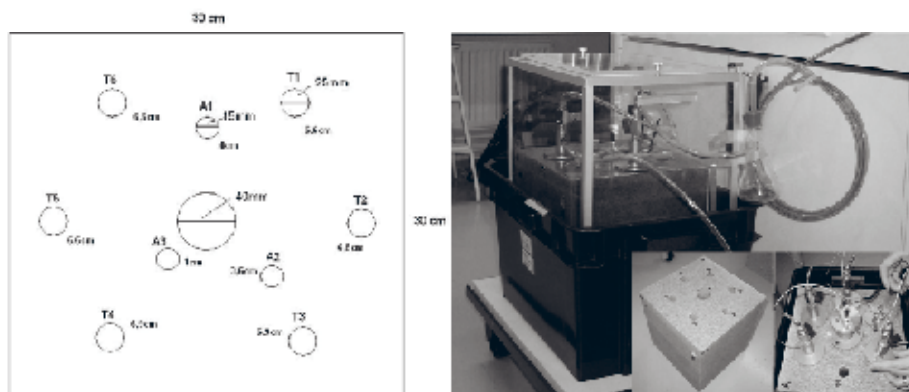
Lalli Jokelainen, Marja Siitari-Kauppi, Helsingin yliopisto, Radiokemian laboratorio
Mira Markovaara-Koivisto, Aalto-yliopisto

TUTKIMUKSEN TAUSTAA

Uraanin käyttäytymistä kiteisessä kivessä tutkittiin vuosina 2006–2008 Helsingin yliopiston radiokemian laboratoriossa (HYRL) yhteistyössä Teknillisen korkeakoulun nykyisen Aalto-yliopiston Geoympäristötekniikan laboratorion (TKK GT) ja Geologian tutkimuskeskuksen (GTK) kanssa. Tutkimuksen alullepanija oli Karl-Heinz Hellmuth Säteilyturvakeskuksesta. Myös professori David Read (Enterpris Ltd + Univ. of Reading) oli hankkeessa voimallisesti mukana. Hanke oli osa ydinjätteen loppusijoituksen pitkäaikaisturvallisuutta koskevia tutkimuksia ja aihepiiri liittyi radionuklidien kallioperäkulkeutumista selvittäviin tutkimuksiin. Yhteistyötä tehtiin Jyväskylän yliopiston Fysiikan laitoksen projektin ”Kiven huokostilavuuden kuvaus tomografiamenetelmillä” ja Radiokemian laboratorion projektin ”Kallion in situ-tutkimukset” osana Grimsel Test Site Phase VI -puiteohjelmaa, kanssa.

Hankkeen ensimmäisessä osassa tutkittiin luonnonhavaintojen avulla uraanin esiintymismuotoja kiven mineraaleissa ja esiintymistä omina primääri- tai sekundäärimineraaleinaan kivimatriisissa ja kivien mikroraoissa. Työssä käytetyt kivenäytteet olivat uraanirikkaasta kallioperästä Palmotusta ja Askolasta. Hankkeen toisessa osassa tutkittiin laboratoriokokein uraanin kulkeutumista ja kulkeutumisnopeutta kahdessa eri graniittisessa kivessä – Kurun harmaassa graniitissa ja Sievin muuntuneessa tonaliitissa. Laboratoriokokeissa uraanin lähteenä käytettiin köyhdytettyä uraania, joka liukeni pohjaveteen koeolosuhteissa (hapellinen vähäsuolainen pohjavesisimulantti) ja uraanin kulkeutumista kivessä seurattiin ICP-massaspektrometrisesti (Kuva 39). Hankkeen kolmannessa osassa tarkasteltiin kahden ensimmäisen vaiheen tuloksia hydrogeokemiallisen ja kulkeutumismallinnuksen avulla. Tarkoituksena oli yhdistää kulkeutuminen ja geokemia ja tarkastella uraanin todellisia prosesseja kivessä. Näiden prosessien tunteminen on tärkeää, mikäli käytettyä ydinpolttoainetta sisältävä säiliö olisi viallinen ja uraani liuettuaan pohjaveteen difundoituisi ympäröivään kivimatriisiin hapellisten olosuhteiden vallitessa.

Kuva 39. Kaavio blokkikokeen näytteenottoreikien sijainnista ja kuva hoejärjestelyistä.



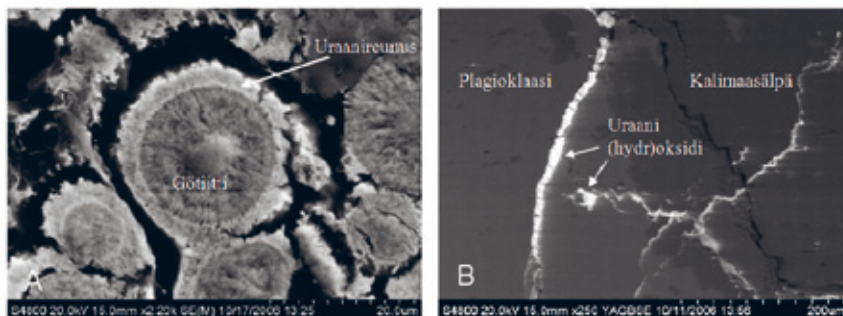
TUTKIMUKSEN KESKEISET TULOKSET

Hankkeen ensimmäisessä osassa tutkittiin Palmotun ja Askolan luonnonuraaniesiintymästä kairattuja näytteitä. Näytteiden uraanimineraalit analysoitiin elektronimikroskoopilla (SEM) yhdistettynä energiadiispersiiviseen spektrometriin (EDS) tai aallonpituusdispersiiviseen spektrometriin (WDS). Palmotun näytteissä runsaimmat uraanipitoisuudet havaittiin irtolohkareissa, jossa uranofaania löytyi erittäin runsaasti rapautuneessa näytteessä. Uranofaani havaittiin kiven raoissa saostuneena. Askolassa uraani esiintyi usein pelkistävien mineraalien, kuten rikki- ja kuparikisun, yhteydessä, pallomaisten götiittinodulien ($\text{FeO}(\text{OH})$) lamellimaiseen rakenteeseen diffundoituneena ja rikastuneena tai (hydr)oksideina mikroraoissa (Kuvat 40 ja 41). [1-3]

Kuva 40. Askolan näytteiden valokuvat ja C-14 PMMA-autoradiogrammit, joissa havaitaan jatkuvan huokoisuuden jakauma ja radioaktiivisten mineraalien aiheuttamat tummumat.



Kuva 41. Uraani on rikastunut (n. 55 wt.%) götiittinodulin ulkokuorelle, joka näkyy kuvassa A vaaleana reunana. B) Uraani(hydr)oksidi mikroraoissa.



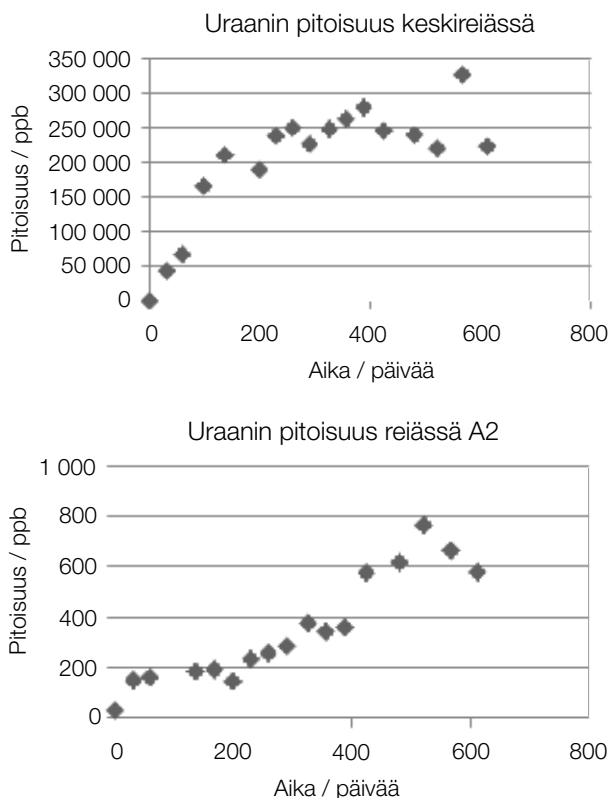
Askolan alueelta kerätyt kivi- ja pohjavesinäytteet analysoitiin, jonka jälkeen mineraali- ja vedenkoostumustietoja käytettiin lähtökohtana hydrogeokemiallisessa mallinnuksessa. Mallien tarkoituksena oli määrittää olosuhteet, joissa uraani esiintyy liukenevassa muodossa ja milloin se pelkistyy neljänarvoiseksi ja saostuu. Tulokset olivat laboratoriokokeita tukevia, pelkistävien mineraalien läsnä ollessa uraani saostuu niiden vaikutuksesta. Mikäli pelkistäviä mineraaleja ei esiinny, on uraani kudenarvoisena ja sekundäärifaaseista yleisin on uranofaani [4].

Tutkittaessa uraanin kulkeutumista luonnonanalogianäytteissä määritettiin uraanifaasien ikä paikkakohtaisesti LA-ICP-MS-menetelmällä. Elektronimikroskopia-määritysten perusteella valittiin Askolasta otetusta näytteestä kohta iänmäärittämiseen HYRL:n Agilent 7500 -laitteella. Näytteessä olevan uraanisilikaatin $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ aktiivisuussuhde oli keskimäärin >1 , mikä viittaa sen nuoreen ikään ja saostumiseen pohjavedestä. Tarkemmat iänmääritykset oli suunniteltu tehtävän Nu Plasma HR -laitteella GTK:ssa. U-Th-suhteeseen perustuva iänmäärittäminen ei ole vielä toiminnassa. [5]

Tutkimuksen toisessa osassa uraanin diffuusiota graniittiin tutkittiin laboratorioskaalan blokkikokein. Köyhdytetystä uraanista valmistettu pelletti oli sijoitettu $30 \times 30 \times 30$ cm graniittiblokin keskireikään, jossa sen annettiin liueta pohjavesisimulanttiin. Uraanin kulkeutumista hapellisissa olosuhteissa sen ollessa hapetusasteella $+6$ muodossa UO_2^{2+} ympäröivään kivimatriisiin seurattiin ottamalla vesinäytteitä keskireikää ympäröivistä, eri etäisyyksillä olevista seurantareikistä ja määrittämällä niiden uraanipitoisuudet ICP-MS -mittauksin. Uraanin diffuusiokokeen kanssa samanaikaisesti tehtiin vastaavissa olosuhteissa myös tritiumin ja kloorin diffuusiokokeet, joiden tarkoituksena oli selvittää ja todentaa diffuusiokoejärjestelyjen toimivuus. Tästä kokeesta laskettiin efektiiviset diffuusiokertoimet kloorille ja tritiumille ja verrattiin näiden alkuaineiden liikkuvuutta kivessä hitaammin liikkuviin uraanin karbonaatti- ja hydroksikomplekseihin. Tritiumille kerroin oli $8,2 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ ja kloorille $1,9 \times 10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$. Laboratoriokokein määritetty diffuusionopeus on hyvin linjassa mallintamalla saatujen tulosten kanssa (Kuva 42). [6]

Blokkikoe jatkuu kunnes läpιδiffuusiokäyrä saavuttaa tasapainon. Uraanin efektiivinen diffuusiokerroin lasketaan, kun tasapaino on saavutettu.

Kuva 42. Uraanipitoisuuden kasvu keskireiän pohjavesisimulantissa liukene-
misen vaikutuksesta (vasen) ja kulkeutumisen vaikutuksesta kohoava pitoi-
suus seurantareikä A2:ssa (1 cm injektioreiästä) (oikea).



