



Agenzia Nazionale per le Nuove Tecnologie,  
l'Energia e lo Sviluppo Economico Sostenibile



*Ministero dello Sviluppo Economico*

## RICERCA DI SISTEMA ELETTRICO

Indagini conoscitive relative alle problematiche inerenti lo  
smaltimento geologico dei rifiuti radioattivi ad alta attività e lunga  
vita

*M. Frullini, C. Rusconi, F. Giannetti, D.V. Di Maio*



Report RdS/2011/118

INDAGINI CONOSCITIVE RELATIVE ALLE PROBLEMATICHE INERENTI LO SMALTIMENTO  
GEOLOGICO DEI RIFIUTI RADIOATTIVI AD ALTA ATTIVITÀ E LUNGA VITA

M. Frullini, C. Rusconi, F. Giannetti, D.V. Di Maio – CIRTEN UNIROMA

Settembre 2011

Report Ricerca di Sistema Elettrico

Accordo di Programma Ministero dello Sviluppo Economico – ENEA

Area: Governo, Gestione e sviluppo del sistema elettrico nazionale

Progetto: Nuovo nucleare da fissione: collaborazioni internazionali e sviluppo competenze in  
materia nucleare

Responsabile Progetto: Paride Meloni, ENEA



**CIRTEN**

**Consorzio Interuniversitario per la Ricerca TEcnologica Nucleare**

**UNIVERSITÀ DEGLI STUDI DI ROMA**

**“LA SAPIENZA”**

**Indagini conoscitive relative alle problematiche inerenti lo  
smaltimento geologico dei rifiuti radioattivi ad alta attività e  
lunga vita**

**Autori**

**Prof. Massimo Frullini**

**Ing. Carlo Rusconi**

**Ing. Fabio Giannetti**

**Ing. Damiano Vitale Di Maio**

**CERSE-UNIRM RL 1170/2011**

**ROMA, SETTEMBRE 2011**

Lavoro svolto in esecuzione della linea progettuale LP4 punto D1  
AdP MSE - ENEA “Ricerca di Sistema Elettrico” - PAR2008-09  
Progetto 1.3 – “Nuovo Nucleare da Fissione”.

# INDAGINI CONOSCITIVE RELATIVE ALLE PROBLEMATICHE INERENTI LO SMALTIMENTO GEOLOGICO DEI RIFIUTI RADIOATTIVI AD ALTA ATTIVITÀ E LUNGA VITA

## INDICE DEL DOCUMENTO

- 1. I DEPOSITI GEOLOGICI DI RIFIUTI RADIOATTIVI**
  - 1.1 Classificazione dei rifiuti**
  - 1.2 Il combustibile irraggiato**
  - 1.3 Le opzioni di smaltimento**
  - 1.4 I diversi concetti di smaltimento definitivo**
  - 1.5 Barriere di sicurezza nello smaltimento geologico**
  - 1.6 Il concetto multi-barriera**
    - 1.6.1 Forme di rifiuti**
    - 1.6.2 Contenitori dei rifiuti**
    - 1.6.3 Materiali tamponi e di riempimento**
    - 1.6.4 Il campo remoto o geosfera**
      - 1.6.4.1 La zona satura e insatura**
      - 1.6.4.2 Rocce compatte o fratturate**
      - 1.6.4.3 Formazioni argillose**
      - 1.6.4.4 Formazioni evaporitiche**
      - 1.6.4.5 Formazioni tufacee**
      - 1.6.4.6 Proprietà geomeccaniche**
      - 1.6.4.7 Proprietà idrauliche**
  - 1.7 Generalità sul fenomeno di trasporto di radionuclidi in un deposito profondo**
    - 1.7.1 I processi di trasporto**
    - 1.7.2 Processi e caratteristiche rilevanti per il comportamento dei radionuclidi**
    - 1.7.3 Proprietà termochimiche**
    - 1.7.4 Reazioni eterogenee**
    - 1.7.5 Processi redox**
    - 1.7.6 Colloidi e complessazione organica**
  - 1.8 Conclusioni**

## BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 1

- 2. INIZIATIVE INTERNAZIONALI E STRATEGIE PER LO SMALTIMENTO DEFINITIVO DEI RIFIUTI RADIOATTIVI IN DEPOSITI GEOLOGICI**
  - 2.1 La piattaforma IGD-TP**
  - 2.2 La Strategic Research Agenda (SRA) in ambito IGD-TP**
    - 2.2.1 KeyTopic 1: IL SAFETY CASE**
      - 2.2.2.1 Il SAFETY CASE e gli aspetti radio protezionistici**
      - 2.2.2.2 Gli obiettivi del SAFETY CASE**

- 2.2.2.3 La rilevanza dei problemi nel *SAFETY CASE*
- 2.2.2.4 Fenomeni di scala, importanza dei test in impianti di ricerca sotterranei
- 2.2.2 KeyTopic 2: Forme di rifiuti e loro comportamento
- 2.2.3 KeyTopic 3: Fattibilità tecnica dei componenti
- 2.2.4 KeyTopic 4: Prestazioni a lungo termine dei componenti
- 2.2.5 KeyTopic 5: La strategia di sviluppo del deposito
- 2.2.6 KeyTopic 6: La sicurezza operativa
- 2.2.7 KeyTopic 7: Il monitoraggio
- 2.2.8 KeyTopic 8: Coinvolgimento degli stakeholders e governance
- 2.3 Il progetto PAMINA
  - 2.3.1 Generalità
  - 2.3.2 RTDC 3: Introduzione agli indicatori di sicurezza e di performance
    - 2.3.2.1 Radiotossicità
    - 2.3.2.2 Sicurezza a lungo termine
    - 2.3.2.3 Indicatori di sicurezza
    - 2.3.2.4 Indicatori di prestazioni
    - 2.3.2.5 Supporto del “safety case” mediante gli indicatori
- 2.4 Le indicazioni IAEA
  - 2.4.1 Principi di sicurezza
  - 2.4.2 Criteri di tipo tecnico
  - 2.4.3 Criteri per la selezione del sito
- 2.5 I criteri generali di sicurezza italiani
  - 2.5.1 Riferimenti
  - 2.5.2 Fasi operative caratteristiche del deposito definitivo
  - 2.5.3 Obiettivo fondamentale di sicurezza e radioprotezione
  - 2.5.4 Principi generali di sicurezza e radioprotezione relativi al deposito definitivo
  - 2.5.5 Criteri operativi di sicurezza e radioprotezione
  - 2.5.6 Considerazioni sui limiti di dose efficace

## **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 2**

- 3. I DIVERSI PROGETTI DI DEPOSITI GEOLOGICI PROPOSTI IN EUROPA
  - 3.1 Il deposito geologico proposto in Belgio
  - 3.2 Il deposito geologico proposto in Francia
    - 3.2.1 Modulo per rifiuti ILW-LL
    - 3.2.2 Modulo per rifiuti HLW-LL vetrificati o combustibile esaurito
  - 3.3 Il deposito geologico proposto in Spagna
  - 3.4 Il deposito geologico proposto in Svezia e Finlandia
    - 3.4.1 Tecnica di smaltimento KBS-3V
    - 3.4.2 Tecnica di smaltimento KBS-3H

### **3.5 Il deposito geologico proposto in Germania**

#### **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 3**

#### **4. RASSEGNA SULLE PROBLEMATICHE TECNICHE DEI SISTEMI DI SMALTIMENTO DI RIFIUTI RADIOATTIVI IN DEPOSITI GEOLOGICI**

- 4.1 Descrizione degli argomenti tecnici**
- 4.2 Interazioni tra componenti ingegneristici**
- 4.3 Interazioni EBS/roccia ospite**
- 4.4 Impatto delle acque sotterranee/interstiziali sui materiali dell'EBS**
- 4.5 Durata per cui i materiali EBS possono mantenere le loro funzioni**
- 4.6 Interazioni Gas/acque sotterranee (o interstiziali)**
- 4.7 Adeguata caratterizzazione del sito**
- 4.8 Stabilità del deposito a lungo termine**
- 4.9 Impatto della risaturazione**

#### **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 4**

#### **5. STATO DELL'ARTE SULLE ATTIVITÀ DI RICERCA SULLE PROBLEMATICHE TECNICHE NELLO SMALTIMENTO DI RIFIUTI RADIOATTIVI IN DEPOSITI GEOLOGICI.**

- 5.1 Influenza delle diverse tipologie di rifiuti nella progettazione delle barriere ingegneristiche alla migrazione di radionuclidi.**
- 5.2 Interazioni tra i diversi componenti del progetto.**
- 5.3 Interazioni tra EBS e roccia ospitante.**
- 5.4 Interazioni tra EBS e acque sotterranee, acqua interstiziale e impatti con soluzioni saline.**
- 5.5 Durabilità dei materiali dell'EBS.**
- 5.6 Interazioni tra gas e acque sotterranee .**
- 5.7 Caratterizzazione del sito.**
- 5.8 Stabilità geologica a lungo termine.**
- 5.9 Impatto della risaturazione.**
- 5.10 Incertezze nelle diverse fasi del processo di autorizzazione .**

#### **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 5**

#### **6. STATO DELL'ARTE SULLE RICERCHE DELLE PROPRIETÀ GEOCHIMICHE DEI PRINCIPALI RADIONUCLIDI DEI RIFIUTI RADIOATTIVI**

- 6.1 I fenomeni di migrazione dei radionuclide nella geosfera**
- 6.2 Fattori rilevanti per il comportamento dei radionuclidi**
- 6.3 Geochimica dell'Uranio**
  - 6.3.1 L'uranio mobile**
  - 6.3.2 L'uranio immobile**
  - 6.3.3 Fattori di immobilizzazione dell'uranio mobile**

- 6.4 Geochimica del Torio
- 6.5 Geochimica dei transuranici(Plutonio e Nettunio)
- 6.6 Diagrammi Eh-pH per Nettunio e Plutonio
- 6.7 La problematica dei fronti redox
  - 6.7.1 Formazione e comportamento del fronte redox nelle rocce cristalline
  - 6.7.2 Formazione e comportamento del fronte redox nelle rocce argillose
  - 6.7.3 Modellazione della migrazione dei radionuclidi al fronte redox
- 6.8 Geochimica del Cesio
  - 6.8.1 Il cesio stabile
  - 6.8.2 Il cesio prodotto di fissione

#### **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 6**

- 7. **TRASPORTO E RITARDO DELLA MIGRAZIONE DEI RADIONUCLIDI IN VARI MEZZI GEOLOGICI**
  - 7.1 Solubilità e speciazione elementare
  - 7.2 Processi di ritardo elementare
  - 7.3 Trasporto e ritardo per diffusione matriciale e per variazioni redox
    - 7.3.1 Trasporto e ritardo all'interno di rocce cristalline fratturate
    - 7.3.2 Trasporto e ritardo nelle rocce argillose
    - 7.3.3 Trasporto e ritardo nei depositi di ceneri vulcaniche
    - 7.3.4 Trasporto e ritardo nelle evaporiti
    - 7.3.5 Trasporto e ritardo all'interfaccia geosfera-biosfera
    - 7.3.6 Misura della distribuzione dei coefficienti in situ
    - 7.3.7 Sintesi sui meccanismi di trasporto dei radionuclidi
  - 7.4 Processi di diffusione dei radionuclidi nei mezzi geologici
    - 7.4.1 Diffusione matriciale
      - 7.4.1.1 Profondità e volume della porosità interconnessa
      - 7.4.1.2 Capacità tampone chimico della massa rocciosa
      - 7.4.1.3 Estensione della diffusione matriciale nelle formazioni sedimentarie
      - 7.4.1.4 Stima dei coefficienti di diffusione
    - 7.4.2 Conclusioni sul meccanismo della diffusione matriciale
  - 7.5 Effetti della radiolisi nei mezzi geologici
    - 7.5.1 La radiolisi
    - 7.5.2 I processi principali nella radiolisi delle acque sotterranee
    - 7.5.3 Conclusioni sul fenomeno della radiolisi
  - 7.6 Ruolo dei colloidi nel trasporto dei radionuclidi
    - 7.6.1 I Colloidi
      - 7.6.1.1 Popolazioni dei colloidi nei sistemi naturali
      - 7.6.1.2 Stabilità dei colloidi nei sistemi naturali
      - 7.6.1.3 Assunzione e trasporto dei radionuclidi da parte dei colloidi nei sistemi naturali

#### **7.6.1.4 Colloidi nei sistemi antropogenici**

#### **7.6.2 Sintesi del ruolo dei colloidi nel trasporto di radionuclidi**

### **7.7 Genesi e ruolo di trasporto dei gas nella geosfera**

#### **7.7.1 Velocità di produzione dei gas**

#### **7.7.2 Migrazione e reazione dei gas nella geosfera.**

#### **7.7.3 Effetti della migrazione dei gas sul trasporto in soluzione.**

### **7.8 La migrazione dei prodotti di fissione e degli attinidi in ambiente naturale (Oklo)**

## **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 7**

### **8. APPROCCIO BELGA (MOL URL) PER LO STUDIO SUI FENOMENI DI TRASPORTO DEI RADIONUCLIDI IN MATRICE ARGILLOSA**

#### **8.1 Introduzione**

#### **8.2 Migrazione dei radionuclidi in argilla**

#### **8.3 Caratteristiche chimiche delle acque interstiziali in argilla**

#### **8.4 Ruolo della materia organica naturalmente presente in argilla**

#### **8.5 Interazioni solido-soluzioni che influenzano la migrazione**

#### **8.6 Studio dell'omogeneità dell'argilla**

#### **8.7 Comportamento degli elementi in argilla**

#### **8.8 Conoscenza dei meccanismi di base-modellizzazione geochimica**

#### **8.9 Validazione dei dati**

#### **8.10 Ruolo della materia organica**

#### **8.11 Elettromigrazione**

#### **8.12 Valori scelti per la modellizzazione del campo lontano**

#### **8.13 Parametri di migrazione e solubilità operativa**

#### **8.14 Studi condotti nei laboratori di superficie**

#### **8.15 Effetti della migrazione di un fronte alcalino sulle proprietà dell'argilla**

#### **8.16 Effetti della migrazione di nitrato di sodio sulle proprietà dell'argilla**

#### **8.17 Influenza della materia organica**

#### **8.18 Fenomeni di osmosi**

#### **8.19 Assorbimento di Iodio 129 nel campo vicino**

#### **8.20 Accettabilità di waste in cellulosa**

#### **8.21 Influenza della temperature sulla migrazione dei radionuclide (campi vicini e lontani)**

#### **8.22 Modellizzazione dell'assorbimento**

#### **8.23 Conclusioni**

## **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 8**

### **9. APPROCCIO FRANCESE PER LO STUDIO SUI FENOMENI DI TRASPORTO DEI RADIONUCLIDI IN MATRICE GRANITICA**

#### **9.1 Introduzione**

#### **9.2. Scelta della rappresentazione per i modelli di calcolo**



**9.2.1 I modelli dei siti geologici**

**9.2.2 Modello idrogeologico**

**9.3 Rappresentazione del trasporto in granito**

**9.4 Modello architetturale**

**9.5 Definizioni relative ai modelli**

**9.6 Definizioni relative ai parametri**

**9.7 Strumenti di calcolo usati per modellare il trasporto dei radionuclidi**

**BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 9**

## **1. GENERALITA' SUI DEPOSITI GEOLOGICI DI RIFIUTI RADIOATTIVI**

I rifiuti radioattivi sono prodotti principalmente nel corso della produzione di energia nucleare.

Quantitativi limitati di rifiuti radioattivi, rispetto a quelli prodotti dall'industria e dalla ricerca nucleare, si generano anche nelle applicazioni della tecnologia nucleare in medicina, industria, agricoltura, ricerche ambientali, etc. (si tratta di materiali classificati in genere come sorgenti).

Dopo la produzione i rifiuti radioattivi possono essere soggetti a vari trattamenti intermedi di tipo chimico e fisico diretti a ridurre il volume, come la concentrazione nel caso dei liquidi o la compattazione nel caso dei solidi. Lo stadio fondamentale della loro gestione è tuttavia il condizionamento, cioè la loro trasformazione in blocchi di materiale inerte e resistente, e come tale idoneo allo smaltimento, o deposito definitivo.

