

Immobilizacja U i Th przez zeolit aktywowany Pb

Celem tego projektu jest eksperymentalne zbadanie immobilizacji U i Th poprzez współstrącanie z apatytom ołowiomym, którego wytrącanie jest wywoływane na zeolicie aktywowanym Pb. Zapewni to podstawy teoretyczne dla przyszłego rozwoju nowej reaktywnej bariery geochemicznej do stosowania w składowiskach pierwiastków promieniotwórczych lub do stworzenia nowego reaktywnego dodatku do wypełniaczy pojemników na odpady radioaktywne. Postawiono następujące hipotezy:

- poprzez odpowiedni dobór zeolitu i metodologii aktywacji, możliwe jest wytworzenie zeolitu aktywowanego Pb, który jest bezpieczny dla środowiska (nie uwalnia Pb do środowiska), a jednocześnie jest reaktywny w warunkach skażenia U i Th;
- wytrącanie apatytu ołowiomego (piromorfitu Pb_5PO_4Cl) wywołane na aktywowanym Pb zeolicie, z roztworów zawierających U(VI) i Th, skutecznie unieruchomi te pierwiastki poprzez ich trwałe zamknięcie w strukturze kryształów;
- możliwe jest wytworzenie bezpiecznej dla środowiska reaktywnej bariery geochemicznej z mieszaniny mineralnej hydroksylapatytu (jako źródła fosforanu) i zeolitu aktywowanego Pb (jako źródła ołowiu) do skutecznego unieruchamiania U(VI) i Th ze skażonych roztworów wodnych (poprzez współstrącanie z piromorfitem na zeolicie).

Badania nad wypełniaczami do pojemników stosowanych w geologicznych składowiskach odpadów radioaktywnych, a także badania nad wypełniaczami do przestrzeni magazynowych są stale gorącym tematem badawczym. Głównym powodem podjęcia niniejszych badań jest niedawno odkryty fakt, że U i Th mogą być skutecznie i wydajnie usuwane z roztworów wodnych poprzez współstrącanie z fosforanami Pb w postaci Pb-apatytu. Taki Pb-apatyt jest stosunkowo odpornym mechanicznie i termicznie minerałem, wykazującym bardzo niską rozpuszczalność, a ponadto zawierającym ołów, co czyni go doskonałym materiałem do enkapsulacji pierwiastków promieniotwórczych. Stosunkowo silna sorpcja Pb na zeolitach sprawia, że aktywowany ołowiem zeolit może być bezpiecznym dla środowiska rezerwuarem Pb dostępnym dla reakcji immobilizacji U i Th w sytuacjach zagrożenia środowiska. Do tego wyniki badań innego minerału - hydroksylapatytu $Ca_5PO_4(OH)$ - wskazują, że może on być dobrym źródłem jonów PO_4^{3-} dla tej reakcji. Wszystkie te obserwacje, do tej pory oderwane od siebie, skłaniają nas do zbadania mechanizmów usuwania U i Th z roztworów poprzez krystalizację piromorfitu wywołaną reakcją fosforanów z zeolitem aktywowanym Pb. Projekt ten wpisuje się w dyscyplinę mineralogii eksperymentalnej i geochemii. Obejmuje eksperymentalne badanie interakcji minerał-roztwór, w tym modelowe eksperymenty laboratoryjne, z wykorzystaniem syntetycznego piromorfitu wytrąconego z roztworów wodnych w temperaturze otoczenia, w dokładnie kontrolowanych warunkach i przy użyciu czystych chemikaliów. PI jest świadomy obaw i specjalnych wymogów bezpieczeństwa związanych z użyciem U. We wszystkich przypadkach dla bezpieczeństwa będzie używany zubożony U w niskich stężeniach. Przed rozpoczęciem eksperymentów z UO_2 , każda konfiguracja eksperymentalna zostanie przetestowana przy użyciu nieradioaktywnego Th. Takie podejście pozwoli na wcześniejsze rozwiązanie potencjalnych problemów technicznych związanych z eksperymentami. Eksperymenty z Th będą prowadzone w laboratoriach Katedry Mineralogii, Petrografii i Geochemii Akademii Górniczo-Hutniczej w Krakowie (Polska), pod bezpośrednim nadzorem kierownika projektu. Eksperymenty z U będą prowadzone w Energy Frontier Research Center, Materials Science of Actinides (University of Notre Dame, Indiana, USA) pod wspólnym nadzorem kierownika projektu i dr Petera Burnsa. Wszystkie planowane konfiguracje eksperymentalne i techniki analityczne dla roztworów i faz krystalicznych były wcześniej używane i testowane w obu laboratoriach na podobnych konfiguracjach i systemach, w tym we wcześniejszej współpracy nad eksperymentami z U.

Nowatorstwo proponowanych badań nad potencjalnymi przyszłymi rozwiązaniami technologicznymi zawarte jest m.in. w następującym zakresie:

- Zaproponowano nowatorską metodę usuwania Th i UO_2 ze skażonych wód poprzez wytrącanie stałego, krystalicznego i trudno rozpuszczalnego związku o strukturze apatytu: piromorfitu $Pb_5(PO_4)_3Cl$ częściowo podstawionego Th i UO_2 , przy czym modyfikowany zeolit jest dobrze kontrolowanym, bezpiecznym dla środowiska rezerwuarem i źródłem Pb do reakcji.
- Zaproponowano konstrukcję reaktywnego wypełniacza składającego się z mineralnej mieszaniny hydroksylapatytu i zeolitu aktywowanego Pb, który zostanie przetestowany pod kątem potencjalnych przyszłych zastosowań w barierach reaktywnych lub wypełniaczach pojemników stosowanych w magazynowaniu odpadów radioaktywnych.