TULOSTEN MERKITYS JA HYÖDYNNETTÄVYYS

Hankkeesta saatujen tulosten perusteella uraani pidättyy hapellisissa olosuhteissa saostumalla kiven pelkistävien mineraalien tuntumaan ja muodostamalla pelkistymisen seurauksena sekundääriuraanifaaseja kiven mikrorakoihin. Uraani on indikaattori kiven vettä johtavien rakojen redox-vyöhykkeen arvioinnissa. Tutkimuksissa ei havaittu uraenin sorboituvan kiven mineraaleihin ns. K_d -konseptin mukaisesti. Uraanin geokemiallisten prosessien ymmärtäminen lisääntyi arvioidessamme uraanin kulkeutumista ydinjätteen kallioperäloppusijoituksen yhteydessä. Tutkimustuloksia tarkasteltiin geokemiallisten mallien avulla, jotta ymmärrettäisiin niitä mekanismeja, joilla radionuklidien pidäytyminen kallioperäkulkeutumisessa tapahtuu. Kulkeutumis- ja geokemiallisen mallinnuksen yhdistäminen oli projektin lopullinen tavoite, mutta se jäi saavuttamatta rahoituksen loputtua. [7,8]

TUTKIMUKSESSA KÄYTETYT MENETELMÄT

Autoradiografia-menetelmää käytettiin kiviläytteen huokoisuuden mittaamiseen sekä näytteen rakenne- ja huokosverkon kuvantamiseen. Menetelmässä kiviläyte impregnoitetaan ^{14}C -merkityllä juoksevalla metyylimetakrylaatilla, joka polymeroidaan näytteen huokostilaan kuumentamalla tai säteilyttämällä. Näytteestä valmistetut tasapintaiset alinäytteet sijoitetaan röntgenfilmille, johon radioaktiivisen hajoamisen seurauksena muodostuu kuva huokostiloista sekä luonnon radioaktiivisuuden sijainnista. Kuvia voidaan käyttää lisäksi kulkeutumismallinnuksen reittien lähtötietona sekä elektronimikroskopian apuna etsiessä näytteestä radioaktiivisia mineraaleja.

Elektronimikroskooppin kytkettyä energiadiispersiivistä spektrometriä (SEM-EDS) käytettiin uraanimineraalien kuvaamiseen sekä mineraalien koostumuksen määrittämiseen ja sen myötä faasien tunnistamiseen.

Laser ablaatio-induktiivisesti kytkettyä massaspektrometriä (LA-ICP-MS) käytettiin uraanimineraalien $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ aktiivisuussuhteen määrittämiseen kiviläytteistä. Menetelmällä poltetaan laserilla irti haluttu osa kiinteästä näytteestä, kaasua ionisoidaan ja sen koostumus analysoidaan ionien massaeroihin perustuvalla menetelmällä. Lasersäteen halkaisijaa muuttamalla saadaan irrotettua juuri haluttu kohta näytteestä, mutta tällöin laserin täytyy porautua syvemmälle näytteeseen analyysiin vaaditun ionimäärän takaamiseksi. ICP-MS-menetelmää käytettiin uraanin blokkiskaalan diffuusiokokeissa. Menetelmällä seurattiin uraanipitoisuuden muutoksia kiveen poratuissa seurantareijissä.

Hydrogeokemiallista mallinnusohjelmaa PHREEQC käytettiin luonnon uraanin käyttäytymisen mallintamiseen Askolan näytteitä vastaavassa kivimatriisissa. Ohjelmalla voi laskea esim. vesifaasin alkuainekoostumuksen, happamuuden tai happipitoisuuden vaikutusta saostuviin mineraaleihin. Kulkeutumista kivimatriisissa mallinnettiin myös Comsol Multiphysics -ohjelmalla.

Viitteet

- 1 Markovaara-Koivisto M, Marcos N, Read D, Lindberg A, Siitari-Kauppi M, Loukola-Ruskeeniemi K (2007). Release of U, REE and Th from Palmottu granite. Symposium Proceedings, Material Research Society, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXI. Vol 1107 pp.637-644.
- 2 Markovaara-Koivisto M (2007). Luonnon uraanimineraalit Askolan esiintymässä sekä laboratoriokokeissa saostuneet uraanimineraalit. Geologian valtakunnalliset tutkijapäivät 6-8.3.2007, Helsinki, Kumpula. Publication of the Department of Geology A2, pp. 37.
- 3 Markovaara-Koivisto M, Read D, Lindberg A, Siitari-Kauppi M, Loukola-Ruskeeniemi K (2008). A study of uranium mineralogy at the Askola natural uranium deposit, Southern Finland. Symposium Proceedings, Material Research Society, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXII.

- 4 Jokelainen L, Markovaara-Koivisto M, Read D, Siitari-Kauppi M, Hellmuth K-H (2010). Understanding the Uranium behaviour in Askola ore deposit using PhreeqC modelling. *Radiochimica Acta*: Vol. 98, Issue 9-11, Migration 2009, pp. 743-747. doi: 10.1524/ract.2010.1776
- 5 Markovaara-Koivisto M, Siitari-Kauppi M, Read D and Lindberg A (2008). Use of the LA-ICP-MS technique for radiometric dating of secondary U silicates. Abstract 9th European Workshop on Laser Ablation in Elemental and Isotopic Analysis. pp. 112
- 6 Jokelainen L, Ikonen J, Read D, Hellmuth K-H, Siitari-Kauppi M (2009). The diffusion of tritiated water, chloride and uranium through granite. *Symposium Proceedings, Materials Research Society Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXXIII*. Vol 1193 pp. 461-468.
- 7 Read D, Black S, Buckby T, Hellmuth K-H, Marcos N, Siitari-Kauppi M (2008). Secondary Uranium Mineralization in Southern Finland and its Relationship to Recent Glacial Events, *Global and Planetary Change*, Volume 60, Issues 3-4, Pages 235-249
- 8 Falck W E, Read D, Black S, Thornley D, Markovaara-Koivisto M, Siitari-Kauppi M (2008). Understanding Uranium Migration in Hard Rocks. Presented in *Uranium, Mining and Hydrogeology*. pp. 19-26.

8.25 Kolmenarvoisten aktinidien kiinnittyminen savi- ja (hydr)oksidimineraalien pinnoille

Nina Huittinen, Helsingin yliopisto, Radiokemian laboratorio

HANKKEEN TULOKSET

Hankkeen tavoitteena oli ymmärtää sorptioprosesseja ja mekanismeja ydinjätteessä esiintyvien kolmenarvoisten radionuklidien, erityisesti aktinidien, ja savi- ja (hydr)oksidimineraalien välillä. Työn perimmäisenä tavoitteena on ollut luoda tietoa ja uusia tutkimusmenetelmiä radionuklidien sorptiomekanismien selvittämiseksi ja siten tuottaa luotettavaa perustietoa mekanististen mallien käyttöön radionuklidien kulkeutumisen ennustamiseksi kallioperässä. Koska työssä käytetyt tutkimusmenetelmät ovat herkkiä epäpuhtauksille, tutkimuksia varten syntetisoitiin mahdollisimman puhtaita mineraaleja. Sorptiomekanismien molekyylitason ymmärtämisen mahdollistamiseksi työhön valittiin yksinkertaisia mallimineraaleja kuten puhdas alumiinihydroksidi, gibbsiitti ja yksinkertainen 1:1 kerroksinen savimineraali, kaoliniitti. Kiinteän faasin NMR-tutkimukset osoittautuivat hankaliksi alumiinihydroksidilla, jonka protonisignaalit ovat lähtöisin lähinnä mineraalin bulkista, joten näihin tutkimuksiin käytettiin gibbsiitin sijasta α ja γ -alumiinioksidia. Hanke suoritettiin yhteistyössä seuraavien kansallisten ja kansainvälisten yhtiöiden/instituuttien kanssa.

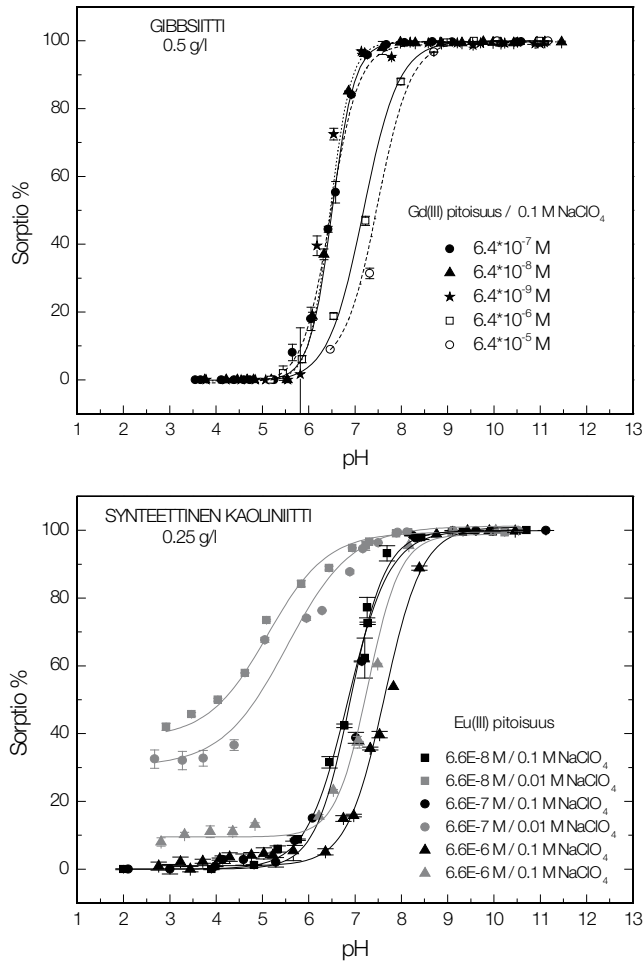
- Infrapuna (IR) mittaukset: Neste Oil Oy, Porvoo ja ASM, Helsinki
- Ydinresonanssi (NMR) spektrometria: Kansallinen kemiallisen fysiikan ja biofysiikan instituutti, Tallinna, Viro
- Laser-indusoitu fluoresenssispektroskopia (TRLFS/LIF): Institut für Nukleare Entsorgung (INE), Karlsruhe, Saksa
- Kaoliniittisynteesi: Université de Poitiers, Poitiers, Ranska

Hankkeen keskeiset tulokset on esitetty alla tutkimusmenetelmittäin.

ERÄSORPTIOKOKKEET

Ennen spektroskooppisia määrittäyksiä kolmenarvoisen metallin makroskooppista sorptiokäyttäytymistä tutkittiin sekä gibbsiitille että kaoliniitille. Kolmenarvoisten aktinidien analogeina käytettiin gibbsiitin sorptiokokeissa gadoliniumia ja kaoliniitin sorptiokokeissa europiumia. Kaikki kokeet tehtiin argonatmosfäärissä karbonaattikompleksaation poissulkemiseksi. Kuvassa 43 on esitetty kolmenarvoisen lantanidin sorptiokäyrät pH:n funktiona eri metalli-ionipitoisuuksissa. Ylemmässä on esitetty gadoliniumin sorptio gibbsiitin pinnalle 0.1 M NaClO₄-liuoksessa. Alemmassa on europiumin adsorptio synteettisen kaoliniitin pinnalle kahdessa eri ioninvahvuudessa; 0.1 M ja 0.01 M NaClO₄.

Kuva 43. Yllä gadoliniumin adsorptio gibbsiitin pinnalle pH:n funktiona. Alla europiumin adsorptio synteettisen kaoliiniitin pinnalle kahdessa eri ioninvahvuudessa pH:n funktiona.



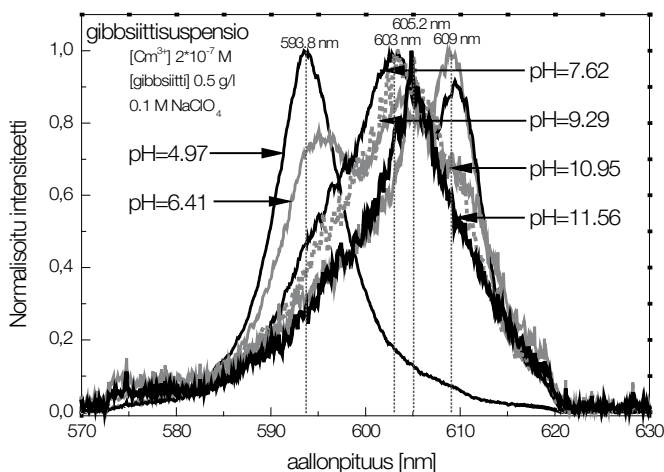
Ideaalisella sorptioalueella pH-käyrän sijainti tietylle kiinteän aineen pitoisuudelle on riippumaton käytetystä metalli-ionipitoisuudesta. Kun metalli-ionipitoisuus kasvaa, pintaryhmät saturoituvat ja pinnalle adsorboitunut positiivisesti varautunut kompleksi repulsoi liuoksessa olevia vapaita metalli-kationeita. Tämä havaitaan pH-käyrässä sen siirtymisellä korkeimmille pH-arvoille, ja se tapahtuu gadoliniumin sorptiokäyrissä metallipitoisuuden ylittäessä 6.4×10^{-7} M ja vastaavasti europiumin tapauksessa pitoisuuden ylittäessä 6.6×10^{-7} M kun matriisina on 0.1 M NaClO₄. Kaoliiniitin sorptiokäyrissä havaitaan myös suuri ero ioninvahvuuksien välillä. Mitä enemmän kilpailevia kationeja liuoksessa on, eli mitä korkeampi ioninvahvuus on, sitä vähemmän europiumia kiinnittyy pintaan ulkokompleksina.