### **1.1 Classificazione dei rifiuti**

I rifiuti a bassa attività sono quelli che contengono solo isotopi radioattivi a vita breve (cioè dell'ordine di alcuni anni, al massimo pochi decenni) e li contengono in bassa concentrazione, cioè al di sotto di un determinato limite stabilito dalle norme internazionali (IAEA) e nazionali (Guida Tecnica 26 dell'ANPA). Tipicamente, tali rifiuti raggiungono, entro un periodo di trecento anni, un livello di attività considerato non pericoloso per l'uomo e l'ambiente, secondo i criteri di radioprotezione stabiliti dalle Organizzazioni internazionali (Tale limite minimo, giova ricordarlo, è sempre inferiore al valore della radiazione di fondo media della terra). E' per questo che i trecento anni vengono presi a base per stabilire i criteri per lo smaltimento dei rifiuti a vita breve. Quando invece nei rifiuti sono presenti isotopi a vita lunga e/o isotopi a vita breve ma in grande concentrazione, i rifiuti sono definiti ad alta attività. In questi rifiuti un esaurimento della emissione radioattiva, o la sua riduzione ai livelli di soglia considerati non pericolosi, si consegue soltanto dopo periodi che vanno dai millenni alle centinaia di migliaia di anni. I rifiuti ad alta attività possono inoltre essere caratterizzati da un contenuto termico elevato, dovuto al calore dissipato dalla intensa radiazione residua. I rifiuti radioattivi a bassa attività costituiscono in termini volumetrici circa il 95% dell'intera produzione. Quelli ad alta attività e/o a vita lunga contengono tuttavia nel loro 5% circa il 98% dell'inventario totale di radioattività.

### **1.2 Il combustibile irraggiato**

Nell'elemento di combustibile nucleare durante la permanenza nel reattore si accumulano isotopi radioattivi di nuova formazione, sottoprodotti della reazione di fissione. Di tutta la radioattività artificiale generata dall'utilizzo dell'energia nucleare, il 98% circa si ritrova all'interno di questa struttura metallica costituita dall'elemento di combustibile che viene scaricata dal reattore quando ha prodotto l'energia termica. La restante frazione si ritrova quasi tutta nei rifiuti radioattivi prodotti direttamente dall'attività della centrale (prevalentemente nei sistemi di purificazione dei circuiti idraulici che servono alla rimozione del calore prodotto), oppure nei processi di lavorazione del combustibile uranifero fresco diretti alla fabbricazione del combustibile nucleare destinato alla centrale.

Se non avviene il ritrattamento del combustibile irraggiato, esiste una sola specie di rifiuto radioattivo nelle operazioni a valle del reattore, l'elemento di combustibile stesso, ed è ovviamente di alta attività, dato che contiene tutti i radioisotopi.

In caso di ritrattamento invece, i materiali di risulta vengono per effetto delle operazioni d'impianto ripartiti in rifiuti ad alta ed a bassa attività, cioè a vita breve, questi ultimi di volume importante anche se di smaltimento definitivo più semplice, in quanto può avvenire in strutture artificiali di superficie.

In termini volumetrici, i rifiuti ad alta attività vengono ad essere in caso di ritrattamento minori di un fattore circa 4 rispetto al volume del combustibile corrispondente, e sono costituiti tipicamente da blocchi di vetro in contenitori di acciaio, che hanno elevate caratteristiche di stabilità e di inerzia chimica e fisica, anche superiori all'elemento di combustibile non ritrattato.

### **1.3 Le opzioni di smaltimento**

La gestione del combustibile nucleare esaurito e dei HLW è tra le più urgenti questioni da affrontare riguardo alle problematiche del ciclo del combustibile nucleare. Ci sono tre opzioni su come affrontare tale questione:

- lo smaltimento in profondità in un'adeguata formazione geologica ospitante;
- come soluzione intermedia e non definitiva, attraverso lo stoccaggio a lungo termine in superficie o in prossimità della superficie in depositi appositamente progettati e che richiedono un monitoraggio continuo e attività di manutenzione
- partizionamento e trasmutazione (P&T) per ridurre il volume e la radiotossicità dei HLW, processi che non essendo completi, non eliminano la necessità di un successivo e finale smaltimento a lungo termine. Inoltre, si prevede che l'applicazione delle tecnologie di P&T a livello industriale, richiederà almeno altri 40 anni, circostanza che configura una tale tecnica come un supplemento, ma non come un sostituto della disposizione in depositi geologici profondi.

L'impianto di smaltimento in profondità in formazioni geologiche è considerato, da molti scienziati e dalle organizzazioni nazionali e internazionali preposte alla gestione dei rifiuti radioattivi la più promettente scientificamente e tecnicamente credibile soluzione a lungo termine.

In un parere del NEA Waste Management Committee(OCSE NEA 1995), lo smaltimento geologico profondo è stato definito come un sistema che:

- isola i rifiuti dalla biosfera per periodi molto lunghi di tempo;
- garantisce che le residue sostanze radioattive possono raggiungere la biosfera in concentrazioni che sono insignificanti in confronto con i livelli di radioattività del fondo naturale.

Gli obiettivi fondamentali di sicurezza per lo smaltimento dei rifiuti radioattivi sono (OCSE NEA 1995):

- mantenere la concentrazione e l'isolamento dei rifiuti dall'uomo e dal suo ambiente per tutto il tempo necessario, o in modo equivalente, di assicurare all'uomo e al suo ambiente un'adeguata protezione dai rischi che questi rifiuti possono rappresentare;
- fornire un'adeguata protezione che deve diventare, nel tempo, indipendente da misure attive adottabili da parte delle generazioni future, come la manutenzione, controlli e supervisione (concetto di contenimento passivo o di sicurezza passiva).

È impossibile sviluppare criteri precisi, assoluti e universalmente applicabili a causa della variabilità nelle proprietà dei rifiuti da smaltire e delle formazioni geologiche candidate a ospitarli. Tuttavia, ci sono alcuni principi fondamentali che il deposito dovrebbe soddisfare e fattori scientifici definiti da esperti che possono determinarne la sua idoneità. Scambi d'informazioni e *peer review* in meeting internazionali possono svolgere un ruolo chiave nel conferire sempre maggiore attendibilità alle valutazioni di sicurezza dello smaltimento geologico profondo e contribuire in modo deciso al rafforzamento della fiducia della collettività su questa scelta.

Negli ultimi anni, è emerso anche il concetto di recuperabilità che è ora incluso in alcune soluzioni progettuali proposte a livello internazionale. Per i rifiuti vetrificati ad alta attività e lunga vita e per il combustibile esaurito, sarebbe possibile mantenere le gallerie del deposito profondo parzialmente aperte per un certo tempo dopo la fine del periodo di riempimento. Dopo la chiusura, utilizzando moderne tecnologie estrattive, si potrebbero recuperare i contenitori per i quali è stata mantenuta la loro integrità. Queste attività, ovviamente, non dovrebbero portare a diminuire la autosufficiente sicurezza passiva del deposito nel lunghissimo termine.

#### **1.4 I diversi concetti di smaltimento definitivo**

Due sono i principi che governano lo smaltimento delle scorie radioattive in un determinato sito: i manufatti condizionati vanno depositati in modo che le sostanze pericolose che contengono non possano venire in contatto diretto o indiretto con la biosfera, cioè con il mondo animale e vegetale circostante; questo contatto deve essere escluso almeno per tutto il periodo in cui permane la pericolosità dei rifiuti. E' questo secondo punto che determina la fondamentale differenza tra il deposito definitivo per rifiuti a vita breve e quello per rifiuti a vita lunga.

Ai primi è sufficiente assicurare un periodo di isolamento dell'ordine dei trecento anni perché essi diventino radiologicamente innocui, per i secondi questo periodo può essere di decine o centinaia di migliaia di anni, in certi casi milioni di anni. Trecento anni sono un periodo che possiamo definire storico, diecimila o centomila anni sono un periodo geologico. Mentre è possibile provvedere mediante opere costruite dall'uomo ad un completo ed affidabile isolamento che duri per qualche secolo, per un isolamento che duri per periodi geologici bisogna ricorrere ad altro.

Nei due casi, ad ogni modo, l'isolamento dalla biosfera viene realizzato interponendo tra la sostanza pericolosa e l'ambiente esterno un sistema di barriere la cui funzione è di impedire la fuoriuscita degli isotopi radioattivi dal deposito in ogni circostanza prevedibile, incluse quelle di carattere incidentale. Siccome l'unico mezzo che può veicolare le sostanze radioattive verso l'esterno è l'acqua, attraverso un meccanismo di solubilizzazione o semplicemente di

trascinamento, la funzione delle barriere del deposito è in pratica quella di prevenire che un qualsiasi mezzo acquoso, di qualsiasi origine, venga in contatto con i radionuclidi contenuti nei rifiuti condizionati, e comunque di impedire che, qualora per qualsiasi motivo questo avvenga, non ci sia rilascio alla biosfera di livelli dannosi di dose di radioattività.

La prima di queste barriere è costituita dallo stesso manufatto solido prodotto con il processo di condizionamento, il cui materiale viene individuato e selezionato proprio per assicurare sia la segregazione delle sostanze radioattive che la sua resistenza ad agenti fisici e chimici esterni. Di per sé, il contenitore di acciaio speciale contenente le scorie condizionate, di cui al momento della produzione vengono accuratamente controllate la tenuta e la saldatura, potrebbe essere depositato a cielo aperto ed esposto per così dire alle intemperie per molti anni senza alcun rilascio e senza subire niente di più di una certa ossidazione superficiale. Ma ovviamente non è questo che avviene: la concezione e le strutture del deposito devono essere tali da fornire barriere supplementari interposte tra il manufatto e l'ambiente esterno.

La sicurezza del deposito sia nel breve che nel lungo periodo si basa quindi sull'affidabilità di queste barriere addizionali, la cui natura dipende ovviamente da quanto a lungo dovrà essere mantenuto l'isolamento. Pertanto, è il tipo di barriere che si predispongono a differenziare radicalmente un deposito per rifiuti a vita breve da quello per rifiuti a vita lunga. Per un deposito di rifiuti a bassa attività per il quale l'isolamento deve essere di durata secolare si usano barriere in calcestruzzo, ed il deposito si può costruire in superficie, o comunque in strati della litosfera prossimi alla superficie. Per quello ad alta attività, in cui si richiede un isolamento per periodi geologici, si usano come barriera giacimenti geologici profondi, che per le loro particolari proprietà possono dare le garanzie richieste.

Per entrambi i tipi di deposito, superficiale e geologico, è necessario dimostrare in sede di progetto che le barriere da predisporre diano le garanzie richieste, cioè che la loro performance sia adeguata per mantenere i rifiuti completamente isolati dalla biosfera per tutto il periodo considerato. Le barriere devono cioè, come si dice in gergo, essere qualificate.

E' questa qualificazione della barriera che rende, insieme con la adeguata soluzione di arte mineraria da mettere in opera, la realizzazione del deposito geologico di gran lunga più complessa, più lunga e più costosa rispetto al deposito superficiale.

### **1.5 Barriere di sicurezza nello smaltimento geologico**

È ampiamente concordato tra gli esperti in campo tecnico e scientifico che lo smaltimento geologico definitivo in profondità rappresenta il modo migliore in termini di affidabilità e sicurezza per gestire i materiali altamente radioattivi provenienti dagli impianti nucleari. La ricerca riguardo alla fattibilità tecnica e alla sicurezza è in corso da più di tre decenni e ha raggiunto elevati gradi di maturità mentre, ostacoli ancora presenti per l'implementazione di un deposito geologico sono rappresentati dall'opinione, dall'accettazione pubblica e in generale dal consenso sociale.

L'obiettivo fondamentale di un deposito geologico profondo è quello di contenere i radionuclidi e di isolarli dalla biosfera per un determinato periodo. A tale scopo si utilizza una sequenza di barriere complementari/o ridondanti (vdad. es. fig. 1.1) quali:

- Il contenitore dei rifiuti (canister)
- Il materiale di riempimento con funzione impermeabilizzante (backfill)
- le rocce circostanti che ospitano il deposito geologico (host-rock).

Ogni componente del deposito, naturale o ingegneristico che sia, ha il compito di adempiere determinate funzioni, da solo o in combinazione con altri. Il grado di complementarità e di ridondanza richiesto dipende dalla legislazione nazionale e dalla scelta della formazione ospitante il deposito. I principali tipi di rocce che si stanno studiando in Europa sono il granito, le rocce sedimentarie (argille plastiche o indurite) e i cristalli di sale (salgemma). In USA si sta considerando anche il tufo di origine vulcanica (Yucca Mountain). La scelta ricade su queste formazioni poiché sono quelle più stabili e che hanno le migliori caratteristiche per il contenimento e l'isolamento dei radionuclidi. In base alle formazioni scelte, è posta un' enfasi diversa su ogni elemento del sistema di smaltimento; ad esempio nelle formazioni di argilla si pone molta enfasi sulla capacità di ritenzione delle rocce, mentre nelle formazioni granitiche, che presentano un minor grado di ritenzione, si pone più enfasi sugli elementi ingegneristici, quali i contenitori e i materiali di "backfill". Le formazioni granitiche sono oggetto di studio in Svezia, Finlandia, Francia, Repubblica Ceca; quelle di argilla in Belgio, Francia Spagna e Svizzera; quelle di salgemma solo in Germania.

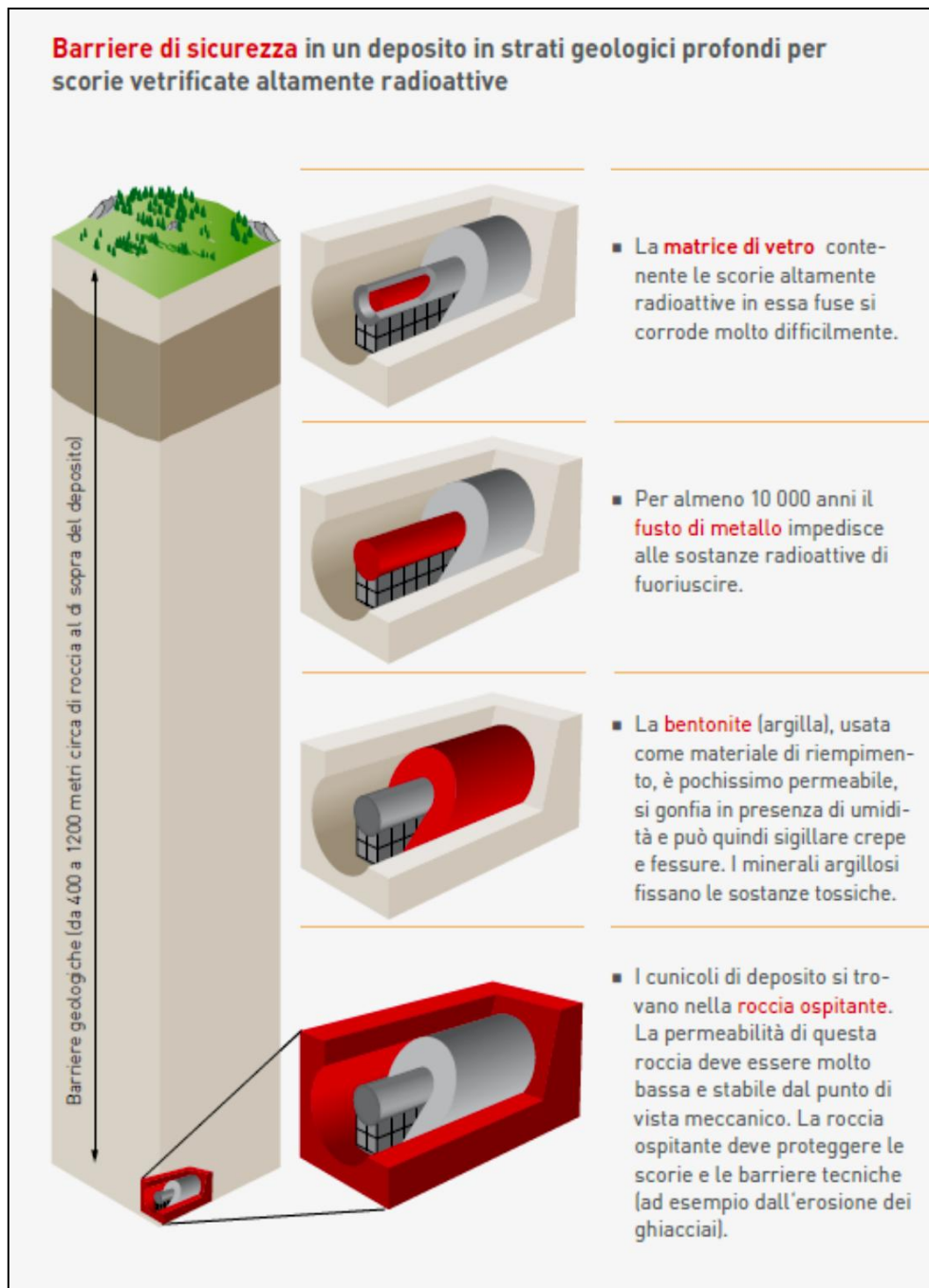


FIG. 1.1

## 1.6 Il concetto multi-barriera

La sicurezza del deposito per lo smaltimento dei rifiuti radioattivi si basa generalmente sul concetto di un sistema multi-barriera che assolve alle seguenti funzioni di sicurezza:

- isolamento dei rifiuti dall'ambiente umano;
- confinamento a lungo termine e decadimento radioattivo dei rifiuti all'interno del sistema barriera;
- attenuazione delle emissioni nell'ambiente.