LASER-INDUSOITU FLUORESENSSI SPEKTROSKOPIA (TRLFS/LIF)

Kolmenarvoisen aktinidin kompleksoitumista mineraalifaasin pinnalla tutkittiin LIF-menetelmällä Karlsruhessa, Saksassa. Kokeet tehtiin sekä gibbsiitti- että kaoliniittisuspensiossa käyttäen hyvin fluoresoivaa aktinidia, curiumia. Liuoksessa tai mineraalin pinnalla oleva Cm(III) viritettiin Nd:YAG:pumpatulla väriainelaserilla aallonpituudella 396.6 nm. Havaittu emissiospektri on riippuvainen Cm(III):n energiatasoista, jotka puolestaan ovat riippuvaisia metalli-ionin ympäristöstä. Curiumin kompleksoituessa emissiospektri siirtyy pidemmille aallonpituuksille ja tätä kautta pystytään arvioimaan gibbsiitin tai kaoliniitin pinnalle adsorboituneiden kompleksien määrät sekä näiden keskeiset suhteet.

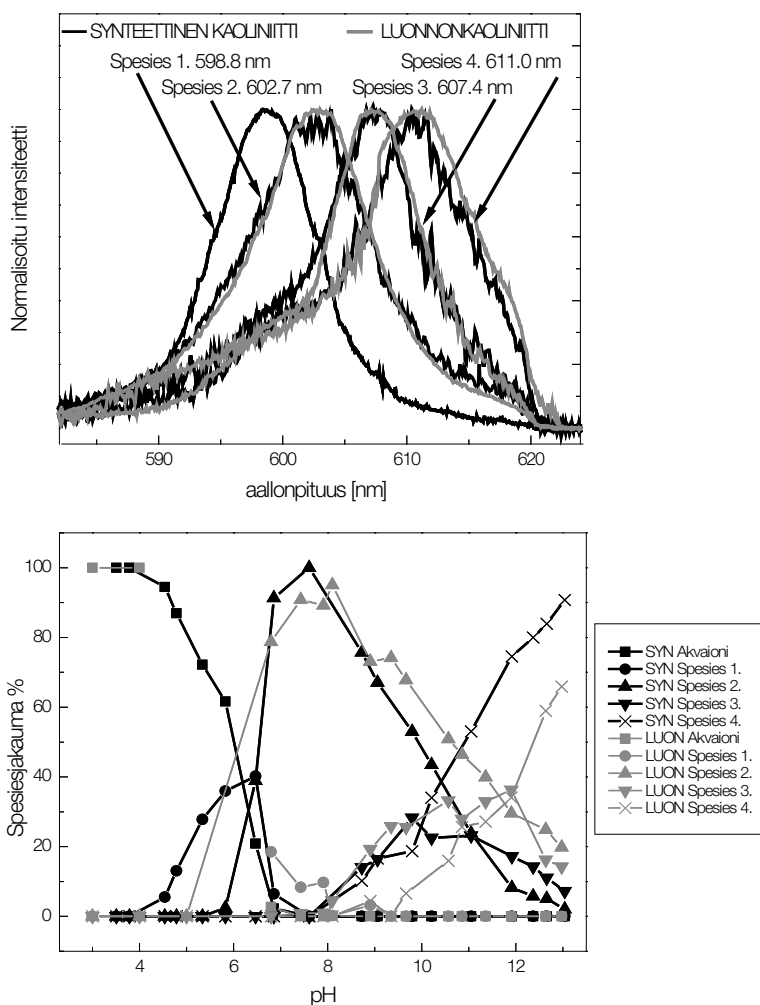
Eräsorptiokokeista kävi ilmi kolmenarvoisen gadoliniumin sorption gibbsiitin pintaan alkavan pH:ssa 5. Tässä pH-arvossa curiumin emissiospektri muuttuu hieman puhtaan akvaation spektristä viitaten curiumin ligandikentän muuttumiseen sisäkompleksin muodostuessa. Curiumin spesiaatio gibbsiittisuspensiossa on hyvin riippuvainen vallitsevista pH-oloista sekä liuenneen alumiinin määrästä. Alumiinin liukoisuus on pienimmillään neutraalissa pH:ssa ja kasvaa sekä pH:n laskiessa että sen kasvaessa. Kun siirrytään alumiinin korkeammasta liukoisuusalueesta kohti pienempää liukoisuutta, saadaan suspensiossa aikaiseksi ylikylläiset olosuhteet ja alumiinihydroksidia saostuu suspensiosta. Tämä saostuma inkorporoi gibbsiitin pinnalle adsorboituneen curiumin. Kun jälleen siirrytään kohti korkeampaa alumiinin liukoisuutta, inkorporoiva saostuma liukenee ja vapauttaa curiumin pintakompleksin. Kuvassa 44 on esitetty curiumin emissiospektrejä eri pH-arvoissa. Inkorporoituneen curiumin emissiopiikin keskikohta on 609 nanometrissä. Tämän lisäksi suspensiossa havaitaan kaksi pintakompleksia aallonpituuksilla 603 nm ja 605.2 nm.

Kuva 44. Curiumin emissiospektrejä gibbsiittisuspensiossa. Emissiospektrien perusteella havaitaan kaksi pintakompleksia aallonpituuksilla 603 nm ja 605.2 nm. Noin 609 nm piikki, joka esiintyy pH:ssa 6.41–10.95 on peräisin inkorporoituneesta curiumista.



Luonnon kaoliniittia Englannin St. Austell:sta on aikaisemmin käytetty LIF-tutkimuksissa curiumin adsorption tutkimiseen. Tämä LIF-tutkimus suoritettiin pH:n alueella 3.5–8.5. Teimme samankaltaisen LIF-tutkimuksen omalle synteettiselle kaoliniitille pH:n alueella 4–13 ja vertailun vuoksi jatkoimme luonnon kaoliniitin LIF-tutkimuksia pH 7:stä pH 13:een asti. LIF-tutkimuksissa identifioimme kolme kaoliniitin pintaan adsorboitunutta Cm(III):n pintakompleksia sekä neljännen Cm(III)-spesiesin alkalisessa liuoksessa (pH>9). Tämä spesies osoittautui curiumin silikaattikompleksiksi, joka muodostuu curiumin ja suspensioon liunneen piin välillä. Piikkien huiput ovat aallonpituuksilla 598.8 nm, 602.7 nm, 607.4 nm ja 611.0 nm (Kuva 45, ylempi). Kuvassa 45 (alempi) on esitetty näiden spesiesten jakauma pH:n funktiona.

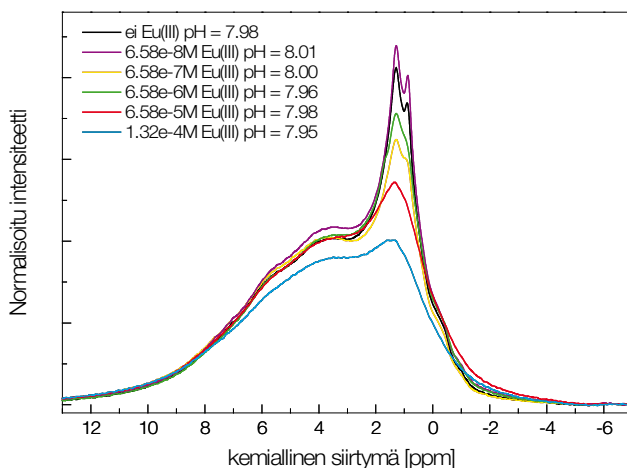
Kuva 45. Kaoliniittisuspensiosta identifioitiin neljä curium spesiestä emissio-
opiikkien perusteella (ylempi kuva). Alemmassa kuvassa on esitetty näiden
spesiesten jakauma pH:n funktiona. (SYN = synteettinen kaoliniitti, LUON =
luonnonkaoliniitti)

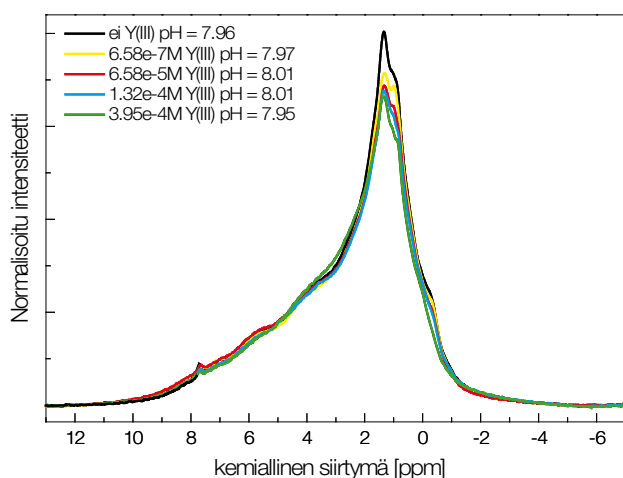


¹H NMR TUTKIMUKSET

Kolmenarvoisten metalli-ionien Eu(III) ja Y(III) spesifistä adsorptiota α -aluminan ja γ -aluminan pintaan tutkittiin ¹H ja ²⁷Al NMR-spektroskopiolla. NMR-kokeiden tarkoituksena oli selvittää kolmenarvoisen metallin spesifistä sitoutumista mineraalien pinnoilla oleviin hydroksyyliiryhmiin ja mahdollisesti saada tietoa metallin koordinaatiosta mineraalipintoihin. Havaitimme γ -aluminan tapauksessa mineraalin pinnalla tapahtuvien protonoitumis- ja dissosioitumisreaktioiden vaikuttavan mitattuun protonispektriin. Tämän takia Eu(III)- ja Y(III)-näytteet valmistettiin mahdollisimman identtisissä pH-oloissa (8.00 ± 0.05). Alla olevista γ -aluminan protonispektreistä (Kuva 46) havaitaan europiumin vaikuttavan protonipiikkien intensiteettiin huomattavasti enemmän kuin yttrium. Tämä johtuu europiumin paramagneettisuudesta. Yttrium ei aiheuta suuria muutoksia γ -aluminan protonispektrissä muuta kuin kahden intensiivisimmän protonipiikin intensiteetteihin. Koska olemme havainneet samat piikit myös α -aluminan spektrissä sekä amorfisen piioksidin, silikan, spektrissä, oletimme näiden piikkien johtuvan pinnalle fysisorboituneesta vedestä. Mitä enemmän yttriumia mineraalin pinnalla on, sitä vähemmän vettä voi adsorboitua vetysidoksin sen pinnalle.

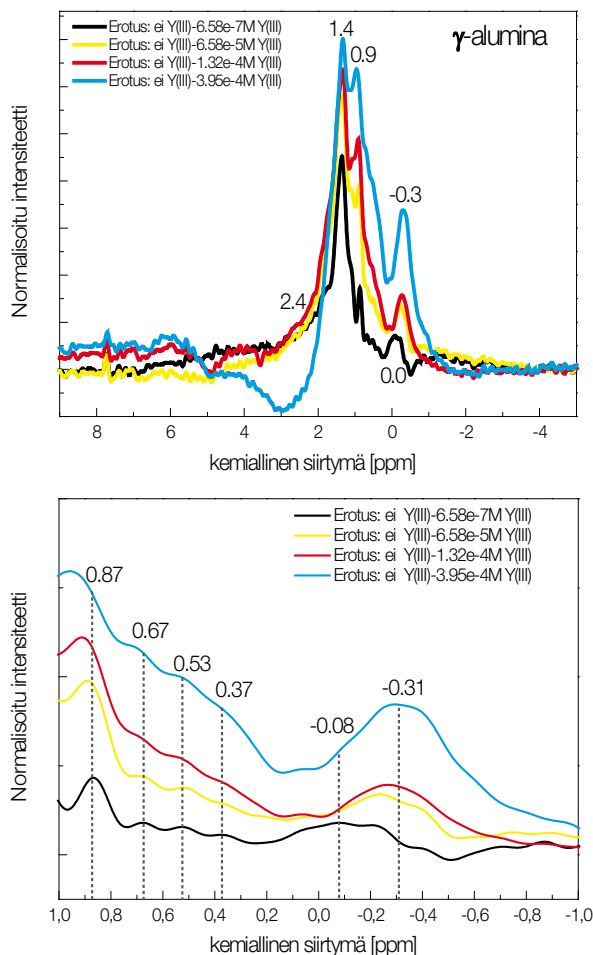
Kuva 46. γ -aluminan protonispektrejä eri metalli-ionipitoisuuksilla. Europium vaikuttaa protonipiikkien intensiteettiin huomattavasti enemmän kuin yttrium tämän paramagneettisuuden takia.





Protonispektrin hienorakenteen selvittämiseksi vähensimme puhtaasta mineraalista saadun protonispektrin yttriumnäytteistä saaduista spektreistä. Tulokset on esitetty kuvassa 47. Fysisorboituneen veden protonipiikit 1.3 ja 0.9 ppm:n siirtymillä pienenevät kasvavan yttriumpitoisuuden funktiona. Tämä havaitaan erotusspektreissä piikkien intensiteettien kasvuna. Happamat protonit kemiallisilla siirtymillä > 2ppm eivät selvästi osallistu yttriumin kompleksoitumiseen näiden piikkien puuttuessa erotusspektristä. Negatiivinen piikki noin 3 ppm:n kemiallisella siirtymällä korkeimmassa yttriumpitoisuudessa on liuoksesta saostunutta $Y(OH)_3$:a. Etenkin erotusspektrin suurennoksesta huomataan vaihtuvien protonien lukumäärän olevan melko suuri. Kyseessä ei siis ole yksi tai kaksi hyvin spesifistä sorptiopaikkaa vaan suurempi joukko samankaltaisia sorptiopaikkoja, joihin kolmenarvoinen metalli-ioni kiinnittyy. Tällaiset hyvin samankaltaiset sorptiopaikat selittyvät esimerkiksi eri O-H sidospituuksilla tai alumiinin koordinaatioluvulla. Mitä suurempi alumiinin koordinaatio ympäröiviin happiin on, sitä suurempi on hapen suhteellinen negatiivinen varaus. Tämä puolestaan vaikuttaa pintaprotonin kemialliseen siirtymään.

Kuva 47. Ylemmässä kuvassa erotusspektrejä, jotka on saatu vähentämällä puhtaan mineraalin protonispektri yttrium näytteistä saaduista spektreistä. Alemmassa kuvassa suurennos 1-(-1) ppm:n alueesta.



YHTEENVETO

Tässä tutkimuksessa on tuotettu merkittävää uutta atomitasoista tietoa kolmenarvoisten aktinidien sorptiomekanismien selvittämiseksi kallioperän mineraalien pinnoille sekä otettu käyttöön uusia aiemmin Suomessa, ja kansainvälisestikin, käytettävissä olevia menetelmiä. LIF-kokeista saatiin tärkeitä tietoja kolmenarvoisen aktinidin spesiaatiosta gibbsiitti- ja kaoliniittisuspensioissa. Kummassakin systeemissä mineraalista liuenneet metallit vaikuttivat merkittävästi curiumin spesiaatioon. Varsinkin inkorporaatio on mekanismi, joka pidättää curiumia eri tavalla kuin sisäkompleksin muodostuminen. Sisäkompleksi saattaa desorboitua pH-olosuhteiden vaihtuessa kun puolestaan inkorporoitunut curium mobilisoituu vain ja ainoastaan

mineraalin liuetessa. Tällaisia mekanismeja ei pystytä yksinkertaisilla eräsorptioko-keilla havaitsemaan ja ne on otettava huomioon sekä pintakompleksaatiomallinnuk- sessa että radionuklidien kulkeutumismalleissa. NMR-kokeet ovat kansainvälisesti- kin ensimmäisiä laatuaan, eikä kolmenarvoisten metallien spesifistä adsorptiota alu- miinioksidiin ole ennen yritetty selvittää tätä menetelmää käyttäen. Kokeista sel- visi metalli-ionin kiinnittymisen tapahtuvan suureen joukkoon pintaryhmiä. Myös siltaavat OH-ryhmät (esim $(\text{AlVI})_2\text{-OH}$), joiden monessa tutkimuksessa ei oleteta adsorboivan metalleja, havaittiin osallistuvan yttriumin adsorptioon. Tämä on otet- tava huomioon tulevissa sorptio- ja kulkeutumismalleissa, vaikka se ei suoranaisesti sorption määrään vaikuta.

Tuloksista on julkaistu kaksi tieteellistä artikkelia, ja käsikirjoitus kolmatta jul- kaisua varten on lähetetty aikakausilehteen. Lisäksi tuloksia on esitetty useassa radiokemian alan konferenssissa sekä suullisesti että posteresityksellä.

8.26 Käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoittamisen ekologinen riskinarviointi metsäekosysteemeissä

Jukka Juutilainen, Päivi Roivainen, Tiina Boman, Sari Makkonen, Toini Holopainen, Mikko Kolehmainen, Jonne Naarala, Itä-Suomen yliopisto, Kuopion kampus

TAUSTAA

Radionuklidien siirtyminen maaperästä kasvillisuuteen on tärkeä prosessi eliöiden altistumisen kannalta. Tätä siirtymää kuvataan radioekologisessa mallinnuksessa yleisesti siirtokertoimella eli kasvin ja maaperän välisten pitoisuuksien suhteella. Ydinjätteessä olevien radionuklidien siirtokertoimia on muutamia poikkeuksia lukuun ottamatta tutkittu vähän etenkin metsäekosysteemeissä. Tiedon puutteiden merkitys korostuu edelleen suomalaisissa ympäristöolosuhteissa, jotka voivat olla huomattavan erilaisia esimerkiksi Etelä-Eurooppaan verrattuna. Tämän, vuosina 2006–2010 toteutetun, hankkeen tarkoituksena oli tuottaa tietoa ydinjätteen loppusijoitukseen sekä suomalaisiin ympäristöolosuhteisiin sovelletun radioekologisen mallinnuksen tarpeisiin.

Hankkeen tärkeimpänä tavoitteena oli tutkia loppusijoituksen turvallisuuden kannalta tärkeiden alkuaineiden (Co, Mo, Ni, Pb, U) kulkeutumista maaperän ja kasvien välisissä prosesseissa. Hankkeessa laskettiin siirtokertoimia näiden aineiden siirtymiselle maaperästä kasveihin ja selvitettiin, missä määrin on mahdollista käyttää samaa siirtokerrointa eri kasveille ja kasvinosille. Myös kasvupaikkatekijöiden ja eri alkuaineiden välisten vuorovaikutusten merkitystä siirtokertoimien kannalta selvitettiin. Lisäksi tutkittiin siirtokertoimien lineaarisuusoletuksen (malleihin sisältyvä oletus maaperän ja kasvien pitoisuuksien välisestä lineaarisesta riippuvuudesta) paikkansapitävyyttä. Hankkeessa pyrittiin myös pienimuotoisesti selvittämään alkuaineiden siirtymistä maaperästä lieroihin ja maakiitäjäisiin.

MENETELMÄT

Hanke perustui kahdelta pohjoissavolaiselta uraaniesiintymältä kesällä 2007 kerättyyn aineistoon. Murtolahden näytteenottopaikalta Nilsistästä kerättiin näytteitä maaperästä (29 kpl), karikkeesta (29 kpl), pihlajasta (28 kpl), metsäalvejuuresta (27 kpl), kuusesta (26 kpl) ja oravanmarjasta (19 kpl). Toinen näytteenottopaikka sijaitsi Kuopion Puutosmäessä ja sieltä kerättiin näytteitä maaperän (23 kpl) lisäksi mustikasta (23 kpl) ja kuusesta (16 kpl). Jokainen aluskasvillisuusnäyte jaettiin edelleen lehtiin, varsiin ja juuriin. Puunäytteet jaettiin lehtiin/neulasiin sekä hienijuuriin (halkaisija < 2mm) ja karkeisiin juuriin (halkaisija > 2mm).

Liero- ja maakiitäjäisnäytteitä kerättiin vuonna 2007 molemmilta näytteenotto- paikoilta, mutta Puutosmäestä ei saatu pyydystettyä yhtään eläintä. Vuonna 2008 näytteitä kerättiin vain Murtolahdesta. Analyysejä varten vierekkäisten näytteenottopisteiden eläimiä jouduttiin yhdistelemään riittävän näytemassan saamiseksi

analyysijä varten. Koska sekä lieroja että maakiitäjäisiä on eri lajeja, jaottelu eri lajeihin pyrittiin ottamaan yhdistelyssä huomioon mahdollisuuksien mukaan. Analysoituja maakiitäjäisnäytteitä oli 24 kpl vuonna 2007 ja 5 kpl vuonna 2008. Lieronäytteitä oli vuonna 2007 4 kpl ja vuonna 2008 7 kpl. Siirtokertoimia laskettaessa molempien vuosien aineisto yhdistettiin.

Tutkimuksessa hyödynnettiin oletusta, jonka mukaan kunkin alkuaineen isotoopit käyttäytyvät samalla tavalla ympäristössä. Yksittäisten radionuklidien aktiivisuuspitoisuuksien sijaan näytteistä määritettiin alkuaineiden kokonaispitoisuudet ICP-menetelmällä (Inductively coupled plasma), jolloin samalla analyysillä saatiin yhteensä 34 alkuaineen kokonaispitoisuudet. Lisäksi maaperänäytteistä analysoitiin kunkin aineen helppoliukoinen pitoisuus ammoniumasetaattiuuton avulla sekä maaperän ominaisuuksista pH, orgaanisen aineksen osuus ja partikkelikokojakauma.

Määritettyjen alkuainepitoisuuksien perusteella laskettiin mallinnuksessa tarvittavia siirtokertoimia (CR) koboltille, lyijylle, molybdeenille, nikkelille sekä uraanille seuraavasti: $CR = C_{eliö} / C_{maaperä}$, jossa $C_{eliö}$ on alkuaineen pitoisuus eliössä ($mg\ kg^{-1}\ DW$) ja $C_{maaperä}$ alkuaineen pitoisuus maaperässä ($mg\ kg^{-1}\ DW$). Lisäksi selvitettiin regressioanalyysillä sitä, miten maaperän ominaisuudet ja alkuaineiden väliset vuorovaikutukset vaikuttavat siirtokertoimiin.

Edellä esitetyllä yhtälöllä määritettäviin siirtokertoimiin liittyy oletus siitä, että eliön ja maaperän pitoisuuksien välillä on lineaarinen riippuvuus. Tämän oletuksen paikkansapitävyyttä kasvien siirtokertoimien kohdalla tarkasteltiin vertailemalla kerätyn aineiston yhteensopivuutta lineaarisen mallin (vakio siirtokerroin) ja Langmuirin yhtälöön perustuvan epälineaarisen mallin ($CR = C_{kasvi} / C_{maaperä} = a / (1 + b C_{maaperä}) + c$) kanssa.

KESKEISET TULOKSET

Siirtokertoimet maaperästä juuriin olivat suurempia kuin maaperästä varsiin ja lehtiin kaikkien tutkittujen alkuaineiden ja kasvilajien tapauksissa. Tulosten perusteella voidaan siis suositella, että myös alkuaineiden kertyminen juuriin huomioidaan. Yleisesti siirtokertoimien vaihtelu oli suurta. Kasvilajien väliset erot eivät olleet merkittävästi suurempia kuin kunkin kasvilajin sisäinen vaihtelu. Täten saman siirtokertoimen käyttäminen eri kasvilajeille on perusteltua, mikä yksinkertaistaa mallintamista. Taulukkoon 8 on koottu siirtokertoimet aluskasvillisuuden lehtiin ja juuriin sekä puiden lehtiin/neulasiin ja hienojuuriin. Hankkeen tulosten perusteella maaperän fosforipitoisuus on tärkein tutkittujen alkuaineiden siirtokertoimiin vaikuttava ravinne.

Siirtokertoimet lieroihin olivat suurempia kuin maakiitäjäisiin (Taulukko 8). Lie-rojen siirtokertoimet olivat pääasiassa samaa suuruusluokkaa juurten siirtokerrointen kanssa ja maakiitäjäisten kertoimet lehtien kerrointen kanssa.

Taulukko 8. Kobolttin, lyijyn, molybdeenin, nikkelin ja uraanin siirtokertoimet aluskasvillisuuteen (n =69), puihin (n=70), lieroihin (n=11) ja maakiitäjäisiin (n=29). Taulukossa esitetään kerrointen geometrinen keskiarvo ja keskihajonta.