Questo sistema multi-barriera comprende, solitamente, il sistema ingegnerizzato delle barriere (EBS) e la barriera geologica naturale.

L'EBS è rappresentato da elementi ingegnerizzati e opportunamente realizzati e collocati nel deposito, che comprende la matrice dei rifiuti, il suo contenitore, il tampone o materiale di riempimento. Lo spazio intorno al contenitore è riempito con materiale *tampone* idoneo a fornire per il contenitore un'adeguata stabilità strutturale, idraulica e chimica a lungo termine. Una volta ultimate le operazioni di collocamento dei rifiuti nel deposito, gallerie e pozzi di accesso sono riempiti e sigillati alla superficie. La caratterizzazione dell'EBS è particolarmente importante in quei sistemi di smaltimento in cui la geosfera si presume non ricopra ruolo importante nelle funzioni di contenimento o per quegli scenari in cui si presume che le prestazioni della geosfera potrebbero essere compromesse da eventi distruttivi. Al contrario, negli scenari dirompenti per i quali sono le funzioni di sicurezza dell'EBS ad essere compromesse occorre caratterizzare in modo completo la geosfera. In generale, l'EBS svolge un ruolo importante nelle prestazioni richieste ai fini della sicurezza complessiva del deposito nei sistemi di smaltimento in cui il deposito è ospitato in formazioni cristalline. Per un deposito situato in una roccia d'argilla, il contributo dell'EBS nelle prestazioni complessive del sistema di confinamento è minore e, quindi, è la barriera geologica naturale che funge principalmente da barriera d'isolamento (programmi di Belgio e Svizzera). Tuttavia, occorre rilevare che in scenari evolutivi alternativi le proprietà dell'EBS possono essere di fondamentale importanza per la sicurezza generale del deposito in quanto, comunque, una corretta fabbricazione dell'EBS può essere molto efficace nel ritardare il fenomeno di trasporto dei radionuclidi nella biosfera. Un'altra possibilità per descrivere il deposito è dividendo il sistema in tre componenti: campo vicino, campo remoto/geosfera e la biosfera. I componenti sono descritti nei paragrafi seguenti e la maggior parte dei modelli di valutazione delle prestazioni nei processi di rilascio di radionuclidi e di trasporto si basa su tale suddivisione, anche se in modo integrato.

### 1.6.1 Forme di rifiuti

I principali tipi di rifiuti ad alta attività presi in considerazione per lo smaltimento geologico in profondità in Europa sono:

- rifiuti vetrificati ad alta e media attività (HLW, ILW);
- combustibile nucleare esaurito (Spent Fuel, SF).

Per una migliore comprensione del fenomeno della *dissoluzione del vetro* in presenza dei diversi tipi di acque sotterranee e dei diversi componenti del deposito, sono condotte specifiche attività di ricerca. In tutti i sistemi di smaltimento geologico i rifiuti vetrificati sono collocati in cilindri d'acciaio. I cilindri sono sistemati in appositi volumi (formazioni, gallerie, pozzi) che vengono riempiti con materiali argillosi di riempimento (backfill) quali: bentonite, bentonite/sabbia, bentonite/rocce frantumate e nel caso di formazioni di sale con un miscuglio di bentonite/sale. Questi materiali hanno il compito di creare una barriera impermeabile, in modo da tamponare l'acqua sotterranea e impedire che vada a lambire i contenitori. L'acqua è, infatti, il vettore più temuto per il trasporto della radioattività nella biosfera.



Il combustibile esaurito consiste principalmente in pellets contenute in un rivestimento e contenenti al loro interno i prodotti di fissione. Questo combustibile è sistemato in contenitori di acciaio o di una combinazione acciaio/rame. Come per il vetro, anche la *dissoluzione del combustibile* e *l'interazione con gli altri componenti del deposito* sono in fase di studio e di ricerca. Poiché sia l'impiantistica nucleare che il ciclo del combustibile sono in continua evoluzione, è necessario che gli studi e le ricerche riguardanti il comportamento del combustibile esaurito proseguino ininterrottamente, aggiornando i risultati cui si è pervenuti in precedenza.

La matrice dei rifiuti è progettata per fornire una forma stabile ai rifiuti solidi che sia resistente alla lisciviazione e fornisca lenti tassi di rilascio di radionuclidi. Ci sono due possibili forme di rifiuti: combustibile esaurito che è contenuto nel suo rivestimento di zircaloy e HLW rielaborati che, è inserito all'interno di una diversità di matrici non radioattive vetrose, ceramiche, cementizie o altre matrici stabili. In generale, gli inventari di radionuclidi forniti da molti programmi nazionali sono sostanzialmente in linea tra loro (SAFIR-2, Nagra 2002, TR-04-11). Tuttavia, a causa dell'incertezza sull'inventario di alcuni radionuclidi specifici, ai fini della sicurezza l'inventario dovrebbe essere sempre sovrastimato in modo conservativo al fine di ridurre al minimo le incertezze dei risultati dovuti a inadeguate stime del termine sorgente.

### **1.6.2 Contenitori dei rifiuti**

La funzione principale dei contenitori, una volta collocati nel deposito, è quella di fornire la prima barriera fisica e geochimica contro la dissoluzione dei rifiuti vetrificati o del combustibile esaurito. I contenitori devono presentare adeguate caratteristiche meccaniche, poiché devono essere in grado di resistere ai carichi esercitati su di essi dopo la chiusura del deposito. A tale scopo, ai contenitori di rame si aggiunge anche l'acciaio, in modo da incrementarne la resistenza alla deformazione. In alcuni sistemi di smaltimento, come ad esempio in Belgio, il primo contenitore di acciaio al carbonio è circondato da uno strato di cemento portland e il tutto è contenuto in un contenitore di acciaio inossidabile. In ogni caso poi il contenitore è collocato nel deposito geologico e circondato con materiali di riempimento (backfill). *Questo "supercontenitore" offre ottime prestazioni meccaniche (in termini di resistenza strutturale) e chimiche (in termini di resistenza alla corrosione e in termini di una bassa solubilità dei radionuclidi, dovuta all'ambiente alcalino che si crea con l'utilizzo del cemento portland).*

Negli ultimi decenni sono stati eseguiti molti studi e sono state compiute molte ricerche riguardo al comportamento dell'acciaio e del rame all'interno dei vari tipi di deposito. Il comportamento *a lungo termine* di questi materiali è stato valutato utilizzando analoghi oggetti costruiti dall'uomo, come ad esempio *manufatti archeologici in rame*. La ricerca nel campo della corrosione di acciaio e rame in soluzioni acquose ha raggiunto una certa maturità, tuttavia sono richiesti ulteriori studi sul comportamento dei prodotti di corrosione (generazione e migrazione) all'interfaccia tra i contenitori di acciaio e il materiale di riempimento impermeabilizzante (backfill).

Il grande sviluppo in campo nucleare, con il raggiungimento di burn-up più elevati e l'introduzione di nuove tipologie di combustibile come il MOX (combustibile a ossidi misti), ha richiesto la

revisione e la modifica dei progetti dei contenitori, dando luogo alla necessità di compiere attività di ricerca e sviluppo in questo campo.

Il contenitore rifiuti è un elemento essenziale dell'EBS in molti concetti nazionali di deposito geologico profondo. Il contenitore deve essere progettato in struttura metallica per isolare i rifiuti radioattivi dalle acque sotterranee per lunghi periodi di tempo, assicurando così che la maggior parte della radioattività decada all'interno del contenitore. Il materiale del contenitore deve essere resistente alla corrosione e resistere alla pressione idraulica e al rigonfiamento causato dalle future glaciazioni. Inoltre, la sua progettazione deve essere adattata al tipo specifico di rifiuti.

I requisiti principali del contenitore dei rifiuti sono i seguenti:

- prestazioni meccaniche (resistenza),
- prestazioni chimiche (resistenza alla corrosione e microbici),
- prestazioni termiche (conducibilità termica),
- prestazioni radiologiche (criticità e schermature)
- compatibilità con i materiali del tampone e la matrice dei rifiuti,
- prevedibilità delle prestazioni (comprensione del comportamento dei materiali su lunghi periodi),
- precedente esperienza (prestazioni registrate e comprovate),
- costo ragionevole,
- facilità di fabbricazione.

La resistenza alla corrosione è di solito il criterio più importante per tutta la vita del contenitore per rifiuti, che includono la resistenza alla corrosione generalizzata e localizzata, alla rottura per corrosione con e senza idrogeno.

Il contenitore può essere realizzato in ferro o acciaio, o un metallo meno reattivo come il rame e titanio, o una combinazione di entrambi. Anche se ferro e acciaio si corrodono più velocemente di altri materiali metallici, le condizioni redox del tampone dovute all'ossigeno liberato nell'escavazioni del campo vicino mantengono condizioni ambientali riducenti. Ambienti chimicamente riducenti sono favorevoli perché la maggior parte dei radionuclidi che rappresentano un potenziale pericolo di rilascio sono scarsamente solubili in tali condizioni che riducono anche la velocità di corrosione.

Rame e titanio si corrodono molto più lentamente rispetto all'acciaio, con vita potenzialmente più lunga ma presentano minori capacità per il tampone di raggiungere condizioni redox. La ghisa è molto più resistente del rame. Per esempio, il concetto svedese di contenitore a doppio strato, prevede la ghisa per assicurare la stabilità e resistenza meccanica e una schermatura in rame utilizzata principalmente contro la corrosione.

### **1.6.3 Materiali tamponi e di riempimento**

In quasi tutti i progetti di depositi geologici, gli spazi residui intorno ai rifiuti e le aperture del deposito scavate per la costruzione, devono essere riempiti/e con opportuni materiali. La

necessità di questa scelta deriva dal fatto di dover proteggere i contenitori dei rifiuti, da eventuali crolli delle rocce circostanti, che ne provocherebbero in danneggiamento e dai flussi d'acqua sotterranei, responsabili del processo distruttivo di corrosione. I materiali di riempimento hanno anche un'altra funzione di sicurezza molto importante, *cioè quella di fungere da barriera contro la migrazione dei radionuclidi*, in seguito all'inevitabile processo di corrosione dei contenitori su lunghe scale temporali. Queste funzioni di sicurezza potrebbero essere compromesse dall'essiccamento dei materiali, provocato alla produzione di calore da parte dei rifiuti all'interno dei contenitori, per opera del decadimento radioattivo. Nelle formazioni argillose e granitiche, i materiali comunemente utilizzati sono la bentonite e miscugli quali bentonite e rocce frantumate e bentonite e sabbia mentre nelle formazioni di sale (soltanto in Germania) si utilizza un miscuglio di bentonite e salgemma frantumata. Nello studio del comportamento dell'argilla, gli aspetti mineralogici, geochimici, idraulici e geomeccanici sono strettamente correlati tra loro e spesso diversi fenomeni a livello macroscopico sono controllati dagli stessi processi a livello microscopico.

Le elevate temperature che si possono raggiungere a causa del decadimento radioattivo, possono alterare le proprietà mineralogiche, geomeccaniche e idrauliche delle rocce ospiti, compromettendone le funzioni cui deve adempiere. L'intento è quindi quello di mantenere la temperatura superficiale del contenimento dei rifiuti al di sotto dei 100°C, valore ritenuto critico. I materiali tamponi di riempimento sono posti attorno ai contenitori con un contenuto d'acqua ottimale dal punto di vista geomeccanico, tale da permetterne la massima compattazione e quindi l'impermeabilizzazione. Il calore prodotto dai rifiuti radioattivi tenderà però a essiccare il materiale posto intorno, compromettendone le funzioni impermeabilizzanti, dando luogo ad una complessa sequenza di disidratazione e reidratazione dei materiali. Come suddetto, il limite di temperatura che non deve mai essere superato è 100°C, poiché le elevate temperature e la presenza di prodotti di corrosione possono provocare la precipitazione o la dissoluzione dei minerali contenuti nell'argilla alterandone le proprietà idrauliche (porosità/permeabilità). Questi processi sono stati studiati sia in laboratori di piccola scala che in laboratori di ricerca sotterranei (Underground Research Laboratory/Facility) e mentre molti dei fenomeni base sono stati compresi, la loro quantificazione in molti casi resta ancora difficile. Ad esempio, nel caso della bentonite, la risposta alle mutevoli condizioni cui è sottoposta (processo di saturazione, temperature elevate e alcalinità delle acque sotterranee) è stata ragionevolmente ben compresa, mentre gli effetti combinati e le possibili interazioni di differenti meccanismi sono ancora difficili da prevedere quantitativamente.

#### **1.6.4 Il campo remoto o geosfera**

Mentre il campo vicino comprende l'EBS costituito da: matrice dei rifiuti, contenitore, riempimento e circostante zona danneggiata dagli scavi Excavation Damaged Zone (EDZ).

Le formazioni più opportune per la realizzazione di un deposito geologico sono tipicamente rappresentate da:

- argille,
- rocce granitiche,

- strati di sale,

e tutte, non lambite dall'acqua per milioni di anni. L'acqua è, infatti, un temuto vettore dei radionuclidi verso la biosfera.

Le caratteristiche che, in generale, rendono le formazioni geologiche idonee al confinamento sono una permeabilità molto bassa, una sufficiente conduttività termica, una plasticità che limiti i rischi di frattura, una capacità notevole di fissazione fisica o chimico-fisica degli elementi che migrano, una debole solubilità e proprietà meccaniche che facilitino la perforazione e la stabilità della cavità, nonché una sensibilità ridotta di tutte queste proprietà alle variazioni delle condizioni ambientali.

Presentano questi requisiti alcuni giacimenti di rocce sedimentarie di cui c'è grande abbondanza sulla Terra, come i bacini salini (specie quelli di salgemma) formati in processi lunghissimi per l'evaporazione di oceani, e quelli argillosi. Hanno simili requisiti d'idoneità anche altri particolari tipi di rocce cristalline, come i graniti non fratturati, che sono però non altrettanto diffusi.

I giacimenti salini costituiscono un mezzo che potremmo definire ideale. Essendo il sale (nella maggior parte dei casi si tratta di cloruro di sodio, lo stesso che si usa in cucina) altamente solubile, l'esistenza stessa del giacimento testimonia l'assenza di acqua da epoche geologiche, la cui scomparsa per evaporazione è infatti il fenomeno che ha permesso la formazione del giacimento. Formatosi in milioni di anni, esso è destinato a restare stabile per periodi dello stesso ordine di grandezza. Inoltre la roccia è abbastanza plastica, quindi in grado di assorbire, senza subire fratture, eventuali sollecitazioni tettoniche alla sua periferia. Anche i bacini argillosi presentano caratteristiche ugualmente favorevoli, per alcuni anzi superiori. Le argille infatti, oltre alle note caratteristiche di stabilità e impermeabilità, hanno proprietà di barriera geochemica, il che vuol dire che possono assorbire specie chimiche migranti, che nel lunghissimo periodo potrebbero fuoriuscire dal deposito.

Il confinamento in formazioni geologiche profonde dopo un'appropriata selezione del sito presenta vantaggi definitivi in confronto con altre opzioni di confinamento sulla terra.

Il sistema geologico deve presentare struttura geologico-tettonica semplice, inesistenza di acquiferi profondi con acqua meteorica, attività tettonica non recente, rocce con bassa permeabilità e buon potenziale di ritenzione dei radionuclidi, favorevoli proprietà meccaniche della formazione rocciosa del deposito. In termini generali sono necessarie le condizioni seguenti:

- una grande distanza tra il rifiuto e la biosfera,
- una capacità di isolamento a lungo termine dei radionuclidi,
- estrapolabilità della evoluzione di un deposito su lunghi periodi di tempo sulla base dei lenti cambiamenti verificabili della geologia nel passato,
- affidabilità del confinamento definitivo dei rifiuti radioattivi,

- analisi degli approcci concettuali e dei risultati di osservazioni ed esperienze in ambiti nazionali e internazionali per il condizionamento e lo smaltimento dei rifiuti di III categoria,
- esclusione di interventi e monitoraggio a lungo termine del deposito dopo la sigillatura ed il riempimento di inerti di un deposito,
- limitatezza di elevati impatti antropogenici nei riguardi della sicurezza.

Lo smaltimento geologico rappresenta un sistema di confinamento passivo per cui il deposito può essere considerato "a perdita di memoria" dopo che, per un lungo periodo, di qualche secolo, è stato mantenuto aperto e "reversibile", per quanto riguarda la possibilità di ri-estrarre e riparare rifiuti confezionati in maniera difettosa.

L'esposizione alla radiazione dell'uomo e dell'ambiente risultante dalla presenza del rifiuto eliminato può essere esclusa per periodi di tempo molto lunghi.

L'intrusione umana in un deposito sigillato in formazioni geologiche profonde in caso di guerra o di terrorismo è altamente improbabile. Inoltre, il comportamento a lungo termine delle formazioni geologiche profonde può essere predetto meglio dello sviluppo della società umana.

Lo svantaggio dell'eliminazione in formazioni geologiche profonde è costituito, in confronto con la longevità del rifiuto, dalla scarsa significatività di un monitoraggio temporalmente possibile per un periodo iniziale troppo breve in rapporto alla lentezza di processi, quali quelli geochimici. Ogni errore progettuale o realizzativo sarebbe possibilmente riconoscibile come tale solo dopo periodi di tempo molto lunghi. Non potrebbe essere corretto l'errore di ubicazione sitologica di un deposito e non potrebbero essere prese contromisure di riparazione nel deposito stesso.

#### **1.6.4.1 La zona satura e insatura**

La zona satura è la regione della roccia in cui tutte le fratture e le cavità porose sono riempite completamente di acqua liquida, a una pressione idrostatica e/o litostatica, circa equivalente alla misura di profondità. La zona insatura è la regione subito sopra della zona satura in cui in una certa frazione del volume delle fratture e delle cavità porose contiene aria o vapore acqueo, e non acqua liquida

In generale il deposito di smaltimento geologico è pensato situato nella zona satura, subito sottola falda freatica, fatta eccezione per il progetto di Yucca Mountain negli Stati Uniti dove il deposito per il combustibile esaurito è previsto essere situato in una spessa (centinaia di metri) zona insatura.

La zona satura e quella insatura sono separate dalla 'tavola dell'acqua'.

Per valutare il movimento del soluto nelle acque lungo le rocce in zona satura e insatura i modelli di trasporto e di flusso idrogeologico sono diversi. Tuttavia, quanto appena detto, non si applica alle formazioni saline.

Diversi paesi stanno prendendo in considerazione una varietà di ambienti geologici profondi per lo smaltimento di rifiuti radioattivi a lunga vita e le sezioni seguenti descrivono brevemente i concetti di deposito, classificati come segue:

DEPOSITO IN ZONA SATURA	DEPOSITO IN ZONA INSATURA
Rocce compatte o fratturate (cristalline)	Formazioni tufacee
Formazioni argillose	
Formazioni evaporitiche	

#### **1.6.4.2 Rocce compatte o fratturate**

Le formazioni di rocce compatte o fratturate (cristalline) si formano sia da raffreddamento da uno stato fuso o per deformazione e ricristallizzazione di rocce preesistenti. Si presentano come singole intrusioni ignee o terreni ignei o metamorfici molto estesi la cui formazione e consolidamento si sono verificati durante le varie fasi di orogenesi.

Queste rocce sono resistenti ma presentano comportamento fragile e, comunemente, le rocce metamorfiche mostrano segni di almeno un periodo di deformazione. Anche se la matrice rocciosa presenta bassa porosità e permeabilità; fratture, faglie e tagli della roccia possono conferire a quest'ultima alta porosità e alta permeabilità. Le fratture possono separare grandi volumi di roccia da altri interessati da flussi idrici sotterranei con caratteristiche di trasporto del soluto significativamente differenti.

Diversi paesi hanno considerato localizzare depositi in profondità nella roccia cristallina, tra cui: Argentina, Canada, Repubblica Ceca, Finlandia, Francia, India, Giappone, Repubblica di Corea, Federazione Russa, Spagna, Svezia, Svizzera, Taiwan, Ucraina e Regno Unito.

Le profondità considerate per questo tipo di deposito sono di circa 500-1000 m. Genericamente, il progetto potrebbe prevedere una sorta di miniera, accessibile da pozzi verticali e costituito da gallerie profonde orizzontali e parallele da riempire con gli appositi contenitori di rifiuti.

#### **1.6.4.3 Formazioni argillose**

Le formazioni argillose (argille, fango indurito, marne, scisti), considerate come rocce ospitanti possono estendersi in ampi bacini sedimentari. Questi bacini normalmente sono composti di strati di rocce che possono presentare considerevole diversità di permeabilità tra formazioni adiacenti (ad esempio arenarie e scisti).

Le formazioni argillose possono essere molto estese lateralmente e relativamente omogenee, caratteristica che consente una certa fiducia nella predizione delle loro caratteristiche medie ottenute dalle misure sperimentali di campo.

Durante il suo sviluppo, le formazioni di un bacino sedimentario sono interrato a grandi profondità e la loro porosità e il contenuto d'acqua sono generalmente ridotti. Di conseguenza, le formazioni

perdono gradualmente la maggior parte della loro plasticità, che è legata essenzialmente al contenuto di acqua satura di minerali argillosi. Concettualmente, le argille plastiche possono essere considerate come mezzi porosi essenzialmente continui, fatto che semplifica la relativa modellazione idrogeologica, mentre per altre argille si deve ricorrere, come per le rocce cristalline, a modelli a doppia porosità ad *argille fratturate* (la maggior parte dei fanghi induriti e scisti sono fratturati).

Diversi paesi hanno ipotizzato di localizzare depositi in profondità in formazioni argillose, tra cui: Belgio, Francia, Giappone, Federazione Russa, Spagna, Svizzera e Stati Uniti.

#### **1.6.4.4 Formazioni evaporitiche**

Le rocce evaporitiche sono state comunemente prodotte dal prolungato fenomeno, in situ, dell'evaporazione di corpi idrici superficiali alimentati di acque saline. Essi includono letti di salgemma e anidrite. I letti di salgemma sono quelli più comunemente selezionati come roccia ospitante il deposito di rifiuti radioattivi.

Sequenze di formazioni evaporitiche che forniscono un adeguato spessore per ospitare un deposito si trovano generalmente nei grandi bacini sedimentari. Letti evaporitici possono comprendere sequenze evaporitiche complesse e stratificate in diversi spessori e composizione mineralogica, con formazioni sedimentarie, argille, sabbie e scisti.

Le rocce evaporitiche possono rimanere stabili in questa originale disposizione sub-orizzontali (letti salini) o, all'aumentare della profondità di sepoltura, possono diventare instabili modificando la loro densità e plasticità fino a diventare mobili, dando luogo a spostamenti d'insieme con direzione preferenziale verso l'alto attraverso i sedimenti sovrastanti (halocinesi).

Le formazioni saline sono potenzialmente adatte come rocce ospitanti il deposito, perché sono molto spesso caratterizzate da conducibilità idraulica molto bassa, assenza di acque sotterranee liberamente mobili, una relativamente alta conduttività termica e una bassa porosità. Inoltre, possono deformarsi plasticamente, fenomeno che favorisce la richiusura di eventuali aperture. Queste caratteristiche assicurano un trasporto decisamente limitato di radionuclidi e un'efficace dissipazione del calore generato dal decadimento radioattivo. La Halite è stata tra le prime formazioni geologiche identificate come aventi un buon potenziale per ospitare un deposito [1].

Diversi paesi hanno considerato la possibilità di utilizzare formazioni evaporitiche (letti o cupole saline) per lo smaltimento dei rifiuti radioattivi, tra cui: Germania, Danimarca, Germania, Paesi Bassi, Federazione Russa, Spagna, Ucraina e Stati Uniti.

#### **1.6.4.5 Formazioni tufacee**

Le rocce tufacee (tufi) sono il prodotto del vulcanismo silicico e andesitico. Comunemente si sono formate come deposizione di flussi di cenere lavica o come risultato della ricaduta di cenere lavica. La contrazione della cenere durante il raffreddamento produce uno strato omogeneo che può

essere parzialmente o completamente riempito da minerali che si sono ricristallizzati dalla fase di vapore.

Mentre i flussi di cenere tufacea, a causa dello sviluppo d'intensi flussi di calore interno, possono *saldarsi* in formazioni rocciose dopo la deposizione, i tufi ottenuti da caduta di cenere sono depositati come materiale relativamente fresco, e quindi *non saldati*, o solo parzialmente *saldati*. I tufi non saldati o parzialmente saldati sono più porosi e in genere hanno maggiore permeabilità rispetto ai tufi saldati. Fratture di raffreddamento sono sparse o assenti in tufi non saldati o parzialmente saldati.

Un deposito nazionale in tufo è stato proposto per il sito statunitense di Yucca Mountain, che si trova in una regione semi-arida del sud del Nevada, USA. Questo sito è costituito da una fitta sequenza di depositi vulcanici, con base di carbonati. Il deposito sarebbe scavato nella zona insatura nella parte superiore di questa sequenza, 200-400 m sopra l'attuale falda, con l'obiettivo di limitare l'accesso delle acque superficiali al deposito.

#### **1.6.4.6 Proprietà geomeccaniche**

Gli scavi per la realizzazione delle gallerie di un deposito geologico inducono situazioni di stress sulle rocce circostanti, per questo bisogna utilizzare tecniche di scavo ben specifiche in base alle formazioni rocciose prese in considerazione. Le proprietà della zona in cui è realizzato lo scavo (Excavation Damaged Zone, EDZ) continuano a essere dettagliatamente investigate e studiate nel corso del tempo.

In generale, uno scavo comporta un aumento della permeabilità dovuto all'apertura delle fratture. Per ovviare tale problema, le fratture potrebbero essere sigillate utilizzando tecniche geotecnologiche, ma ciò condurrebbe a un ulteriore inconveniente, ovvero al processo di erosione dei materiali sigillanti, su lunghe scale temporali.

A tal proposito sono in corso approfonditi studi e ricerche dal punto di vista geo-ingegneristico per le formazioni saline e per alcune tipologie di argille. Esse mostrano delle proprietà di autorimarginazione (*self-healing*) e di auto-sigillo (*self-sealing*) che possono avere un'importante funzione di sicurezza all'interno del deposito. Allo stesso tempo però, date queste proprietà, per mantenere aperti i tunnel e gli scavi è necessario l'utilizzo di grandi quantità d'acciaio e cemento. Il problema di ciò è che, mentre il cemento ha effetti benefici in termini geochimici, poiché abbassa la solubilità di molti radionuclidi, può avere effetti estremamente dannosi sulle proprietà di molti materiali argillosi, alterandone le funzioni cui devono adempiere. Una visione globale che sta acquisendo sempre più consenso è quindi quella di limitare l'utilizzo di materiali estranei, almeno nei depositi realizzati in formazioni argillose e di considerare quelli che si utilizzano, al momento dell'istituzione del *SAFETY CASE*.

#### **1.6.4.7 Proprietà idrauliche**

I materiali geologici, riguardo alla loro permeabilità sono classificati in base a:

- come avviene la conduzione nella matrice porosa costituente il materiale; oppure



- come avviene la conduzione attraverso una frattura del materiale.

Non sempre questa distinzione è netta. Nel caso del granito, tipicamente la conduzione avviene soltanto attraverso la frattura, ma può anche accadere che sia presente un contributo non trascurabile di porosità tale da permettere il movimento dell'acqua. Al contrario, ad esempio nell'argilla indurita, oltre alla conduzione attraverso la matrice porosa, bisogna tener conto della conduzione attraverso un eventuale frattura del materiale. Per descrivere quantitativamente la distribuzione delle fratture nelle rocce, sono stati effettuati molti esperimenti basati sull'utilizzo di sofisticate tecniche geofisiche quali le immagini tomografiche e la PET (positron emission tomography). Spesso la distribuzione della frattura e la sua permeabilità non possono essere conosciute con certezza, per questo si ricorre all'utilizzo di tecniche statistiche e probabilistiche quali la WHAT-IF ANALYSIS.

Il movimento dell'acqua nell'argilla è più controllato dagli effetti fisico-chimici piuttosto che dalla classica meccanica dei fluidi poiché, a meno che la frattura non generi un percorso veloce, il movimento dell'acqua nell'argilla è molto lento. La permeabilità dell'argilla può subire significative variazioni se il fluido con cui viene a contatto ha dei costituenti che possono interagire con i suoi minerali. Ad esempio, soluzioni saline o a elevato pH (alcaline), come quelle risultanti dal contatto con il calcestruzzo, possono causare la disgregazione del materiale e il conseguente incremento di permeabilità dell'argilla, che si traduce in una minore *capacità di ritenzione per i radionuclidi*.

Alla luce di ciò, una serie di processi che possono risultare dannosi e che non sono stati ancora quantitativamente compresi, sono in fase di studio.

## **1.7 Generalità sul fenomeno di trasporto di radionuclidi in un deposito profondo**

Questa sezione illustra l'approccio alle modellazioni concettuali dei processi di trasporto di radionuclidi che possono essere utilizzate nelle valutazioni delle prestazioni dei depositi profondi. In particolare, sono presentati gli approcci allo sviluppo del modello concettuale, l'analisi dei dati e la sperimentazione di modelli matematici e come questi possano utilizzare, in analogia, le informazioni provenienti da studi su altri fenomeni naturali.

Gli studi da cui trarre considerazioni analogiche si sono concentrati sulle formazioni cristalline e argillose e, in misura molto minore, sulle rocce vulcaniche e sulle evaporitiche [2, 3] che non sono discussi in questa sede. Questo riassunto riflette lo stato degli studi eseguiti in ambito strettamente geologico (cristallino, rocce tufacee e argillose) e dovrebbe essere presa solo come guida per l'indicazione dell'idoneità delle differenti scelte sulla roccia ospitante il deposito.

### **1.7.1 I processi di trasporto**

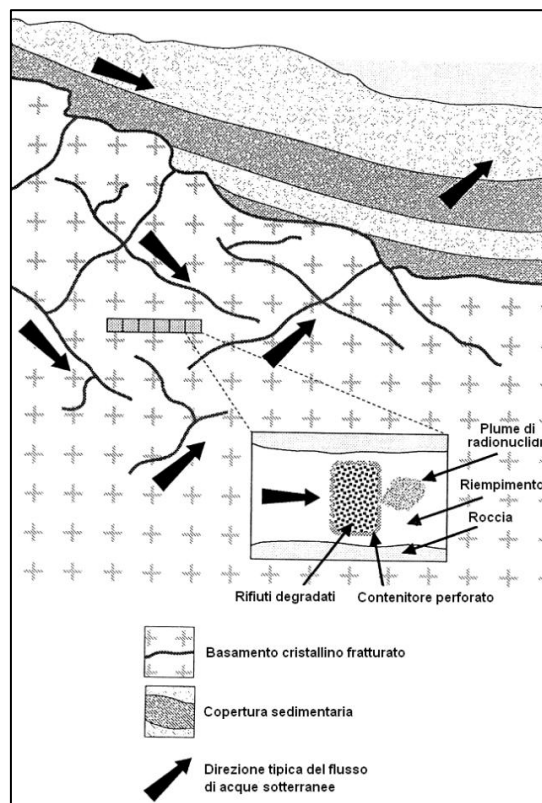
Il trasporto di un soluto nelle acque sotterranee può avvenire per *avvezione* o per *diffusione*.