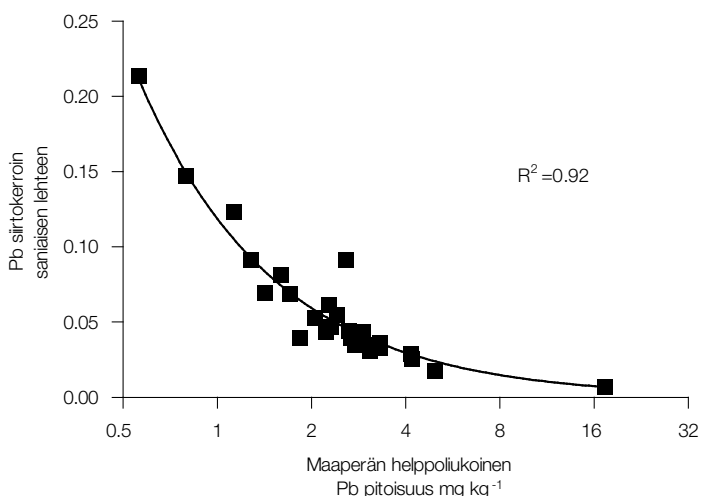
Eliö	Co	Mo	Ni	Pb	U ¹
lehti, aluskasvillisuus	0.04 (2.48)	0.17 (3.66)	0.30 (1.68)	0.01 (2.43)	0.005 (3.18)
juuri, aluskasvillisuus	0.19 (3.04)	0.33 (3.23)	0.63 (1.82)	0.14 (2.18)	0.06 (3.49)
lehti/neulanen, puut	0.05 (2.11)	0.07 (4.49)	0.28 (2.44)	0.01 (2.09)	0.004 (3.77)
hienojuuri, puut	0.64 (2.94)	0.43 (2.88)	0.77 (1.87)	0.54 (2.35)	0.27 (4.27)
liero	0.85 (1.83)	0.49 (2.59)	0.26 (2.11)	0.24 (3.74)	0.52 (4.59)
maakiitäjäinen	0.03 (1.65)	0.69 (3.55)	0.05 (1.49)	0.008(1.66) ²	0.005 (1.93)

1 Tulokset perustuvat vain Murtolahden aineistoon, sillä Puutosmäen kasvillisuudessa pitoisuudet olivat alle määrittäysrajan (0,01) eikä eläimiä saatu sieltä pyydystettyä.

2 Laskettu vain vuoden 2008 tulosten perusteella, sillä vuonna 2007 kaikki pitoisuudet kovakuoriaisissa alle määrittäysrajan (0,05).

Siirtokerroimiin liittyvää lineaarisuusoletusta tutkittiin kasvien siirtokerrointen osalta. Kaikkien tutkittujen alkuaineiden ja kasvilajien kohdalla havaittiin, että siirtokertoimet pienenivät maaperän pitoisuuden kasvaessa (Kuva 48). Epälineaarinen malli kuvasi siirtokerroimien ja maaperän pitoisuuksien välistä yhteyttä huomattavasti paremmin kuin lineaarinen sovitus. Tämä havaittiin johdonmukaisesti sekä maaperän kokonaispitoisuuteen että helppoliukoiseen pitoisuuteen perustuvilla siirtokerroimilla. Osa empiirisiin siirtokerroimiin liittyvästä suuresta vaihtelusta voi olla systemaattista, maaperän pitoisuudesta riippuvaa vaihtelua. Epälineaaristen menetelmien käyttö voisi parantaa tarkkuutta mallinnettaessa alkuaineiden siirtymistä maaperästä kasvillisuuteen.

Kuva 48. Lyijyn siirtokerroin saniaisen lehteen maaperän helppoliukoisen lyijypitoisuuden funktiona. Aineistoon on sovitettu epälineaarinen yhtälö ($Y = a / (1 + b Cs) + c$), jonka selitysastetta R^2 – arvo kuvaa.



TULOSTEN MERKITTÄVYYS JA HYÖDYNNETTÄVYYS

Biosfäärimallinnus on oleellinen osa käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen riskien arviointia. Hankkeen tuottamaa empiiristä tietoa voidaan hyödyntää radioekologisten mallien validointiin sekä niissä käytettävien perusoletusten evaluointiin. Näin voidaan parantaa mallien osuvuutta ja soveltuvuutta Suomen oloihin. Lisäksi saatuja tuloksia voidaan hyödyntää uraanimalmin etsinnän ja Suomeen mahdollisesti perustettavien uraanikaivosten ympäristövaikutusten arvioinnissa.

8.27 ^{14}C -radionuklidin siirtyminen maaperästä kasveihin ja ilmakehään

Christina Biasi, Itä-Suomen yliopisto, Kuopion kampus

JOHDANTO

Radiohiilen (^{14}C) vapautuminen on mahdollista radioaktiivisten jätteiden geologisista loppusijoitusvarastoista, riski liittyy erityisesti matala- ja keskiaktiivisiin jätteisiin sekä käytettyyn polttoaineeseen. Kuitenkaan ^{14}C :n käyttäytymisestä ympäristössä, liikkumisesta/kertymistä biosfäärissä ja vapautumisesta ilmakehään ei ole yksityiskohtaista tutkittua tietoa.

TUTKIMUKSEN TARKOITUS

Työn yleisenä tarkoituksena oli määrittää ^{14}C :n vapautuminen maaperästä ilmakehään ja kuinka paljon tätä radionuklidia siirtyy maaperästä kasveihin, maaperän mikrobeihin ja maaperäeläimiin. Yksityiskohtaisemmat tavoitteet liittyivät seuraaviin seikkoihin 1) Ilmasto-olosuhteiden vaikutus ^{14}C -päästöihin; 2) Eri kasvilajien (heinä/puu) vaikutukset ^{14}C :n vapautumiseen maaperästä ("priming effect"); 3) kasvien ^{14}C -otto juurien kautta; 4) Kasvien ^{14}C -otto lehtien kautta; 5) ^{14}C :n siirtyminen juurista kasvien maanpäällisiin osiin; 6) Erot eri kasvilajien kyvyssä ottaa maaperän ^{14}C :ta; 7) Ympäristötekijöiden vaikutukset kasvien ^{14}C -ottoon maaperästä; 8) ^{14}C :n siirtyminen maaperässä mikrobeihin ja maaperäeläimiin.

MATERIAALI JA MENETELMÄT

Ongelman kokeellinen lähestymistapa: Jotta pystyttäisiin luotettavasti määrittämään ^{14}C :n siirtyminen maaperästä kasveihin ja ilmakehään, maaperän orgaanisen aineksen on omattava tietty ^{14}C -leima jakaantuneena tasaisesti eri komponentteihin. Tämä on mahdollista hyödynnettäessä tutkimuksessa vanhoja turvetuotantoalueita, joista lähes kaikki turve on poistettu ja sitten istutettu paikalle kasvillisuus (Kuva 49). Näillä alueilla on mahdollisimman suuri ikäero (ero ^{14}C -pitoisuudessa) maaperän ja kasvillisuuden välillä. Tätä innovatiivista lähestymistapaa kysymyksen tutkimiseen ei ole käytetty aiemmin. Turpeennostosta jäljelle jääneen turveprofiilin syvimmit vanhat turvekerrokset sisältävät vähemmän ^{14}C :ta kuin nuori alueelle kehittynyt kasvipeite. Merkittävää on, että ^{14}C on jakautunut tasaisesti alueen maaperän (turve) eri fraktioihin. Tämä on ideaalinen lähtökohta määritettäessä hiilen osavirrat isotoopein.

Laboratoriokokeet: Laboratoriokokeissa tutkittiin kahta kasvilajia; monivuotista ruokohelpeä (RCG) ja männyn taimia. Nämä kasvilajit valittiin, koska ne edustavat tyypillistä kasvillisuutta, jota hyödynnetään turvetuotantoalueiden jälkikäytössä. Näiden kasvien hiilitasetta tutkittiin yhtenä kasvukautena huomioiden myös lämpötilan vaikutus. ^{14}C -pitoisuudet määritettiin kasvien eri osista ja maaperästä (tur-

peesta) vapautuneesta CO₂:sta. Laboratoriossa tuotetusta aineistosta on valmistunut pro gradu-tutkielma (Promise 2010).

Kenttätutkimukset: Vuosina 2009 ja 2010 tehtiin sekä laboratorio- että kenttäkokeita. Kenttäkokeet toteutettiin Linnansuolla Itä-Suomessa. Linnansuolla on turpeennosto lopetettu ja alueen jäljellä olevaa turvemateriaalia käytettiin myös laboratoriokokeissa. Näissä kokeissa käytettiin kasveina ruokohelpeä ja mäntyä, jotka olivat tutkittavissa myös Linnansuon kenttäoloissa. Kentällä ruokohelpikasvuston CO₂:n vaihto kentän ja ilmakehän välillä tutkittiin alueella olevan eddy kovarianssilaitteiston avulla (Shurpali ym. 2009). Kentällä pystytettiin tutkimaan myös erilaisten hydrologisten olosuhteiden (vedenpinnan tasot, matala vesitaso, korkeampi vesitaso ja vesikyllästeinen tilanne) vaikutuksia. Eri vesitasot ovat tyypillisiä sekä luonnon-tilaisille että hyödynnetyille turvemaille. ¹⁴C-pitoisuudet ja määrät määritettiin kasvien eri osista (lehdet, varret, juuret), maaperästä, maaperästä hengityksessä vapautuneesta CO₂:sta, maaperän mikro-organismeista ja maaperäeläimistä sekä liuenneesta orgaanisesta aineksesta.

Analyysit ja laskut: Turpeen matala ¹⁴C-pitoisuus vaati, että analyysit oli tehtävä herkällä mutta samalla kalliilla massaspektrometrillä menetelmällä (AMS). Näytteet lähetettiin Radiohiiliajoituslaboratorion (Helsinki) kautta Ruotsiin analysoitaviksi tai suoraan Poznan radiohiiliajoituslaboratorioon (Puola). Maaperästä peräisin olevan hiilen osuus eri biologisissa komponenteissa voitiin määrittää soveltaen ”two-pool isotopic mixing”-mallia.

TULOKSET JA TULOSTEN TARKASTELU

Hengitystulokset osoittivat, että maaperästä peräisin olevan ¹⁴CO₂ :n (alkuperä maaperän orgaanisen aineksen eli turpeen hajoaminen) osuus oli vähäinen verrattuna kasvimateriaalista vapautuneen CO₂:n määrään. Maaperän kosteuden lisääntyminen laski ekosysteemin nettohiilenvaihtoa mutta ei vaikuttanut hengityksessä vapautuneen ¹⁴CO₂:n määrään: vaikutus oli siis sama maaperästä vapautuvaan ¹⁴CO₂:iin ja kasviperäiseen CO₂:iin. Lämpötilalla oli vähäinen vaikutus suhteelliseen ¹⁴C:n vapautumiseen, vaikka päästöt sinänsä lisääntyivät lämpötilan noustessa.

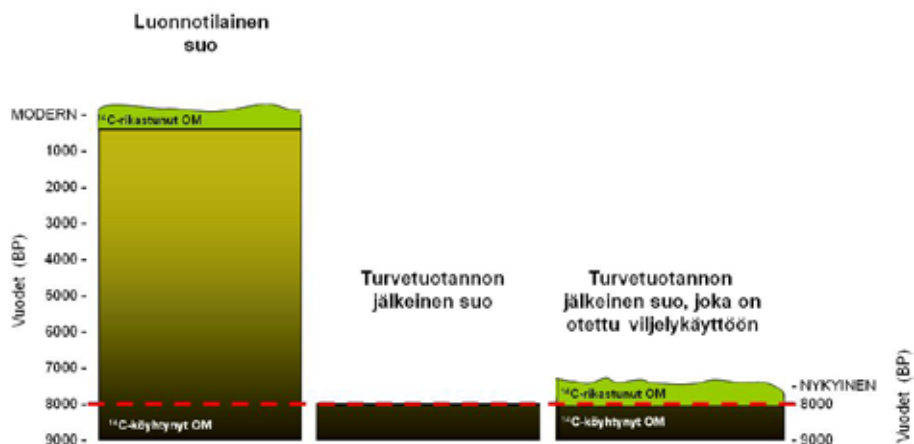
Maaperän mikrobibiomassan ¹⁴C-pitoisuus oli suuri (keskimäärin 63 %), mikä liittyy aiemmin esitettyyn ¹⁴CO₂-päästöön (mikrobien hengitys). Liuennut orgaaninen hiili yhdessä mikrobibiomassahiilen kanssa oli merkittävä komponentti maaperästä lähtevässä hiilivirrassa, joten huuhtoutuva ¹⁴C muodostaa merkittävän riskin vesiympäristön (mm. pohjavesi) saastumisessa. Maaperäeläinten ottama ¹⁴C-määrä oli vähäinen lukuun ottamatta kastematoja (23 %) ja hyttysiä (2.4 %). Lierot hyödyntävät maaperästä peräisin olevaa hiiltä ja hyttysten toukat voivat hyödyntää ojiin huuhtoutuvaa liuennutta orgaanista ainesta. Mesofaunan hiilenlähteenä on kuitenkin pääasiassa tuore kasviperäinen orgaaninen aines, ei niinkään maaperän vanha hiili.