L'avvezione è considerato il processo dominante in mezzi con caratteristiche di elevata permeabilità, quali formazioni cristalline fratturate e argillose, strati sabbiosi all'interno di letti di argilla o di tufi densamente saldati. Per le argille plastiche, la diffusione è generalmente considerata il processo di trasporto prevalente. Questa distinzione fondamentale è alla base di

alcuni dei modelli concettuali discussi più avanti in questa sezione. In analogia con studi su processi naturali, sono stati individuati una serie d'importanti processi che influenzano la mobilità dei radionuclidi. Ai fini della valutazione della sicurezza, questi possono essere caratterizzati come processi che alterano la mobilità e il trasporto dei radionuclidi e altri processi che contribuiscono a ritardarne il trasporto. Alcuni processi, come l'assorbimento dei radionuclidi da parte dei colloidali, in funzione delle condizioni geochimiche e idrodinamiche possono verificarsi le condizioni che favoriscono sia il trasporto sia il ritardo.

Nelle figure seguenti sono riportati gli schemi semplificati di rilascio e di trasporto in rocce cristalline fratturate, nelle rocce argillose e in quelle tufacee.

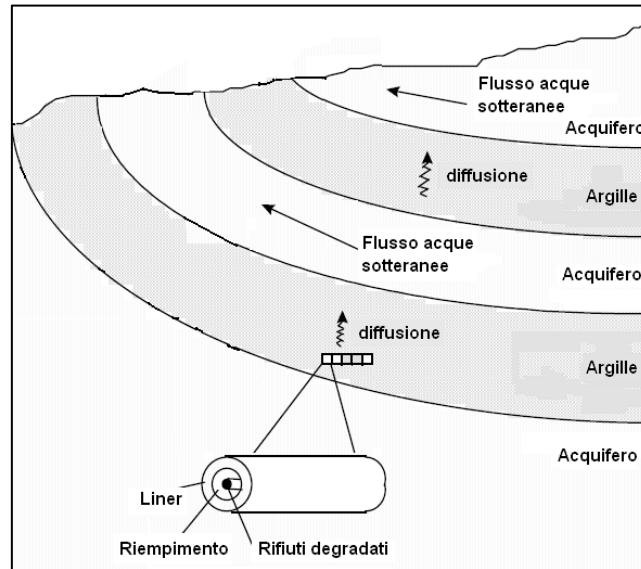
In figura 1.2 è riportato lo schema di rilascio e di trasporto in rocce cristalline fratturate. Durante un lungo periodo i componenti progettati come prime barriere protettive si degradano. Alla fine, i rifiuti saranno esposti alle acque sotterranee e cominciano a dissolversi. I radionuclidi saranno convogliati attraverso la rete di fratture come soluti, o anche, in forma di particolato. La loro migrazione può essere ritardata dall'assorbimento sulla roccia nel campo lontano o, nel campo vicino, sul materiale tampone (es. bentonite) o sui prodotti di degradazione del contenitore. Il fenomeno di trasporto può anche essere ritardato dalla diffusione nei vicoli ciechi tra i pori nella roccia [4].



**FIG. 1.2**

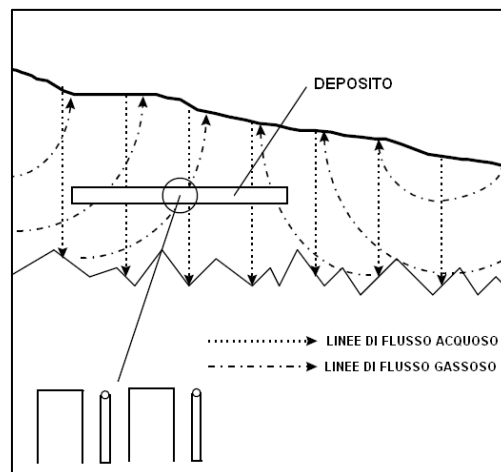
In figura 1.3 È mostrato lo schema semplificato del rilascio e le vie di trasporto nelle rocce argillose. I processi di rilascio in campo vicino sono simili a quelli in figura 1.2. In argille plastiche (non fratturate), i trasporti nelle barriere artificiali possono essere dominati dal fenomeno della

diffusione piuttosto che dall'avvezione. La migrazione dei radionuclidi può essere ritardato dall'elevata capacità di assorbimento della roccia argillosa. Una frazione di radionuclidi può potenzialmente raggiungere le falde acquifere e può quindi inserirsi nel sistema di avvezione delle acque sotterranee, tipico della regione.



**FIG. 1.3**

Nella fig. 1.4 è mostrato lo schema semplificato del rilascio e le vie di trasporto per un deposito ospitato in rocce tufacee densamente saldate, nella zona insatura. La temperatura del campo vicino inizierà ad aumentare  $10^2$ - $10^4$  anni dopo la disposizione, influenzando la distribuzione dei fluidi nel campo vicino della roccia ospitante. La degradazione dei rifiuti sotto condizioni di ossidazione contribuirà al trasporto di radionuclidi nella biosfera o in acqua trasportata per avvezione, o per trasporto gassoso o a causa di scenari distruttivi.



**FIG. 1.4**

La migrazione dei radionuclidi può essere ritardata dall'adsorbimento sui prodotti di degradazione del contenimento, nelle superfici di frattura o sui rivestimenti minerali dei pori accessibili del tufo [5].

Nelle tabelle 1.1 e 1.2, sono riportati i processi più rilevanti che condizionano il fenomeno del trasporto di radionuclidi e le relative definizioni, anche se queste ultime potrebbero, almeno in parte, non essere ampiamente accettate dalla comunità scientifica che si occupa di fenomeni naturali analoghi e, più in generale, dai geologi. Altri processi, non compresi nel seguente elenco (ad esempio l'osmosi) sono state postulate o suggerite da esperimenti di laboratorio, ma la loro importanza non è stata dimostrata da studi su fenomeni naturali analoghi.

**Tab. 1.1 - Processi rilevanti per il trasporto di radionuclidi - Definizioni**

Advezione	Movimento di massa di un fluido (e dei soluti contenuti) indotta da un gradiente di pressione.
Diffusione	Movimento di soluto indotta da un gradiente di concentrazione.
Capillarità	Movimento dell'acqua indotto dalla depressione all'interno dei pori o in microfratture della matrice rocciosa.
Dissoluzione	Trasformazione solido-liquido di sostanze chimiche nelle acque sotterranee in condizioni di sotto saturazione.
Recoil	Espulsione e immissione in soluzione nelle acque sotterranee adiacenti di un radionuclide discendente prodotto da un radionuclide genitore presente in fase solida e che subisce decadimento alfa.
Assorbimento colloidale	Assorbimento di radionuclidi per inclusione all'interno o sopra piccole particelle organiche o inorganiche in sospensione nelle acque sotterranee o nell'acqua nei pori.
Desorbimento	Rimozione di radionuclidi presenti su superfici di minerali dovuta a interazione su scala molecolare con la soluzione, e conseguente aumento della loro concentrazione in fase liquida.
Ritardo	Rimozione di radionuclidi presenti in soluzione dovuta a interazione su scala molecolare con le superfici di minerali e conseguente diminuzione della loro concentrazione in fase liquida.
Precipitazione	Trasferimento da fase liquida a fase solida, indotta su sostanze chimiche in sovra saturazione.
Diffusione in matrici porose	Trasferimento di radionuclidi dal movimento di advezione (acque sotterranee in fratture) a un più lento movimento, controllato dalla diffusione, nei vicoli ciechi dei pori della matrice rocciosa.
Filtrazione	Separazione meccanica di particolato per restringimenti dei pori durante movimenti advettivi.

**Tab. 1.2. - Processi rilevanti per il trasporto di radionuclidi per tipo di roccia ospite**

	TIPO DI ROCCIA OSPITE					
	CRISTALLINA		ARGILLOSA		TUFACEA	
	FRATTURE	MASSA	FRATTURE	MASSA	FRATTURE	MASSA
<b>TRASPORTO</b>						
Avvezione	X		X		X	
Diffusione		X		X	X	X
Capillarità		X				X
Dissoluzione		X			X	X
Recoil	X					
Assorbimento colloidale	X					X
Complessazione	X			X	X	
<b>RITARDO</b>						
Desorbimento	X	X		X	X	X
Precipitazione	X	X		X	X	
Diffusione in matrici porose	X	X		X		X
Filtrazione	X	X		X		

### 1.7.2 Processi e caratteristiche rilevanti per il comportamento dei radionuclidi

Il comportamento della migrazione dei radionuclidi è determinato dalle caratteristiche idrauliche delle rispettive rocce, dalle proprietà chimiche dell'elemento in questione e dalle proprietà mineralogiche e geochimiche dei materiali in cui può verificarsi la migrazione, ovvero i materiali di riempimento impermeabilizzanti (buffer, backfill materials) o le rocce che ospitano il deposito (host rock).

L'argilla, sia come formazione rocciosa che ospita il deposito, sia se utilizzata come materiale di riempimento, è stata studiata molto accuratamente riguardo alla sua mineralogia e ai possibili cambiamenti che può avere quando viene a contatto con i differenti materiali del deposito.

Vari programmi nazionali hanno concentrato la loro ricerca e i loro studi su come varia la ritenzione dei radionuclidi quando l'argilla interagisce con i vari materiali presenti nel deposito.

Mentre i processi geochimici per l'argilla sono stati studiati estesamente negli ultimi tre decenni, per il granito non si può affermare la stessa cosa. A causa della minor capacità di ritenzione rispetto all'argilla, *le SAFETYCASES per i depositi costruiti in formazioni granitiche pongono più attenzione ed enfasi sulle barriere ingegneristiche.*

Advezione, dispersione idrodinamica e diffusione sono i processi fisici che guidano la migrazione dei radionuclidi da un deposito. Nelle argille morbide il processo dominante è la diffusione mentre nelle argille indurite può esserci un trasporto advettivo, dovuto cioè a un moto d'insieme dei radionuclidi lungo le fratture. La dispersione idrodinamica può verificarsi invece quando all'interno di fratture aperte è presente una distribuzione di velocità.

Il processo fisico che porta alla ritenzione e su cui i *SAFETY CASES* hanno sempre più fatto affidamento è chiamato "matrix diffusion" (diffusione molecolare). All'interno delle matrici è presente una struttura porosa in cui non ha luogo nessun movimento advettivo e in cui i radionuclidi si diffondono guidati da gradienti di concentrazione. Quando le concentrazioni nelle fratture adiacenti scendono sotto a quelle delle matrici, i radionuclidi sono di nuovo rilasciati. Questo fenomeno abbassa il picco di concentrazione assoluta ma non riduce la massa totale dei radionuclidi migrati.

### **1.7.3 Proprietà termochimiche**

All'inizio della ricerca, le principali proprietà termochimiche della maggior parte dei radionuclidi non erano note, o almeno non lo erano quantitativamente. Nel corso del tempo, sono state svolte numerose ricerche sulle diverse forme chimiche (speciazione) dell'uranio e degli elementi transuranici e si sono compiuti significativi progressi nello sviluppo di varie tecniche spettroscopiche, che consentono l'osservazione della speciazione sotto condizioni simili a quelle che si trovano in natura. Il progetto "Thermodynamic Database Project", istituito dall'organizzazione europea NEA – Nuclear Energy Agency, ha contribuito a migliorare la situazione, identificando le lacune e fornendo un fondamento logico per compiere ricerche mirate.

*La mancanza più rilevante in tutti i databases termochimici continua a essere la correzione dei dati di temperatura per le costanti d'equilibrio.* La maggior parte degli esperimenti riguardanti la speciazione sono stati effettuati sotto condizioni standard di laboratorio, ovvero a 25°C e pressione atmosferica. Nelle rocce e nei materiali di backfill ci si possono aspettare temperature anche di 150 °C, per questo bisogna effettuare attività di ricerca anche per temperature comprese tra 25°C e 150° C.

### **1.7.4 Reazioni eterogenee**

Le reazioni eterogenee sono reazioni che coinvolgono più di una fase e possono avvenire soltanto nei punti di contatto tra le diverse fasi.

Precipitazione di una fase pura, precipitazione di più fasi e processi di "sorption" sono stati ragionevolmente ben definiti in condizioni di equilibrio e di laboratorio ma, in molti sistemi naturali, le rispettive reazioni spesso non sono né istantanee né reversibili e per questo diventa difficile distinguere i tre processi.

In particolare, i processi di "sorption" tra i radionuclidi in soluzione e i materiali di riempimento (backfill), sono stati studiati per diversi decenni, pur se in condizioni lontane dalla realtà. Con il termine "processi di sorption" si indicano tutti quei processi che determinano uno scambio di

massa tra le fasi presenti in un sistema (liquida, solida, gassosa). Esistono diversi tipi di modelli per studiare questi processi e il più utilizzato è quello lineare in cui il fenomeno è rappresentato mediante l'unico valore del coefficiente  $K_d$ , utilizzato nei calcoli di valutazione delle prestazioni. La ragione di ciò è il fatto che la PA è una valutazione probabilistica e per questo richiede semplici modelli di studio. Molte descrizioni meccanicistiche dei processi di "sorption" sono estremamente complesse poiché dipendono da molti parametri; riescono per questo a rappresentare meglio la realtà, ma allo stesso tempo risulta spesso difficile riuscire a gestire i calcoli.

(Il trasporto di un soluto in falda è influenzato, oltre dai meccanismi di deflusso, dai fenomeni di adsorbimento/desorbimento che sono espressi dal coefficiente di distribuzione  $K_d$ ; definito come il rapporto tra massa della sostanza nella fase solida (terreno) per unità di massa di fase solida e la sua massa nella fase liquida per unità di volume di fase liquida [Sogin, 2007 – NPVA0081]. Dipendendo da numerosi fattori locali, è fondamentale che il  $K_d$  sia accuratamente determinato nell'ambiente geochimico in cui avviene il trasporto)

#### 1.7.5 Processi redox

La maggior parte dei radionuclidi d'interesse nel contesto dello smaltimento dei rifiuti nucleari si presentano in diversi stati di valenza e possono quindi avere diverse mobilità geochimiche. In generale lo ***stato ridotto è meno mobile dello stato ossidato***. Gli esperimenti compiuti in questo campo sono spesso ostacolati dal fatto che è estremamente difficile ottenere delle condizioni anaerobiche sia nei laboratori di ricerca in superficie che in quelli sotterranei.

#### 1.7.6 Colloidi e complessazione organica

Mentre la complessazione di leganti semplici inorganici o leganti piccoli organici è stata trattata all'interno dei vari "Thermodynamic Database Project, TDB", la complessazione di macromolecole organiche è stata trattata come un problema separato, a causa della grande varietà di possibili interazioni e della grande varietà di molecole coinvolte. Le molecole di acido fulvico o umico (acidi deboli di origine naturale presenti nell'ecosistema ed originatisi dalla degradazione chimica e biologica delle piante e degli animali), possono variare in dimensione da piccole molecole dissolte in acqua a molecole più grandi, classificate come particelle colloidali, con diametro compreso tra 1nm e 1  $\mu$ m. A causa delle difficoltà che si presentano nel lavorare con gli elementi transuranici e con i prodotti di fissione, molti dei lavori e degli esperimenti riguardanti la complessazione di sostanze umiche o fulviche sono stati effettuati con l'uranio.

Per comprendere quantitativamente il comportamento degli elementi transuranici e dei prodotti di fissione in soluzioni acquose di sostanze umiche, sono ancora richiesti molti sforzi in termini di ricerca. Per quanto riguarda invece l'analisi dell'interazione dei radionuclidi con le particelle colloidali e in particolare lo studio del *processo di trasporto dei radionuclidi attraverso i colloidi*, provenienti per la maggior parte dal materiale di riempimento (backfill), sono state sviluppate e sono in fase tutt'ora in fase di studio una serie di tecniche analitiche.

La generazione dei colloidali è una funzione delle specifiche condizioni geochimiche del sito e dei materiali utilizzati, per questa ragione per ogni tipologia di deposito e assemblaggio dei materiali bisogna effettuare studi specifici.

Un altro campo che non è ancora stato compreso bene riguarda l'interazione tra i microrganismi, le macromolecole organiche e i radionuclidi. Il motivo della non completa conoscenza delle macromolecole è attribuito alla loro natura estremamente complessa e variabile, infatti, a differenza di altri costituenti come le molecole inorganiche o le semplici molecole organiche, le macromolecole non ricompaiono sempre necessariamente come lo stesso identificato composto.

### **1.8 Conclusioni**

I rifiuti radioattivi accumulati dallo sfruttamento dell'energia nucleare a fini industriali costituiscono un pericolo per più di 10000 anni dopo il loro utilizzo. Tale materiale deve quindi essere rimosso dalla biosfera in maniera tale da prevenire ogni contatto accidentale. Tale condizione può essere acquisita sistemando il materiale in un deposito sotterraneo appositamente progettato all'interno di determinate specie di rocce che possono sopportare il calore generato dal decadimento radioattivo e che siano sufficientemente impermeabili per prevenire il contatto con le acque sotterranee e il trasporto dei radionuclidi in queste e il loro rilascio in biosfera con conseguente contaminazione ambientale.

Il progetto e la costruzione di un deposito geologico di rifiuti radioattivi sono ritenuti possibili ormai da molti anni. Tuttavia la realizzazione di tali strutture è stata ritardata da un certo numero di ragioni, tra le quali le più decisive sono:

- la necessità di una valutazione dettagliata dei siti proposti per determinare le condizioni idrologiche, geochimiche e la stabilità strutturale delle formazioni geologiche tipiche di questi siti.
- una sempre più diffusa riluttanza della popolazione residente presso i siti proposti a consentirne la costruzione a causa della percezione dei rischi potenziali associabili a possibili situazioni incidentali/accidentali durante il trasporto dei rifiuti al sito o all'insorgere di problemi imprevedibili durante il loro contenimento nel deposito.

Attualmente, ogni paese con un'importante industria nucleare sta progettando la costruzione di depositi per i rifiuti generati all'interno dei propri confini. Tali depositi saranno costruiti in specifiche formazioni rocciose e seguiranno diverse linee progettuali, con ricorso a differenti metodi di condizionamento e confezionamento dei rifiuti stessi. Appare evidente che la costruzione di un gran numero di depositi su scala mondiale se, da un lato, può aumentare la probabilità d'incidenti, dall'altro, può ridurre la specifica severità delle conseguenze a essi associate. Inoltre, minori distanze di trasporto dai reattori alle strutture di eliminazione nazionali o regionali possono ridurre il rischio di situazioni incidentali nella fase, molto delicata, del trasporto. La sistemazione sotterranea dei rifiuti nucleari offre un numero di vantaggi importanti a confronto con altri metodi di eliminazione finora considerati come la deposizione in fosse marine profonde, il seppellimento nelle cappe glaciali e l'invio sul sole.



I depositi geologici offrono infatti i seguenti requisiti:

1. Sono sicuri perché una roccia ospite appropriatamente scelta può assorbire le radiazioni e dissipare il calore e perché ogni intrusione accidentale o di mala intenzione può essere prevenuta efficacemente anche solo dalla profondità del deposito situato molto al di sotto della superficie topografica.
2. La migrazione di certi radionuclidi per diffusione o advezione da parte delle acque sotterranee può essere minimizzata dall'uso del concetto ingegneristico delle barriere multiple e qualsiasi futuro movimento dei radionuclidi al di fuori del deposito può essere predetto attraverso lo sviluppo di opportuni modelli di trasporto basati sulla conoscenza delle proprietà dei nuclidi, le condizioni idrologiche nella roccia ospite, la composizione chimica e mineralogica e le proprietà di scambio delle rocce.
3. I depositi sotterranei non richiedono manutenzione dopo che siano stati riempiti e sigillati. Ciò è importante in quanto il tempo necessario per la perdita di tossicità dei rifiuti radioattivi è molto più lungo del tempo di ascesa/caduta delle forme sociali stabilmente organizzate e delle civiltà umane verificatesi nel passato.
4. I depositi geologici offrono flessibilità e convenienza nella selezione litologica e nella costruzione perché gli stessi possono essere costruiti in differenti tipi di rocce comprendenti:
  - rocce granitiche,
  - evaporiti,
  - argille,
  - tufi.

Molte nazioni, orientate alla costruzione di un deposito, possono pertanto realizzarlo all'interno dei loro confini ed i depositi possono essere localizzati in maniera tale da ridurre le distanze di trasporto dai siti di generazione dei rifiuti.

5. La costruzione di depositi sotterranei è fattibile in quanto basata su metodi ben collaudati della ingegneria civile/mineraria e il costo addizionale di costruzione di tali strutture non aumenta significativamente il prezzo dell'elettricità generata dai reattori nucleari di potenza.
6. Il rifiuto radioattivo è recuperabile anche se i depositi geologici sotterranei sono progettati per un contenimento a tempo indefinito.

Molti paesi hanno fatto progressi sostanziali per la costruzione di depositi sotterranei di rifiuti radioattivi in differenti specie di rocce: La Repubblica Federale Tedesca nel sale; Finlandia, Francia, Svezia e Regno Unito in rocce granitiche; Stati Uniti in tufi, basalti e depositi salini.

La verifica della sicurezza di depositi nucleari sotterranei nell'intervallo di tempo futuro nel quale i materiali dei rifiuti rimangono tossici deve essere predetto sviluppando opportuni modelli fisico/chimico/matematici che devono essere supportati e verificati dai così detti *analoghi naturali*

(studi sul comportamento di ambienti naturali di profondità in condizioni di analogia con il confinamento selezionato).

La validità di tali predizioni dipende da informazioni sperimentali sulla composizione dei materiali dei rifiuti e sull'ambiente geologico locale e regionale del sito.

Le proprietà specifiche della roccia ospite da valutare includono:

- a) Presenza e movimento di gas, acque e salamoie all'interno della roccia ospite nel sito e nell'area circostante e sopra e sotto il deposito.
- b) La risposta della roccia ospite alla produzione di calore dei rifiuti radioattivi e all'effetto dell'incremento della temperatura sulle proprietà geo-meccaniche e idrologiche della matrice rocciosa.
- c) Il comportamento dei radionuclidi all'interno della roccia ospite e nei potenziali percorsi della loro migrazione verso la biosfera.
- d) Rischio di cedimento del deposito per eventi geologici quali terremoti, movimenti lungo faglie, eruzioni vulcaniche, formazione di cappe glaciali, subsidenza o sollevamento dei mari.
- e) La progressiva degradazione del sistema di condizionamento dei rifiuti radioattivi e delle barriere progettate per contenere i radionuclidi, qualora la barriera geologica non fosse ritenuta perfettamente idonea al confinamento.

In questo scenario, emerge, in tutta evidenza, il ruolo centrale dei ricercatori geochimici al fine di ottenere le informazioni necessarie per predire la sicurezza futura di ogni deposito di rifiuti nucleari proposto. L'informazione necessaria è parzialmente specifica del sito, ma richiede anche studi di laboratorio sulle proprietà di base e sulle indagini sugli analoghi naturali nei quali il movimento dei radionuclidi nel passato geologico può essere osservato.

La sicurezza futura di un deposito specifico di rifiuti dipende non solo dall'assetto geologico e dai processi geochimici ma anche dalla sua configurazione e dalla complementarità delle varie componenti progettuali quali: il condizionamento del materiale dei rifiuti, la disposizione spaziale dei rifiuti, la profondità del deposito, l'uso di materiale di riempimento all'intorno dei singoli rifiuti e i metodi di occlusione delle gallerie dopo il ricovero dei rifiuti.

Il condizionamento dei rifiuti deve permetterne il trasporto e lo stoccaggio prima della loro collocazione nel deposito finale. In più la forma del condizionamento deve contribuire al contenimento a lungo termine dei radionuclidi per mezzo del conferimento di elevati livelli di resistenza meccanica e di stabilità chimica. I contenitori di HLW vetrificati dovranno probabilmente essere super strutturati per aumentarne la sicurezza durante il trasporto, assicurare la loro integrità fisica per 1000 anni o più, e ritardare il rilascio dei radionuclidi in combinazione con la seconda barriera di bentonite.

Partendo dall'assunto che nei depositi le acque non devono essere presenti, né entrare, né uscire e che la barriera idrogeologica e geochimica al contorno deve impedire qualsiasi possibilità di migrazione di radionuclidi verso l'ambiente, le velocità stimate di rilascio dei radionuclidi dai

depositi contenenti parecchie migliaia di confezionamenti dopo 10<sup>5</sup> anni sono riportate nella tabella 1.3. La maggior parte dell'attività residua è dovuta agli isotopi del Pu la cui solubilità in acqua è sufficientemente bassa (circa 2.4 ppm) così da consentire, in caso accidentale, solo la perdita annuale di una piccola frazione (circa 2·10<sup>-6</sup>). Inoltre, il naturale fenomeno della diluizione dei radionuclidi rilasciati dai depositi nelle acque dell'ambiente sotterraneo dovrebbe ridurre l'impatto ambientale.

**Tabella 1.3 – Velocità stimate di lisciviazione di isotopi radioattivi e di elementi degli attinidi da depositi contenenti molte migliaia di contenitori di rifiuti ad alta attività (HLW) e di combustibile esaurito (SF) dopo 10<sup>5</sup> anni [\*].**

Nuclide	Solubilità (ppm)	Rateo di lisciviazione <sup>(1)</sup> (frazione/anno)		Attività rilasciata /anno	
		HLW	SU	HLW Ci/3000 fusti	SU Ci/7000 fusti
<sup>238</sup> U	485	1.4· 10 <sup>-4</sup>	3.1· 10 <sup>-7</sup>	129	948
<sup>242</sup> Pu	2.4	1.3· 10 <sup>-6</sup>	2.3· 10 <sup>-6</sup>	3940	29500
<sup>230</sup> Th <sup>(2)</sup>	0.024	1.3· 10 <sup>-5</sup>	1.68· 10 <sup>-7</sup>	196	1470
<sup>239</sup> Pu	2.4	1.3· 10 <sup>-6</sup>	2.3· 10 <sup>-6</sup>	61900	464000

<sup>(1)</sup>Flusso d'acqua limitato dalla diffusione nella bentonite

<sup>(2)</sup>da <sup>238</sup>U

[\*] Anonimo 1984 –Presente in numerosi rapporti internazionali e non confutata

Un deposito geologico di rifiuti radioattivi a lunga vita consiste in un sistema di barriere naturali e artificiali la cui funzione è isolare i rifiuti dall'ecosistema di superficie per centinaia di migliaia di anni.

Per raggiungere questo obiettivo, sono state ipotizzate diverse strategie di smaltimento, in base alla quantità e natura dei rifiuti, alla tipologia delle formazioni rocciose disponibili per ospitarli e delle problematiche specifiche di smaltimento associate sia al tipo di rifiuto che al sito selezionato (ad esempio, se i rifiuti producono una notevole quantità di calore, come quelli ad alta attività o ottenuti da combustibile esaurito, o se la formazione rocciosa è in zona satura o insatura).

Nella maggior parte dei concetti di smaltimento, il trasporto attraverso le acque sotterranee è il più probabile meccanismo naturale affinché i radionuclidi immobilizzati nei contenitori, ma destinati ad inevitabile degradazione, possano venire a contatto con la biosfera in un lontano futuro. Tuttavia, anche altri fenomeni, naturali e antropici, quali: sollevamento, erosione, vulcanismo, inondazioni e intrusione umana, potrebbero essere considerati nelle valutazioni della sicurezza del deposito.

In tutti i concetti di smaltimento in esame, le prestazioni del deposito sono basate sul concetto di barriere multiple, che comprendono sia i materiali naturali che artificiali (sicurezza passiva). Le

barriere naturali comprendono la roccia ospitante e le circostanti formazioni geologiche. Le barriere artificiali possono includere la matrice dei rifiuti, il contenitore dei rifiuti, il materiale tampone e quello di riempimento, i pozzi di discesa e condotti di comunicazione e le sigillature ingegneristiche apposte nelle aperture del sottosuolo. Queste barriere concorrono, tutte assieme, a limitare il contatto dei rifiuti con le acque sotterranee e il successivo trasporto di radionuclidi nella biosfera.

Lo smaltimento dei rifiuti radioattivi in depositi in profondità, situati in formazioni geologiche adeguate, è indagato in tutto il mondo come una soluzione finale sicura per il trattamento del combustibile nucleare esaurito e dei rifiuti a elevata attività e lunga vita.

La ricerca europea sullo smaltimento geologico in profondità è iniziata nei primi anni 1970. Da allora, sono stati sviluppati un gran numero di concetti di deposito e, parallelamente, sono stati realizzati adeguati strumenti di modellazione delle principali fenomenologie riguardanti il trasporto di radionuclidi per giudicare la sicurezza del deposito in strati geologici profondi.

La sicurezza del sistema di smaltimento si basa sul concetto di *barriera multipla* che in genere comprende il sistema ingegneristico (EBS) e la barriera geologica. L'EBS comprende: materiali ingegnerizzati che compongono la forma dei rifiuti solidi, il contenitore dei rifiuti, il riempimento del buffer dove sono disposti i contenitori, e tutti assieme sono definiti come il *campo vicino*. La formazione geologica ospitante che circonda il deposito che rappresenta il *campo remoto*. Le barriere non dovrebbero avere modi di guasto comune, così se una barriera dovesse fallire, restano le altre per assicurare il confinamento dei radionuclidi a lungo termine.

I meccanismi di trasporto dei radionuclidi sono dati dai flussi di avvezione, diffusione e dispersione, modificati da vari modi di ritardo dovuti essenzialmente ai fenomeni di assorbimento, precipitazione, scambio ionico. Tutti questi processi dipendono fortemente dalla chimica dell'ambiente e dalle interazioni tra l'EBS e il sistema di acque sotterranee. L'analisi delle proprietà di tali processi così complessi e sviluppati su un periodo molto lungo è affetta da notevoli incertezze. Le incertezze possono derivare da una mancanza di conoscenza dettagliata dei fenomeni o dalla mancanza di esperimenti mirati a valutare l'importanza di alcuni parametri rispetto ad altri, o all'incapacità di comprendere l'evoluzione a lungo termine dei parametri principali nello spazio e nel tempo. Le incertezze possono essere gestite in diversi modi attraverso la semplificazione dei modelli e assunzioni conservative che sono analizzate in modo deterministico e/o probabilistico.

Prima che il deposito sia costruito e gestito, deve essere sviluppata una metodologia sistematica di valutazione della sua sicurezza. Sulla base dell'identificazione e della valutazione di tutte le funzioni rilevanti, eventi e processi (FEP), la valutazione a lungo termine sulla sicurezza di un deposito geologico profondo è svolta rispetto a due scenari di riferimento, quello di *normale evoluzione* e uno *scenario alternativo*. Gli scenari sono poi convertiti in una serie di modelli concettuali che descrivono i possibili comportamenti del sistema e delle strutture e che costituiscono la base per la modellizzazione matematica costituita da un set di equazioni

algebriche, differenziali e integrali tra loro accoppiate e con adeguate condizioni iniziali e al contorno. Le simulazioni sono eseguite applicando diversi sub-modelli integrati (campo vicino, campo lontano e biosfera) in un programma di calcolo generale di *sistema* in modo l'*output* di un sub-modello costituisca l'*input* di quello successivo e, generalmente, i risultati sono presentati sotto forma di tassi di rilascio (Bq/anno) e/o dosi equivalenti (Sv/anno) in funzione del tempo.