Sekä ruokohelven että männyn rakenteissa maaperän hiilellä oli vähäinen osuus (Kuva 50). Ensimmäisten juurinäytteiden korkeaa ¹⁴C-pitoisuutta (22 %) ei havaittu myöhemmin ja tuota korkeaa ¹⁴C-pitoisuutta voitaneen pitää poikkeamana. Asiaa

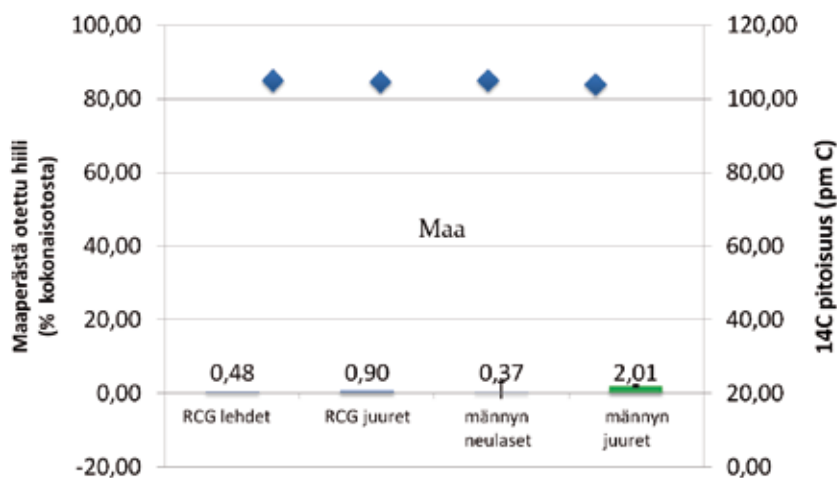
tutkitaan kuitenkin edelleen. ^{14}C -pitoisuus oli korkeampi juurissa (keskim. 2 %) kuin lehdistä (keskim. 0.9 %). Tulokset olivat aiempien havaintojen suuntaiset ja osoittavat, että kasvit ottavat juurien kautta vain muutaman prosentin hiilestään. Männyn juurten suurempi ^{14}C -pitoisuus liittyy juurten mykorritsasieniin, jotka pystyvät ottamaan maaperän aminohappoja ja tarjoamaan kasveille paitsi typpeä myös hiiltä. ^{14}C -signaalin vähäinen määrä lehdistä (0.4 - 0.5 %) osoittaa, että kasvit ottavat hiilensä valtaosaltaan ilmakehän CO_2 :sta (Kuva 50). Lehtien alhainen ^{14}C -määrä oli yllätys, sillä 15 % koko systeemin ^{14}C määrästä mitattiin kasvuston sisällä olevasta ilmamassasta. On mahdollista, että kasvit ottavat valtaosan CO_2 :sta latvustovyöhykkeestä, missä ilmamassa on hyvin sekoittunut ilmakehän kanssa, jolloin maaperässä olevan CO_2 :n osuus jää vähäiseksi. Tämä kysymys vaatii lisätutkimuksia. Nykyisten mallien mukaan maaperästä peräisin oleva CO_2 ("uudelleen assimilatio") voi vastata jopa 30 % kasvien CO_2 -otosta riippuen mitä oletustekijöitä on käytetty (esim. Rimers, SKB-Posiva, Bioprota 2010). Kuitenkin mitattu ^{14}C -pitoisuus hengitetyssä CO_2 :ssa oli mallien (Bioprota 2010) ennustaman mukainen.

Yhteenvedona voidaan todeta, että hankkeessa tuotettu tieto lisää ymmärrystämme maaperästä emittoituvan ^{14}C :n käyttäytymisestä ympäristössä. Tuloksia voidaan käyttää kalibroitaessa malleja kuten suuri kiinnostus tuloksiin kansainvälisessä Bioprota-kokouksessa (2010) osoitti (hankkeen johtaja esitti tuloksia tässä kokouksessa). Hankkeen tulokset eivät tue monien mallien osoittamaa maaperästä peräisin olevan hiilen suurta osuutta kasvien hiilen otossa. Yleistys ja ^{14}C oton mekanismien ymmärtäminen vaatii kuitenkin merkittävää panostusta jatkotutkimuksiin.

Kuva 49. Tutkimuksessa käytetyn ^{14}C -isotooppitekniikan periaate; turpeen nostossa on poistettu kasvillisuus ja päällimmäiset turvekerrokset, jolloin jäljelle on jäänyt vain vanha turve, jonka ^{14}C -isotooppikoostumus poikkeaa suuresti kehittyvän kasvuston ja siihen perustuvan nuoren orgaanisen aineksen ^{14}C -koostumuksesta. Tätä eroa isotooppikoostumuksessa käytetään määrittäessä esim. kuinka paljon kasvit ovat ottaneet maaperästä peräisin olevaa hiiltä.



Kuva 50. Ruokohelpibiomassan (RCG) ja männyn (vinoneliöt) maasta otettujen hiilen keskimääräinen prosentuaalinen osuus (palkkien yläpuolella olevat numerot). Kasvien käyttämien hiililähteiden (ilmakehä ja maa) ^{14}C -pitoisuus on esitetty vaakasuorin viivoin.



Viitteet

Bioprota. C-14 Long-Term Dose Assessment: Data Review, Scenario Development, and Model Comparison: Workshop report. Version 2.0 (final). L. Limer and M. Thorne (editors), Paris, France, April 2010.

Promise M.A., Fate of radionuclide ^{14}C in soil-plant-atmosphere continuum: a laboratory study with crop and tree species; Master of Science Thesis, 58 pages; University press; University of Eastern Finland, Department of Environmental Science, Kuopio, Finland, 2010.

Shurpali N J, Hyvonen N, Huttunen J T, Clement R, Reichstein M, Nykanen H, Biasi C and Martikainen P. Cultivation of a perennial grass for bioenergy on a boreal organic soil - carbon sink or source? Global Change Biology Bioenergy, 1(1), 35-50, 2009

8.28 Jyväskylän yliopiston ja Tampereen yliopiston yhteisprojektit vuosina 2008–2010

Tapio Litmanen, Jyväskylän yliopisto

Kansallisessa ydinjätetutkimusohjelmassa, KYT2010, Jyväskylän yliopiston Yhteiskuntatieteiden ja filosofian laitoksella sekä Tampereen yliopiston Poliitiikan tutkimuksen laitoksella oli vuosina 2008–2010 kaksi yhteistä tutkimusprojektia. Vuosina 2008–2009 toteutettiin tutkimusprojekti ”Seurantahanke käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituslaitoksen sosioekonomisista vaikutuksista ja tiedonvälityksestä Eurajoen ja sen naapurikuntien asukkaiden näkökulmasta” (SEURA). Vuonna 2010 toteutettiin projekti Teollisuustietoisuus ja käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen hyväksyttävyyys (TEKY). Tutkimuksien tavoitteena oli analysoida Eurajoen kunnan ja sen naapurikuntien kuntalaisten näkemyksiä 1) loppusijoituslaitoksen sosioekonomisista ja -poliittisista vaikutuksista ja 2) loppusijoitushankkeeseen liittyvistä tiedonhankintatarpeista ja -keinoista sekä 3) syventää ymmärrystä ydinvoimateollisuuden asemasta ydinvoimakunnassa sekä ydinjätehuollon kulttuurisesta hyväksyttävyydestä. Projektin kuluessa yhdeksi tavoitteeksi nousi myös ajankohtaisten ydinvoimapolitiittisten asioiden paikallisen käsittelyn seuraaminen yleisötilaisuustutkimuksilla.

Keskeiset tutkimustulokset on raportoitu projektin loppuraportissa *Community Divided* (Kari et al. 2010). Raportti perustuu kesäkuussa 2008 Eurajoella ja sen naapurikunnissa toteutettuun asukaskyselyyn, jonka otos oli 3000 ja vastausprosentti 20 % (N= 606). Tämän lisäksi kyseiseen aineistoon perustuvia tutkimustuloksia on raportoitu kolmessa kansainvälisessä tiedeartikkelissa (Kojo et al. 2010; Litmanen et al. 2010; Kojo et al. 2011) sekä useissa kansainvälisissä tieteellisissä konferensseissa (esim. Kojo et al. 2008; 2009a; 2009b; Kari 2009, 2010a, 2010b; Kojo & Kari 2010). Näiden lisäksi kolmen oheishankkeen tuloksia on raportoitu kolmessa työraportissa (Nurmi et al. 2009; Nurmi 2010; Pylkkönen et al. 2008).

KESKEISET TUTKIMUSTULOKSET

Raportissa ”Community Divided. Adaptation and Aversion towards the Spent Nuclear Fuel Repository in Eurajoki and its Neighbouring Municipalities” (Kari et al. 2010) käsitellään kahta erilaista lähestymistapaa, joiden avulla voidaan tulkita ydinteollisuuspaikkakunnan suhdetta loppusijoitukseen. Ydinkeidas-lähestymistavassa nähdään, että paikallinen hyväksyntä käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituslaitokselle perustuu pienen, syrjäisen kunnan suureen riippuvuuteen voimakkaasta ydinvoimateollisuudesta. Tämän tulkinnan haastava teollisuustietoisuus-näkökulma tulkitsee valmiutta hyväksyä loppusijoituslaitos kulttuurisen sopeutumisen näkökulmasta. Yhteisöllä ja sen asukkailla on läheiset suhteet ydinvoimateollisuuteen, mikä synnyttää kulttuurista sopeutumista, integroitumista ja ymmärrystä ydinteollisuuden toiminnalle.

Tulokset osoittavat, että ne Eurajoen asukkaat, jotka kokevat loppusijoituslaitosprojektin vaikutukset myönteisiksi kunnan yleiselle sosio-kulttuuriselle kehitykselle, ovat valmiimpia hyväksymään käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituslaitoksen Olkiluotoon. Taloudellisten ja työllisyystekijöiden havaittiin olevan merkittäviä hyväksynnän kannalta, mutta näiden tekijöiden painoarvo oli heikompi kuin yleisten sosio-kulttuuristen tekijöiden. Tämän kaltaiset havainnot puhuvat teollisuustietoisuus-lähestymistavan puolesta. Todellisuus on kuitenkin monimutkaisempi, koska asukkaiden kulttuurinen sopeutuminen ei etene harmonisesti, ilman säröjä, eikä levittäydy tasaisesti. Tutkimuksessa havaittiin piilevä sosiaalinen jakautuneisuus. Tämä tarkoittaa, että piilossa oleva jako erottelee jäsenet kahteen leiriin tai ryhmään, joiden välillä on olemassa konfliktin mahdollisuus. Esimerkiksi naisten ja miesten mielipiteet eroavat useimpien loppusijoitusasioiden suhteen. Puoluepoliittisesta näkökulmasta tulokset viittaavat siihen, että loppusijoitukseen suopeasti suhtautuvia löytyy todennäköisimmin Kansallista Kokoomusta, Suomen Keskustaa ja joissakin tapauksissa myös Suomen Sosiaalidemokraattista Puoluetta kannattavien riveistä. Loppusijoitukseen kielteisesti suuntautuvia asukkaita löytyy todennäköisemmin Vihreän liiton ja Suomen Kristillisdemokraattien kannattajien joukosta.

Aineiston analyysi osoittaa myös, että suurempi tuloisten, paremmin koulutettujen ja paremmassa ammattiasemassa olevien asenteet ovat huomattavasti myönteisempiä loppusijoitusta kohtaan kuin heidän, joilla on matalammat tulot, alhaisempi koulutustaso ja heikompi ammattiasema. Jossain tapauksissa erot ovat todella huomattavia. Henkilöt, joilla on suuremmat tulot, näyttävät kieltävän tai sietävän loppusijoituksen riskit tai jossain tapauksissa epäröivän riskien suhteen.