## **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 1**

- [1] US NATIONAL ACADEMY OF SCIENCE, The Disposal of Radioactive Waste on Land, Report of the Committee on Waste Disposal of the Division of Earth Sciences, National Academy of Science, 519 (1957).
- [2] STEININGER, W., “Natural analogues for a repository in rock salt — the German approach”, Proc. 6th NAWG meeting, Santa Fe, 1994, Commission of the European Communities Rep. EUR 16761 EN (1996) 135–137.
- [3] VAN LUIK, Uranium in selected end orheic basins as partial analogues for spent fuel behavior in salt, In: Côme & Chapman (op. cit.) 187 (1987) 92–103.
- [4] MILLER, W., ALEXANDER, R., CHAPMAN, N., MC KINLEY, I., SMELLIE, J., Natural Analogue Studies in the Geological Disposal of Radioactive Wastes, Elsevier, Amsterdam (1994).
- [5] MANTEUFEL, R.D., BACA, R.G., Eds, Iterative Performance Assessment Phase 3:Status of Activities. Center for Nuclear Waste Research, CNWRA Rep. 95-007, San Antonio, TX (1995).

## 2. INIZIATIVE INTERNAZIONALI E STRATEGIE PER LO SMALTIMENTO DEFINITIVO DEI RIFIUTI

### RADIOATTIVI IN DEPOSITI GEOLOGICI

Il Consiglio Europeo ha promosso tra le attività di ricerca e di sviluppo nel settore nucleare l'istituzione di una Piattaforma Tecnologica Europea per lo smaltimento definitivo dei rifiuti radioattivi ad alta attività e a lunga vita media in formazioni geologiche profonde (IGD-TP) [1]. Il processo con cui in generale una Piattaforma Tecnologica Europea evolve, può essere sinteticamente rappresentato in tre fasi, dove le parti interessate (*stakeholders*):

- si riuniscono, guidate dall'industria, per concordare una visione comune, in un determinato settore, per conseguire un certo obiettivo e fissando una data orientativa di scadenza;
- definiscono una Strategic Research Agenda (SRA) che definisce gli ambiti di ricerca e sviluppo in cui si devono ancora conseguire importanti progressi scientifici e tecnologici per raggiungere l'obiettivo comune;
- mobilitano le risorse umane e finanziarie per arrivare al "*Deployment Plan*" ovvero all'attuazione dei programmi di ricerca e sviluppo individuati nella SRA.

#### 2.1 La piattaforma IGD-TP

Nello specifico caso della IGD-TP (Implementing Geological Disposal of Radioactive Waste technology Platform), nel definire la SRA sono stati individuati una serie di *KEY TOPICS*, ovvero dei temi prioritari che richiedono un ulteriore sviluppo per poter realizzare e rendere operativo in sicurezza *entro il 2025* il primo deposito in Europa per lo smaltimento geologico dei rifiuti radioattivi ad alta attività e a lunga vita media (IGD-TP Vision). All'interno di ciascun argomento chiave (*KEY TOPIC*) sono individuati ulteriori temi (*TOPICS*) ai quali, in base alla loro importanza per l'ottenimento della licenza per la realizzazione della IGD-TP Vision, sono assegnate una priorità ed un'urgenza più o meno alta [2].

La sistematica classificazione dei KeyTopics e dei Topics rispecchia le principali caratteristiche, i requisiti di sicurezza e le complessità tipiche dei sistemi di smaltimento geologico di rifiuti radioattivi. Le principali problematiche da considerare nella Strategic Research Agenda (SRA) per raggiungere l'obiettivo della IGD-TP Vision, riguardano principalmente:

- le caratteristiche del sito per la realizzazione della Piattaforma Tecnologica Europea per lo smaltimento definitivo dei rifiuti radioattivi ad alta attività e a lunga vita media;
- le varie forme di rifiuti;
- le tecniche di smaltimento.

Oltre ai *KEY TOPICS*, sono presenti anche le *CROSS-CUTTING ACTIVITIES* che non hanno a che fare con questioni tecnico/scientifiche riguardo lo smaltimento geologico, bensì con questioni sociali, amministrative e di gestione. Le *CROSS-CUTTING ACTIVITIES*, anche se non di fondamentale importanza per le questioni tecniche di sicurezza, sono necessarie per la realizzazione della *IGD-TP*

*Vision* in quanto importanti per ottenere una condivisa accettazione del criterio di smaltimento in deposito geologico profondo, le licenze, la costruzione e la gestione stessa dei depositi geologici.

## **2.2 La Strategic Research Agenda (SRA) in ambito IGD-TP**

Sono state attivate, a livello europeo, collaborazioni e forme di scambio scientifico/culturale e di cooperazione internazionale come ad esempio la formazione di gruppi dedicati di esperti di *Analisi di Sicurezza* delle varie organizzazioni nazionali di gestione dei rifiuti radioattivi all'interno dell'OECD/NEA, che s'incontrano regolarmente per tenersi aggiornati sui risultati, per prendere eventuali decisioni, per individuare priorità e progetti da finanziare e per avviare/controllare/valutare tutte le attività programmate e svolte. Una bozza di agenda, attualmente condivisa dagli stati e dalle organizzazioni membri, ha stabilito i seguenti argomenti chiave e la pianificazione dei relativi impegni temporali di studio.

### **2.2.1 KeyTopic 1: IL SAFETY CASE**

La procedura di *SAFETY CASE* ha il compito di dimostrare la sicurezza del deposito geologico, fornendo chiare motivazioni sull'affidabilità di un tale sistema di smaltimento, basate su solidi principi scientifici e tecnologici.

Il *SAFETY CASE* deve essere in grado di descrivere l'evoluzione del deposito, rappresentando ciò che credibilmente potrebbe accadere nel corso del tempo e per tutto il periodo sufficiente a ridurre il rischio di potenziale contaminazione della biosfera da parte dei radionuclidi confinati in profondità, a livelli accettabili, in un progetto a norma e condiviso. Una tale procedura, rappresenta la sintesi degli sforzi effettuati per ottenere l'approvazione di una domanda di licenza per la realizzazione di un impianto di smaltimento geologico di rifiuti nucleari.

Requisiti importanti che una *SAFETY CASE* deve avere sono:

- essere semplice da capire;
- essere conservativo, in modo da non sottostimare i rischi;
- essere coerente con le raccomandazioni sui criteri di sicurezza dei depositi di rifiuti radioattivi profondi, fatte dalle organizzazioni internazionali quali IAEA (International Atomic Energy Association) e OECD/NEA (Nuclear Energy Agency all'interno della OECD, Organisation for Economic Co-operation and Development) [3].

Gli obiettivi del *SAFETY CASE* sono:

- sviluppare e perfezionare i concetti e i modelli per migliorare la valutazione della sicurezza a lungo termine;
- migliorare il trattamento delle incertezze;
- migliorare ulteriormente il dialogo con le autorità;
- rafforzare la fiducia degli stakeholders e del pubblico.



Tra gli obiettivi del *SAFETY CASE* si affronta il tema della sicurezza a lungo termine del deposito, conseguita mediante l'utilizzo del concetto di multi-barriera, che utilizzi sia barriere naturali, che barriere artificiali. Le barriere cosiddette *naturali* sono rappresentate dall'ambiente geologico (GEOSFERA) preso in considerazione per ospitare in profondità la struttura ingegnerizzata del deposito. Le formazioni rocciose più opportune sono costituite da argille, rocce granitiche, cristalli di sale e formazioni tufacee) mentre le barriere artificiali sono quelle progettate dall'uomo utilizzando tecniche ingegneristiche pertinenti e opportuni materiali testati. In alcuni paesi aderenti al progetto della IGD-TP, il *SAFETY CASE* è strettamente legato alla Valutazione dell'Impatto Ambientale (VIA) e alle questioni di percezione sociale; per questo è fondamentale l'utilizzo di opportuni materiali sostenibili supportati dall'ambiente geologico. Il criterio di sicurezza che guida la progettazione e la ricerca della soluzione di deposito geologico profondo ottimale è che: la combinazione dell'azione di protezione passiva sia delle barriere naturali, che delle barriere ingegneristiche assicurino, con ragionevoli margini d'incertezza, di contenere i rifiuti radioattivi e di isolarli dalla biosfera per un tempo sufficiente a garantire che ogni eventuale ritorno dei radionuclidi nell'ambiente non provochi livelli di esposizione inaccettabili per l'uomo o per altre specie biologiche.

#### Priorità alta:

**Topic 1.1:** *Verifica, convalida e ulteriore perfezionamento degli strumenti di analisi (concetti, definizione degli scenari e dei codici informatici) utilizzati nelle valutazioni di sicurezza (2014-2020).*

**Topic 1.2:** *Migliorare la comunicazione del SAFETY CASE riguardo alla sicurezza operativa a breve termine, in fase transitoria e a lungo termine (2012-2025).* Dal momento che le vie normali attraverso cui vengono valutati e accettati (o corretti) i risultati scientifici e tecnici da parte della comunità di esperti sono lente, bisogna accelerare i processi di revisione, rendendo efficiente la comunicazione tra i partecipanti alla IGD-TP e la diffusione di informazioni sulle attività, mediante la creazione di nuovi canali e l'introduzione di nuove pratiche di revisione.

#### Priorità Media:

**Topic 1.3:** *Sviluppo dei principi fondamentali per effettuare l'analisi delle incertezze (2016-2020).* Si è rilevato, infatti, che, mentre esistono strumenti per l'analisi dei processi continui, sono ancora da sviluppare metodi avanzati per l'analisi di eventi episodici e per il trattamento delle incertezze nei dati e nei modelli.

#### **2.2.2.1 Il SAFETY CASE e gli aspetti radio protezionistici**

Un recente report della NEA sintetizza e confronta tra loro gli approcci normativi europei allo smaltimento geologico di rifiuti radioattivi, i criteri di radioprotezione e i rapporti con le

componenti sociali. Per quanto riguarda i criteri normativi, sono state trovate differenze rilevanti tra i vari paesi: *i vincoli di dose ad esempio variano in un intervallo compreso tra 0,1 mSv/anno e 0,3 mSv/anno e quelli del rischio sono stati fissati a  $10^{-5}$  o  $10^{-6}$  per anno, mentre la IAEA ha fissato i rispettivi limiti a 0,3mSv/anno e  $10^{-5}$ /anno.* Come indicazione generale, la NEA indica che quando si considerano gli approcci in differenti paesi, non basta soltanto considerare i diversi valori numerici limite, ma bisogna tener conto anche della filosofia e del consenso sociale, che determinano quali sono le conseguenze accettabili e quali no. Questo non vuol dire che in alcuni paesi bisogna utilizzare protezioni meno adeguate, ma piuttosto che bisogna tener conto dei diversi livelli di fiducia nella sicurezza che i vari paesi hanno maturato nel corso degli anni.

Anche se l'approccio normativo può essere diverso nei differenti Stati membri europei l'*"armonizzazione" dei criteri e dei concetti base* è di fondamentale importanza, per comprendere ad esempio quali sono gli obblighi che la generazione attuale ha nei confronti di quelle future. In altre parole, nonostante gli approcci normativi possano essere differenti, è necessario che tutti gli Stati membri abbiano delle *visioni e degli obiettivi comuni*, con lo scopo di rafforzare la fiducia tra gli "stakeholders". La necessità di un approccio armonizzato a livello internazionale è stata riconosciuta da diverse autorità di regolamentazione quali la "European Pilot Study" , a livello europeo e la "IAEA GEOSAF", a livello internazionale.

Il processo normativo per lo smaltimento geologico è in gran parte guidato da considerazioni di radioprotezione. I principi di radioprotezione hanno avuto una significativa evoluzione negli ultimi decenni, insieme a varie nozioni generali di etica come *l'equità intergenerazionale* (dovere delle generazioni presenti di garantire pari opportunità alle generazioni future, ovvero preservare la qualità del pianeta, in modo tale che questo non sia trasferito in condizioni peggiori di quelle in cui è stato ricevuto) e la *protezione ambientale*.

Molte delle guide e delle legislazioni di radioprotezione esistenti sono state redatte originariamente per medici e per laboratori esposti a discrete e controllate fonti di radiazioni; per questo motivo la tradizionale misura di base in radioprotezione è la *dose*, il cui calcolo richiede specifiche conoscenze o assunzioni sui possibili scenari di esposizione. La radioprotezione è stata molto lenta nell'accettare che gli esseri umani vivono in maniera piuttosto differente nelle diverse parti del mondo e che quindi, a parità di concentrazioni ambientali, potrebbero essere soggetti a diversi scenari di esposizione. È importante sottolineare che nessuna legislazione nazionale o internazionale fornisce guide sulle concentrazioni ambientali ammissibili per radionuclidi diversi dall'uranio e dal radon. Fare previsioni o assunzioni circa gli stili di vita oltre qualche centinaio di anni diventa piuttosto speculativo e senza senso su una scala di millenni. *Alla luce di ciò, nei soggetti interessati alla gestione dello smaltimento di rifiuti radioattivi si va affermando il fatto che i criteri numerici dovrebbero essere utilizzati solo come riferimento o come indicatore, piuttosto che come limiti assoluti in senso legale, tenendo conto anche che l'obiettivo della radioprotezione non è l'assoluta prevenzione del danno bensì la riduzione del suo potenziale a livelli accettabili.*

### 2.2.2.2 Gli obiettivi del SAFETY CASE

Il SAFETY CASE può essere generalmente definito come una *presentazione strutturata* dell'evidenza, delle analisi e delle linee di ragionamento, relativa alla sicurezza radiologica a lungo termine di un deposito di rifiuti radioattivi.

Le attività di ricerca e sviluppo a supporto dei SAFETYCASES sono in corso da più di 30 anni ed hanno raggiunto un elevato grado di maturità. Queste attività sono state finanziate in gran parte dai programmi nazionali, ma una considerevole quantità di risorse è stata investita anche dalla Commissione Europea. La sfida chiave nello sviluppo del SAFETY CASE per un deposito geologico profondo è quella di dimostrare la sua *sicurezza a lungo termine*.

I lavori di ricerca che continuano a essere svolti, sono guidati da sei principali fattori:

- lavori e studi per colmare le lacune della conoscenza individuate nelle passate attività;
- conferma che le attività di ricerca svolte in precedenza sono ancora valide, nonostante le nuove intuizioni provenienti da altre aree;
- modifiche nel concetto di gestione dei rifiuti radioattivi con l'introduzione di requisiti per ottenere la reversibilità/recuperabilità e la sicurezza a lungo termine;
- studio dei problemi di sicurezza, come ad esempio la corretta individuazione dei termini sorgenti di radionuclidi;
- ricercare l'obiettivo di incrementare ulteriormente i già identificati margini di sicurezza.

Lo scopo delle organizzazioni Internazionali, come l'OECD-NEA e la IAEA, è mettere a disposizione un banco di prova per i programmi nazionali e organizzare un lavoro strettamente collaborativo, in modo da distribuire gli sforzi e utilizzare efficientemente le risorse. In particolare, la IAEA sta lavorando sul concetto di *armonizzazione* delle norme, per aumentare l'accettazione pubblica e rafforzare la fiducia degli stakeholders.

Per istituire e condurre un adeguato SAFETY CASE è necessario:

- sviluppare di un modello concettuale del sito;
- raccogliere dei dati del sito e di processo per supportare il modello;
- fare previsioni riguardo allo sviluppo del sito, utilizzando i dati e i modelli precedenti;
- considerare e quantificare le incertezze concettuali e sui dati;
- fornire prove sulla sicurezza del deposito mediante motivazioni tecnico-scientifiche;
- garantire la fiducia tra gli "stakeholders".

Poiché è uno strumento che serve a dimostrare che il deposito funzionerà secondo i requisiti prescritti ed è la base per ottenere la licenza di costruzione. il SAFETY CASE deve dimostrare essenzialmente che:

- sono state prese in considerazione tutte le possibili caratteristiche, i possibili eventi e i possibili processi (Feature, Events and Process - FEPs) che potrebbero essere di rilevanza nel periodo prescritto;

- sono stati raggiunti adeguati livelli di sicurezza.