Sekä Säteilyturvakeskus (STUK) että ydinvoimateollisuus ovat onnistuneet vakiinnuttamaan melko luotetun aseman tiedonlähteinä paikallistasolla, mutta silti edellä mainittu sosiaalinen jako voidaan havaita myös tiedon vastaanottajien keskuudessa. Tämä tarkoittaa sitä, että paikallisissa asukkaissa on myös niitä, jotka eivät luota näihin toimijoihin tiedonlähteinä.

OHESSA TUOTETUT TUTKIMUSTULOKSET

Tutkimusprojektin ohessa toteutettiin kolme pienimuotoisempaa tutkimushanketta, joista yhdessä analysoitiin käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituslaitoksen laajennushankkeen yleisötilaisuuksia Eurajoella vuosina 2008–2009 (Nurmi et al. 2009) ja kahdessa muussa puolestaan tutkittiin Fennovoima Oy:n ydinvoimalahankkeen ympäristövaikutusten arviointi (YVA)- ja periaatepäätös (PAP) -tilaisuuksia (Pylkkönen et al. 2008; Nurmi 2010). Fennovoiman ydinvoimalahankkeen päätöksentekoprosessin tutkimisella haluttiin tuottaa ajantasaista tietoa siitä, kuinka ydinvoimalan mahdollisilla sijoituspaikkakunnilla keskustellaan paitsi hankkeesta myös ydinjäteasioista.

Ensimmäisessä tutkimusraportissa (Nurmi et al. 2009) analysoitiin Posiva Oy:n käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituslaitoksen laajennushankkeeseen liittyvissä yleisötilaisuuksissa esitettyjä puheenvuoroja. Yleisöpuheenvuorojen

sisällönanalyysin perusteella havaittiin, että hanketta koskevaa tietoa sekä päätöksentekoa käsittelevät pääluokat olivat suurimmat melkein kaikissa tilaisuuksissa. Hanke-pääluokassa esitettiin kommentteja hankkeen toteutuksesta, tietojen luotettavuudesta sekä vastuusta. Päätöksenteko-luokassa taas puhuttivat kunnallinen päätöksenteko sekä laajasti ydinvoimakeskustelu ja energiapolitiikka. Turvallisuuteen ja säteilyyn liittyvät kommentit koskivat yleistä turvallisuutta sekä koettua turvallisuuden tai turvattomuuden tunnetta. Sisällönanalyysissä havaittiin, että yleisötilaisuudet eivät antaneet vastauksia kaikkiin turvallisuuteen liittyviin kysymyksiin. Tilaisuuksissa esitettiin kritiikkiä siitä, ettei esitettyihin kysymyksiin saada vastauksia. Turvallisuuskysymykset näyttäisivät jäävän ainakin osin YVA- ja PAP-tilaisuuksia säätevien ydinennergialain ja YVA-lain väliin.

Toisessa tutkimusraportissa (Pylkkönen et al. 2008) analysoitiin Fennovoima Oy:n ydinvoimalaitosyksikköä koskevan ympäristövaikutusten arviointimenettelyn (YVA) ohjelmavaiheen yleisötilaisuuksien keskustelua. Raportissa selvitettiin, minkälaisiin sisältöluokkiin paikkakunnilla esitetyt puheenvuorot jakautuivat ja minkälaisia samankaltaisuuksia ja eroavaisuuksia keskusteluissa oli havaittavissa paikkakuntien välillä.

Kolmannessa tutkimusraportissa (Nurmi 2010) analysoitiin Fennovoima Oy:n ydinvoimalan periaatepäätöshakemukseen liittyvissä julkisissa kuulemistilaisuuksissa käytyä yleisökeskustelua. Tilaisuudet olivat osa ydinennergialain mukaista periaatepäätösmenettelyä. Työ- ja elinkeinoministeriö järjesti tilaisuudet toukokuussa 2009 Simossa, Pyhäjoella ja Ruotsinpyhtäällä.

TULOSTEN HYÖDYNTÄMINEN JA MERKITTÄVYYS

SEURA-kyselyn aineisto ja tulokset ovat hyödynnettävissä monella tavalla. Ensinnäkin ne tarjoavat viranomaisille, päättäjille, teollisuudelle ja kansalaisille päivitetyn kuvan Eurajoen kuntalaisten ja sen naapurikuntalaisten mielipiteistä koskien tiettyjä loppusijoitukseen liittyviä sosioekonomisia väittämiä. Toiseksi tutkimus antaa mahdollisuuden vertailla teollisuuden teettämien selvitysten ja KYT-tutkimuksen tuloksia. Vertailu auttaa paitsi pohtimaan tulosten luotettavuutta niin myös mahdollisia jatkotutkimustarpeita. Kolmanneksi tutkimus tuotti tietuiltä osa-alueilta (kuten internetin käyttö asukkaiden tiedonhankintavälineenä) ensimmäiset tulokset. Neljänneksi tutkimus nosti esiin aihepiirejä, joista asukkaat kaipaavat lisätietoja ja joista koetaan eniten uhkaa. Viidenneksi yhteiskuntatieteellinen ydinjätetutkimus on tärkeää ydinjätepolitiikan dokumentoinnin kannalta. Tämä on tärkeää muun muassa päätöksenteon läpinäkyvyyden kannalta. Kuudenneksi, tutkimusprojektin englanninkieliset julkaisut ovat avanneet tutkimustulosten hyödyntämismahdollisuuden myös kansainväliselle yleisölle.

Tulosten jatkoanalyysi ja hyödyntäminen ovat kiinni ennen kaikkea ydinjätepolitiikan keskeisistä viranomaisista (TEM ja STUK) ja teollisuudesta (Posiva). Eurajoen kehitys merkittäväksi ydinvoimateollisuuden keskittymäksi on myös maakunnallisesti ja alueellisesti tärkeää. Myös alueelliset ja paikalliset viranomaiset, päättäjät

ja kuntalaiset voivat halutessaan hyödyntää tuloksia. Suomen ydinvoimapolitiikan uudessa vaiheessa – erityisesti keskusteltaessa Fennovoiman ydinjätteiden loppusijoituksesta – tutkimustuloksilla on relevanssia myös ydinvoimateollisuudelle sekä kansalaiskeskustelulle niin kansallisella tasolla kuin paikallisellakin tasolla. Samoin kansainvälisen median kiinnostus tuotettuja tutkimustuloksia kohtaan kertoo, kuinka eri maissa koetaan Suomen ydinjäte- ja ydinvoimapolitiikka kiinnostavaksi. Tulosten kansainvälisestä merkittävydestä kertonee myös se, että artikkeleiden muodossa raportoidut tulokset ovat kiinnostaneet myös kansainvälisten tiedejulkaisujen toimituskuntia.

Tulokset auttavat eri osapuolia ymmärtämään ydinvoimateollisuuden ja paikallisyhteisön suhdetta. Tutkimuksessa havaittu piilevä sosiaalinen jakautuneisuus on merkittävä tulos, koska ydinjätehuollon toteuttaminen edellyttää myös kuntalaisten hyväksyntää loppusijoituskunnassa. Selvät mielipide-erot oli havaittavissa niin sukupuolen kuin myös tiettyjen muidenkin sosiaalisten tekijöiden mukaan tarkasteltuna. Piilevään sosiaaliseen jakautuneisuuteen on kiinnitettävä huomiota Suomen ydinjätepolitiikassa.

Viitteet

Kari, M. 2009. Nuclear oasis or something else? Analysing Eurajoki as nuclear community. Paper presented at Managing Radioactive Waste - Conference. 15-17 December 2009. CEFOS, University of Gotthenburg, Sweden.

Kari, M. 2010a. In spite of the perceived risks... Analysing acceptance of spent nuclear fuel repository in the Municipality of Eurajoki, Finland. Oral presentation at SRAE 2010, Risk, Governance & Accountability conference, the 19th SRA-Europe meeting. 21-23 June 2010. King's College, London, UK.

Kari, M. 2010b. Analysing acceptance of spent nuclear fuel repository in the Municipality of Eurajoki, Finland. Oral presentation at 4S 2010, STS in Global Contexts Conference, the 35th 4S Annual Meeting. 25-29 August 2010. University of Tokyo, Japan.

Kari, M., Kojo, M. and Litmanen, T. 2010. Community Divided. Adaptation and Aversion towards the Spent Nuclear Fuel Repository in Eurajoki and its Neighbouring Municipalities. University of Jyväskylä & University of Tampere, Jyväskylä. <https://jyx.jyu.fi/dspace/handle/123456789/25794>

Kojo, M. and Kari, M. 2010. Pride-effect in a nuclear community. Local perceptions regarding spent nuclear fuel repository in the municipality of Eurajoki, Finland. Paper presented at Waste Management 2010. 7-11 March 2010. Paper: 10192. Phoenix, Az, USA.

Kojo, M., Kari, M. and Litmanen, T. 2008. The Socio-Economic and Communication Challenges of Spent Nuclear Fuel Management in Finland. Proceedings of the Energy Challenges in Northern Europe. Pan-European Institute 20th anniversary conference. 27-29 November 2008. Turku, Finland.

Kojo, M., Kari, M. and Litmanen, T. 2009a. Extension of the repository under excavation. The opinions of the local residents in the municipality of Eurajoki. Proceedings of the Values in Decisions On Risk symposium VALDOR 2009. 8-11 June 2009. Paper: Or 27. Stockholm, Sweden.

Kojo, M., Kari, M. and Litmanen, T. 2009b. Threats and Benefits. Updated information on local opinions regarding the spent nuclear Fuel repository in Finland. Proceedings of the 12th International Conference on Environmental Remediation and Radioactive Waste Management ICM2009. 11-15 October 2009. Liverpool, UK.

Kojo, M., Kari, M. and Litmanen, T. 2010. The socio-economic and communication challenges of spent nuclear fuel management in Finland. The post site selection phase of the repository project in Eurajoki. *Progress in Nuclear Energy*, 52(2). 168-176.

Kojo, M., Kari, M. and Litmanen, T. (2011, forthcoming) Nuclear community considering threats and benefits of final disposal. Local opinions regarding the spent nuclear fuel repository in Finland. *International Journal of Environmental Technology and Management (IJETM)* (Submission code: IJETM-18109 - Accepted in December 2010).

Litmanen, T., Kojo, M. and Kari, M. 2010. The rationality of acceptance in a nuclear community: analysing residents' opinions on the expansion of the SNF repository in the municipality of Eurajoki, Finland. *International Journal of Nuclear Governance, Economy and Ecology*, 3(1). 42-58.

Nurmi, A. 2010. Piristysruiske vai surmanisku? Fennovoima Oy:n ydinvoimalan periaatepäätösvaiheen kuulemistilaisuuksien yleisöpuheenvuorojen analyysi. (Stimulant or deathblow? An analysis of the discourse in the public hearings concerning Fennovoima Oy's nuclear power plant project at the DecisioninPrinciple stage). Working Reports of Sociology. Fall 2010. University of Jyväskylä, Department of Social Sciences and Philosophy, Jyväskylä. <https://staff.jyu.fi/Members/tlitmane/Fennovoimaraportti%202010/view>

Nurmi, A., Kojo, M. and Litmanen, T. 2009. Yleisökysymyksiä vailla vastauksia. Käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituslaitoksen laajennushankkeen yleisötilaisuudet Eurajoella 2008-2009. (Questions from the public without answers: Public meetings concerning the spent nuclear fuel disposal facility expansion project in Eurajoki 2008-2009). Working Reports of Sociology 1/2009. University of Jyväskylä, Department of Social Sciences and Philosophy, Jyväskylä. <https://staff.jyu.fi/Members/tlitmane/Posiva%20raportti/view>

Pylkkönen, A., Litmanen, T. and Kojo, M. 2008. Uuden ydinkeitaan etsintää. Fennovoiman ydinvoimalahankkeen YVA-ohjelmavaiheen yleisötilaisuudet Kristiinankaupungissa, Ruotsinpyhtäällä, Pyhäjoella ja Simossa. (In search for a new nuclear oasis. The public meetings of EIA assessment phase of Fennovoima nuclear power plant project in Kristiinankaupunki, Ruotsinpyhtää, Pyhäjoki and Simo). Working Reports of Sociology. University of Jyväskylä, Department of Social Sciences and Philosophy, Jyväskylä. <https://staff.jyu.fi/Members/tlitmane/Fennovoiman%20ydinkeidas/view>

Liite 1

Hankeluettelo

	Aika	Hanke	Organisaatio
1	2006–2010	Suomalainen erotus- ja transmutaatiotekniikan tutkimus	VTT
2	2006–2007	Ydinjätehuollon teknistieteelliset perusteet (TEPE)	VTT
3	2007	Tilannekatsaus uraanikaivosjätteiden kehittyneistä huoltomenetelmistä	VTT
4	2010	Opetuksen koordinointi: Ydinjätehuollon yliopisto- ja täydennyskoulutuksen koordinointi	TKK
5	2006	DECOVALEX THMC -projekti vuonna 2006	STUK
6	2006	Voimalaitosten biologisen suojan betonin aktivoituminen (BETAKT)	VTT
7	2006–2010	Kapselikuparin pitkäaikaiskestävyys	VTT
8	2009–2010	Kuparin pitkäaikaiskestävyys (PIKE)	VTT
9	2007–2010	Ydinjätekapserin deformaatiomekanismit	TKK
10	2007–2008	Kuparin korroosionopeuden mittaaminen kaasufaasissa loppusijoituksen alkuvaiheessa	TKK
11	2006	Kuparikapselin jännityskorroosioanalyysi	VTT
12	2009–2010	Sulfidien aiheuttama kuparin jännityskorroosio	VTT
13	2010	Corrosion of copper by water under oxygen free conditions	TKK
14	2007–2008	Bentoniitti ja tunnelin täyteainetutkimuksen osaamistason kartoitus	VTT
15	2006	Reaktiivinen kulkeutumismallinnus loppusijoitusolosuhteissa (REKU)	VTT
16	2007–2008	Lähialueen termo-hydro-kemiallinen mallinnus (LÄHITHC)	VTT
17	2008	Bentoniittipuskurin kemiallinen jääkausieroosio (GLASE)	VTT
18	2009–2010	Bentoniittipuskurin kytketty käyttäytyminen (PUSKURI)	VTT
19	2009–2010	Bentoniittipuskurin THM-mallin numeriiikka (PUSKURI)	Numerola
20	2007–2008	Bentoniittipuskurin toimintakyvyn mallinnus ja simulointi	JY/FL
21	2009–2010	Bentoniittipuskurin THM-mallinnus (PUSKURI)	JY/FL
22	2010	Montmorilloniitin liukeneminen pohjavesisimulanteissa (MOPO)	VTT
23	2008–2010	Kokonaismalli teräsbetonirakenteen ikääntymiselle voimalaitosjätteen loppusijoituksessa	TKK
24	2006–2007	Rakoinun aikariippuvuus ja ydinjätteen loppusijoitustilaa ympäröivän kallon rikkoutumisvyöhykkeen mallintaminen (CREEP)	TKK
25	2006–2009	Akustiseen emissioon perustuva kallon jännitystilän mittaamenetelmä	TKK
26	2009–2010	Kalliolaatu: Rakennusgeologiset kallioluokitukset ja niihin liittyvien epävarmuuksien määrittäminen ja esittäminen käyttäen tilastollista päättelyä ja geologisia 3D- ja paikkatieto-ohjelmia	TKK
27	2008–2010	Kaasut ja biogeokemian prosessit kalliooperässä (KABIO)	GTK
28	2006–2010	Syvien biosfäärien geomikrobiologia – molekyylibiologiset monitorointimenetelmät (GEOMOL)	VTT
29	2006–2008	Kalliooperän redox-häiriöiden osoittaminen kivi-vesi-vuorovaikutusten avulla (KIVES-REDOX)	HYRL
30	2006	Kallon rikkonaisuusrakenteet ja hydrogeologia	GTK
31	2006	Sorption mekanistinen mallinnus ja reaktiivinen kulkeutuminen tunnelitäytteisessä ja kallioraossa	HYRL
32	2006–2008	Kallon in situ tutkimukset	HYRL

33	2009–2010	Kallion in-situ tutkimukset Grimselin vuorilaboratoriossa	HYRL
34	2006–2007	Rakovirtaus, radionuklidien kulkeutuminen ja kemialliset vuorovaikutukset heterogeenisessä kallioperässä	HYRL
35	2008–2010	Kolloidien muodostuminen ja niiden osuus radionuklidien kuljetta- jina (KOLKU)	HYRL
36	2006–2008	Kiven huokostilavuuden ja heterogeenisuuden kuvaus tomografiamenetelmällä	JY/FL
37	2009–2010	Kiven kolmiulotteisen huokosrakenteen yhdistäminen matriisidiffuusiomallinnukseen	JY/FL
38	2006–2008	Uraanin käyttäytyminen kiteisissä kivissä: tulosten hyödyntäminen turvallisuusanalyyseissa (GEOCHEM)	TKK
39	2006	Uraanin käyttäytyminen kiteisissä kivissä: tulosten hyödyntäminen turvallisuusanalyyseissa (GEOCHEM)	HYRL
40	2008–2010	Kolmenarvoisten aktinidien kiinnittyminen savi- ja oksidimineraalien pinnoille	HYRL
41	2006–2010	Käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoittamisen ekologinen riskiarvio metsäekosysteemeissä	KY
42	2009–2010	¹⁴ C-radionuklidin siirtyminen maaperästä kasveihin ja ilmakehään	KY
43	2008–2009	Seurantahanke käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituslaitoksen sosioekonomisista vaikutuksista ja tiedonvälityksestä Eurajoen ja sen naapurikuntien asukkaiden näkökulmasta (SEURA)	JY/YTK
44	2010	Teollisuustietoisuus ja käytetyn ydinpolttoaineen loppusijoituksen hyväksyttävyyys (TEKY)	JY/YTK

Tekijät Författare Authors	Julkaisuaja Publiceringstid Date Juni 2011
Arbets- och näringsministeriet (ed.)	Toimeksiantaja(t) Uppdragsgivare Commissioned by Työ- ja elinkeinoministeriö Arbets- och näringsministeriet Ministry of Employment and the Economy
	Toimielimen asettamispäivä Organets tillsättningsdatum Date of appointment
Julkaisun nimi Titel Title KYT2010 Nationellt forskningsprogram om kärnavfallshantering 2006–2010 – Slutrapport	
Tiivistelmä Referat Abstract Det nationella forskningsprogrammet om kärnavfallshantering (KYT2010) startade 2006. Forskningsperioden slutade vid utgången av 2010. Forskningsprogrammets centrala temaområden är 1) de strategiska utredningarna om kärnavfallshanteringen, 2) bedömningen av säkerheten vid slutförvaring av kärnavfall och 3) de samhällsvetenskapliga utredningarna. I bedömningen av säkerheten vid slutförvaring av kärnavfall ingår tre delar vilka är de tekniska barriärerna, berggrunden och grundvattnet samt frigörelse och transport av radionuklider. Under forskningsperioden har det pågått ca 40 forskningsprojekt som i första hand har hänfört sig till bedömning av säkerheten vid slutförvaring av kärnavfall. Statens kärnavfallshanteringsfond har kanaliserat sammanlagt ca 7 miljoner euro till forskningsprojekten. Följande forskningsorganisationer har deltagit i forskningsprogrammet KYT2010: VTT, Aalto-universitetets tekniska högskola, Helsingfors universitets radiokemiska laboratorium, Geologiska forskningscentralen, Jyväskylän universitet, Östra Finlands universitets campus i Kuopio, Numerola Oy. Arbetet inom forskningsprogrammet har grundat sig på det ömsesidiga samarbetet och arbetsfördelningen mellan forskningsprogrammets ledningsgrupp, två stödgrupper, samordnare och olika forskningsprojekt. I forskningsprogrammets ledningsgrupp har ingått företrädare för Strålsäkerhetscentralen, Utvecklingscentralen för teknik och innovationer – Tekes, Fortum Power and Heat Oy, Industrins Kraft Abp, Posiva Oy och arbets- och näringsministeriet. Kontaktpersoner vid arbets- och näringsministeriet: Energiavdelning/Jaana Avolahti, tfn 010 606 4836	
Asiasanat Nyckelord Key words Kärnavfallshantering, forskning	
ISSN 1797-3562	ISBN 978-952-227-541-7
Kokonaissivumäärä Sidoantal Pages 138	Kieli Språk Language Suomi, finska, Finnish
	Hinta Pris Price 20 €
Julkaisija Utgivare Published by Työ- ja elinkeinoministeriö Arbets- och näringsministeriet Ministry of Employment and the Economy	Kustantaja Förläggare Sold by Edita Publishing Oy / Ab / Ltd

Tekijät Författare Authors Ministry of Employment and the Economy (ed.)	Julkaisuaika Publiceringstid Date June 2011 Toimeksiantaja(t) Uppdragsgivare Commissioned by Työ- ja elinkeinoministeriö Arbets- och näringsministeriet Ministry of Employment and the Economy Toimielimen asettamispäivä Organets tillsättningsdatum Date of appointment				
Julkaisun nimi Titel Title KYT2010 Finnish Research Programme on Nuclear Waste Management 2006–2010 – Final report					
Tiivistelmä Referat Abstract The Finnish Research Programme on Nuclear Waste Management, KYT2010, was launched in 2006. The research period closed at the end of 2010. Key themes of the research programme include 1) strategic analyses of nuclear waste management, 2) assessment of the safety of final nuclear waste disposal and 3) sociological analyses. The assessment of the safety of final nuclear waste disposal comprises three sectors: technical barriers, bedrock and groundwater, and the release and transport of radionuclides. The roughly 40 or so research projects underway during the research period have primarily been concerned with assessing the safety of nuclear waste management. The State Nuclear Waste Management Fund allocated funding total-ling approximately EUR 7 million to the research projects. The following research organisations have participated in the KYT2010 research programme: VTT – the Technical Research Centre of Finland, the Aalto University School of Science and Technology, University of Helsinki Laboratory of Radiochemistry, the Geological Survey of Finland, University of Jyväskylä, University of Eastern Finland Kuopio Campus, and Numerola Oy. Work in the research programme has been based on mutual cooperation and division of duties between the research programme steering group, two support groups, a coordinator and the research programmes. The research programme steering group has included representatives of the Radiation and Nuclear Safety Authority, Tekes – the Finnish Funding Agency for Technology and Innovation, Fortum Power and Heat Oy, Teollisuuden Voima Oyj, Posiva Oy and the Ministry of Employment and the Economy. Contact persons within the Ministry of Employment and the Economy: Energy Department/Jaana Avolahti, tel +358 10 606 4836					
Asiasanat Nyckelord Key words Nuclear waste management, research					
ISSN 1797-3562	ISBN 978-952-227-541-7				
Kokonaissivumäärä Sidoantal Pages 138	<table> <tr> <td>Kieli Språk Language</td><td>Hinta Pris Price</td></tr> <tr> <td>Suomi, finska, Finnish</td><td>20 €</td></tr> </table>	Kieli Språk Language	Hinta Pris Price	Suomi, finska, Finnish	20 €
Kieli Språk Language	Hinta Pris Price				
Suomi, finska, Finnish	20 €				
Julkaisija Utgivare Published by Työ- ja elinkeinoministeriö Arbets- och näringsministeriet Ministry of Employment and the Economy	Kustantaja Förläggare Sold by Edita Publishing Oy / Ab / Ltd				

KYT2006–2010 Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma 2006–2010 – Loppuraportti

Kansallinen ydinjätehuollon tutkimusohjelma KYT2010 on ollut käynnissä vuosina 2006–2010. Tutkimusohjelman keskeiset aihepiirit ovat ydinjätehuollon strategiset selvitykset, ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuuden arviointi ja yhteiskunta-tieteelliset selvitykset. Ydinjätteiden loppusijoituksen turvallisuuden arvioinnissa on kolme osa-aluetta, jotka ovat tekniset vapautumisesteet, kallioperä ja pohjavesi sekä radionuklidien vapautuminen ja kulkeutuminen.

Tutkimuskaudella on ollut käynnissä noin 40 tutkimushanketta, jotka ovat ensisijaisesti liittyneet ydinjätehuollon turvallisuuden arviointiin. Tässä KYT2010-tutkimusohjelman loppuraportissa esitetään tutkimusohjelman tavoitteet, organisointi ja tutkimushankkeet.

Edita Publishing Oy
PL 800, 00043 Edita
Vaihde 020 450 00

Edita asiakaspalvelu
Puhelin 020 450 05
Faksi 020 450 2380

Edita-kirjakauppa Helsingissä
Kustantajien Kirjahulma
Sanomatalo, Elielinaukio 1
Puhelin 020 450 2566

Painettu
ISSN 1797-3554
ISBN 978-952-227-540-0

Verkkojulkaisu
ISSN 1797-3562
ISBN 978-952-227-541-7



TYÖ- JA ELINKEINOMINISTERIÖ
ARBETS- OCH NÄRINGSMINISTERIET
MINISTRY OF EMPLOYMENT AND THE ECONOMY