Le informazioni quantificabili saranno integrate da motivazioni scientifiche e pareri di esperti, fornendo così prove attendibili sulla sicurezza del deposito. La NEA, insieme alla EC (Comunità Europea) e alla IAEA, ha organizzato nel Gennaio 2007 un simposio internazionale, che si è rivelato un esercizio di valutazione sullo sviluppo dei *SAFETY CASES*. Si è notato, in particolare, che le evoluzioni chiave degli ultimi decenni includono i seguenti aspetti:

- documentazione migliorata e strutturata che permette di fornire argomentazioni chiare;
- sviluppo di molti strumenti analitici sofisticati e databases;
- introduzione di nuovi strumenti concettuali, come il concetto di “*safety function*”, che racchiude gli aspetti chiave delle prestazioni di un sistema di smaltimento geologico e da cui possono essere sviluppati i requisiti interni, che riguardano la capacità del sistema di svolgere le funzioni, rendendo così più trasparente il ruolo dei vari componenti presenti nel deposito;
- utilizzo di altri indicatori di sicurezza e performance, oltre alla tradizionale dose radiologica e agli indicatori di rischio.

I sistemi naturali solitamente sono complessi e “*caotici*”, per cui è estremamente difficile effettuare previsioni in termini quantitativi su un’estesa scala temporale. Al fine di cogliere i possibili risultati, per lo sviluppo dei *SAFETY CASES* si utilizzano due approcci:

- 1) la gamma delle possibili evoluzioni del sistema realtà è rappresentata dalla variazione dei parametri nei modelli numerici e dal campionamento statistico dei risultati (*approccio probabilistico per la valutazione delle prestazioni*);
- 2) sviluppo di ragionamenti logici e limitazione dei parametri di performance del sistema.

La scelta dell’approccio da utilizzare dalle rispettive organizzazioni di gestione dei rifiuti dipende dai requisiti normativi, che come già visto possono variare da paese a paese. Vari report della NEA hanno fornito cautele molto forti riguardo al fatto che i risultati di differenti *SAFETY CASES* non possono essere confrontati direttamente, poiché istituiti utilizzando diversi criteri, siti, scenari, misure e assunzioni.

Tuttavia, può essere importante nel contesto Europeo sviluppare uno schema di traduzione per i risultati provenienti da diversi *SAFETY CASES*, al fine di poter effettuare dei confronti e valutare quindi quale risultasse più idoneo per la dimostrazione di sicurezza del deposito.

Lo sviluppo di un *SAFETY CASE* è una procedura iterativa e ricorsiva che ha lo scopo di ottimizzare la sicurezza globale del deposito, tenendo conto della situazione naturale, delle caratteristiche ingegneristiche e dei requisiti normativi applicabili. Esistono vari percorsi e diverse combinazioni di funzioni che possono portare allo stesso livello di sicurezza globale, oppure, utilizzando ad esempio la “dose” come indicatore, le differenti tipologie di deposito nelle varie formazioni rocciose possono raggiungere livelli di sicurezza diversi. Tuttavia comunque, tutti i concetti di

smaltimento attualmente in fase di studio sono in grado di raggiungere livelli di dose d'esposizione al di sotto dei requisiti normativi.

Come già visto, i tradizionali indicatori di sicurezza e di performance utilizzati in radioprotezione sono la "dose" e il "rischio". Il problema della "dose" è che essa dipende fortemente dallo scenario d'esposizione, dai comportamenti e dalle caratteristiche biologiche delle differenti specie. Tutto ciò porta al *compimento di un gran numero d'assunzioni*, che di conseguenza rendono le misure e i rilevamenti affetti da *elevati gradi d'incertezza*. E' facile quindi comprendere che, valutazioni di sicurezza basate soltanto sul calcolo della "dose" o del "rischio" non sono molto solide e non possono considerarsi di supporto per il *SAFETY CASE*.

### **2.2.2.3 La rilevanza dei problemi nel SAFETY CASE**

E' molto importante dimostrare che nei *SAFETY CASES* siano state prese in considerazione tutte le caratteristiche, eventi e processi possibili (FEPs, Feature, Events and Process) che potrebbero avere un'importanza rilevante per il periodo prescritto, ad esempio  $10^5$  anni. La base per far ciò è avere a disposizione un catalogo di FEPs, per questo l'Agenzia per l'Energia Nucleare (NEA) ne ha sviluppato e aggiornato uno recentemente. Questo catalogo può essere applicato a tutti i tipi di formazioni rocciose selezionate per ospitare il deposito ed è un punto di riferimento per i test volti a definire il grado di completezza e pertinenza dei *SAFETY CASES*.

Per ragioni pratiche, i modelli numerici da utilizzare nelle valutazioni di sicurezza probabilistiche devono essere basati su modelli meccanicistici piuttosto semplici. Un esempio è il caso dello studio dei processi di "*sorption*" relativi alla migrazione dei radionuclidi, attraverso il solo coefficiente  $K_d$ . Quando si effettuano delle ipotesi semplificative per lo studio dei fenomeni, è necessario valutare e tener conto di come queste possano influenzare i risultati dei calcoli per le valutazioni delle prestazioni.

Riguardo alle previsioni da fare sul comportamento del deposito nella fase *post-closure* dopo la sua sigillatura e chiusura, è importante definire il periodo cui riferire i modelli per fare previsioni e quale fiducia associare a tali previsioni di così lunga durata come nel caso dello smaltimento dei rifiuti radioattivi nei depositi geologici profondi.

Nonostante le previsioni sul futuro del deposito siano effettuate sulla base di ricerche scientifiche e studi di probabilità, stabilire il periodo su cui effettuare previsioni è in gran parte un problema etico. Ad esempio, si può scegliere come intervallo il periodo che i rifiuti ad alta attività impiegano per raggiungere livelli di radioattività dell'ordine di grandezza di quella naturale, ovvero circa  $10^5$  anni.

Il progetto di un deposito va avanti soltanto quando tutti gli stakeholders, gli scienziati, gli ingegneri, gli amministratori locali e il pubblico sono sufficientemente fiduciosi sul fatto che il deposito possa comportarsi in ogni fase come da progetto. In pratica, la conquista della fiducia dipende da molti elementi, come ad esempio: la qualità di gestione, le attività d'interazione tra gli

stakeholders, il trattamento delle incertezze, l'utilizzo di analoghi naturali, i test dimostrativi in impianti di ricerca sotterranea (URL), il monitoraggio e le ricerche multidisciplinari.

A ogni *SAFETY CASE* è associata una certa gamma d'incertezze, di cui alcune sono riducibili, ad esempio l'entità e la distribuzione della permeabilità della matrice rocciosa, mentre altre non lo sono, ad esempio l'evoluzione futura del clima. Data la presenza d'incertezze, sono quindi richiesti metodi quantitativi per descrivere la variabilità dei sistemi e per stabilire il grado di fiducia necessario a definire un *SAFETY CASE* attendibile e rappresentativo.

#### **2.2.2.4 Fenomeni di scala, importanza dei test in impianti di ricerca sotterranei**

Molti processi caratterizzanti i sistemi di smaltimento geologico dipendono dalla scala, nel senso che possono essere più o meno dominanti a scale differenti. Un esempio può essere lo studio del *processo di trasporto dei radionuclidi*, che in un piccolo campione di roccia è governato dalla *porosità*, mentre in scala reale, nello stesso materiale, può essere governato dalla migrazione *attraverso le fratture*. Detto ciò, è comprensibile che molte questioni pratiche riguardo al progetto, alla costruzione e alla fase operativa del deposito non possono essere risolte soltanto sulla base di studi teorici bensì sono necessarie anche esperienze pratiche. Per questa ragione, diversi Stati membri e del mondo hanno investito delle risorse economiche per la costruzione d'impianti di ricerca sotterranei (Underground Research Laboratory, URL), oppure hanno convertito delle miniere già esistenti per tale scopo.

Le ricerche e gli studi compiuti nei laboratori di ricerca sotterranei consentono principalmente di:

- confermare i concetti e i dati che sono stati sviluppati su piccoli campioni;
- scoprire eventuali fenomeni che si manifestano soltanto su larga scala.

#### **2.2.2 KeyTopic 2: Forme di rifiuti e loro comportamento**

In questo argomento chiave è studiato il comportamento dei vari rifiuti radioattivi nei depositi geologici. I tipi di rifiuti considerati sono: ossido di uranio esaurito ( $UO_2$ ), combustibile a ossidi misti esaurito (MOX), rifiuti vetrificati ad alta attività e rifiuti a media attività e lunga vita. I vari tipi di rifiuti rappresentano la potenziale fonte di rilascio dei radionuclidi a seguito della rottura, del danneggiamento o del degrado dei contenitori. L'obiettivo del lavoro è di comprendere i processi rilevanti per la sicurezza. A tale scopo è importante definire un inventario dei vari radionuclidi e i loro tempi di rilascio mediante modelli matematici, al fine di valutarne la migrazione da un deposito nel vicino e nel lontano campo fino al rilascio nella biosfera.

I benefici di tale lavoro saranno di contribuire a rendere migliore la qualità dei modelli utilizzati nelle valutazioni di sicurezza (PA, Performance Assessments) e di definire in modo più adeguato le incertezze associate ai vari processi di controllo e di previsione del potenziale trasporto dei radionuclidi in biosfera. Tutto ciò permette di guidare e supportare lo sviluppo del *SAFETY CASE*.

Il lavoro di studio e di ricerca sta procedendo in una serie di laboratori Europei con il coinvolgimento delle organizzazioni di gestione dei rifiuti e degli enti di ricerca. Ogni 18 mesi ha

luogo un seminario informale, sullo smaltimento del combustibile nucleare esaurito, che riunisce i massimi esperti mondiali in tema.

Per migliorare la conoscenza riguardo ai rifiuti, dovrà essere presente la cooperazione e la partecipazione di:

- *organizzazioni di gestione dei rifiuti*, il cui ruolo è individuare le lacune e specificare le aree in cui va incentrata la ricerca;
- *i produttori di rifiuti*, che conoscono la storia del combustibile e degli altri rifiuti;
- *le autorità di sicurezza Nazionali e Internazionali*, che possono fornire il loro supporto tecnico migliorando la qualità delle informazioni;
- *gli Istituti di Ricerca* il cui ruolo è comprendere meglio le caratteristiche e i comportamenti dei rifiuti.

#### Priorità alta:

**Topic 2.1:** *Miglioramento dei dati riguardanti la frazione a rapido rilascio per il combustibile esaurito di ossido di uranio e miglioramento della comprensione del comportamento della sua dissoluzione(2017-2019).* Poiché miglioramenti significativi nella comprensione del comportamento del combustibile esaurito in condizioni di deposito hanno avuto luogo negli ultimi 10-15 anni, è chiaro che con il graduale aumento del *burn-up* e della resa del combustibile nel corso degli anni, bisognerà effettuare degli studi e degli aggiornamenti del database, aggiungendo i risultati sperimentali ottenuti. Per quanto riguarda il combustibile esaurito. La maggior parte dei dati pubblicati sulle frazioni a rapido rilascio dei vari radionuclidi a lunga vita e sulla dissoluzione della matrice di condizionamento si riferisce a combustibile con valori di *burn-up* inferiori a 45GWd/tU mentre nel corso dei prossimi 5-10 anni, per molti reattori, la media di *burn-up* sarà chiaramente superiore a questo valore, raggiungendo valori medi di 60 GWd/tU.

**Topic 2.2:** *Miglioramento dei dati e della comprensione del rilascio di radionuclidi e di specie chimiche da vari rifiuti a media attività e lunga vita (ILW-LL)(2012-2015).*

#### Priorità media:

**Topic 2.3:** *Miglioramento dei dati e della comprensione riguardo al comportamento del combustibile esaurito MOX (Mixed Oxide Fuel) (2022-2025).* Deve essere particolarmente approfondito lo studio del comportamento in condizioni di confinamento in deposito, per determinare come la struttura del combustibile può influenzare la dissoluzione. I quantitativi di tale combustibile sono piccoli e data l'elevata generazione di calore, è probabile che lo smaltimento possa essere rinviato per consentirne il preventivo raffreddamento.

**Topic 2.4:** *Ulteriore sviluppo della “Burn-up credit methodology” e applicazione per combustibili ad elevato burn-up (2017-2019).* Una serie di studi ha mostrato che con l’applicazione di questa metodologia, i contenitori del combustibile esaurito (con moderato *burn-up*) rimarrebbero sub-critici all’interno del deposito. L’obiettivo è quindi estendere gli studi a combustibili con un arricchimento in <sup>235</sup>U maggiore e che presentano un tasso d’irraggiamento più elevato.

Priorità bassa:

**Topic 2.5:** *Ulteriore miglioramento dei dati e delle prestazioni dei rifiuti vetrificati ad alta attività (2012-2015).*

### 2.2.3 KeyTopic 3: Fattibilità tecnica dei componenti

Questo argomento chiave, affronta tutte le principali attività necessarie per dimostrare l’affidabilità della tecnologia utilizzata per la costruzione di un deposito e dei suoi componenti. E’ molto importante, in particolare, riuscire a dimostrare la fattibilità di una *sicura* fase operativa e confermare che le specifiche funzioni di sicurezza saranno fornite, per tutto il tempo richiesto, dopo la chiusura del deposito. Si pone quindi l’attenzione sulla realizzazione di opere superficiali o sotterranee, sulle tecnologie di costruzione per il contenimento dei rifiuti, sui materiali di riempimento impermeabilizzanti (backfill) e sui materiali sigillanti, affrontando anche lo studio del comportamento a lungo termine dei componenti del deposito.

L’obiettivo principale è dimostrare (al livello richiesto dalle norme nazionali di licenza) che i requisiti tecnici per il progetto di un deposito geologico entro il 2025, basati sul concetto di Sicurezza Operativa, possono essere soddisfatti da tecnologie costruttive e procedure di lavoro già disponibili, sia nella fase operativa transitoria, sia nella fase in cui è richiesta la sicurezza a lungo termine, ovvero dopo la chiusura e la sigillatura del deposito. Generalmente, in quest’ultima fase è richiesto il contenimento dei rifiuti radioattivi per un lungo periodo e l’isolamento dalle acque sotterranee (***l’acqua è il vettore più temuto per il trasporto della radioattività nella biosfera***).

Un altro obiettivo è di dimostrare, in accordo con quanto espresso nel primo obiettivo, che il sistema è in grado di fornire tutte le funzioni di sicurezza necessarie per soddisfare i criteri di sicurezza a lungo termine. A tal proposito, vi è la necessità di comprendere in modo adeguato, tutte le prestazioni e le possibili evoluzioni dei componenti e dei materiali in opera. In generale, vi sono requisiti di progettazione stabiliti, che devono essere soddisfatti al momento della messa in opera del deposito.

Gli studi e le attività di ricerca dovrebbero contribuire a:



- ✓ quantificare meglio le prestazioni a lungo termine dei processi rilevanti che potrebbero modificare le proprietà delle strutture di contenimento dei rifiuti, dei tamponamenti, delle sigillature e in generale dei componenti del deposito;
- ✓ confermare che saranno soddisfatti i requisiti per ottenere la licenza di costruzione del deposito.

In particolare, i componenti oggetto delle ricerche sono:

- *Combustibile esaurito e contenitori di smaltimento per rifiuti ad alta attività*: la scelta della struttura di contenimento per i rifiuti radioattivi dipende dalle condizioni di smaltimento, dalla durata di vita richiesta per il contenitore e dalle esigenze di gestione operativa. I contenitori per rifiuti ad alta attività (*HLW\_High Level Waste*), al fine di garantire un completo contenimento per la durata di tempo desiderata (da centinaia a diverse centinaia di migliaia di anni, secondo i requisiti del sistema di smaltimento), devono presentare adeguate caratteristiche chimiche e meccaniche, devono essere sufficientemente resistenti alla corrosione e devono avere una sufficiente resistenza strutturale sia per sostenere i carichi a lungo termine, che per supportare senza danneggiamenti le sollecitazioni indotte durante le operazioni di incapsulamento e di deposito.
- *Materiali tamponi di riempimento con funzione impermeabilizzante*: la scelta dei materiali impermeabilizzanti e di riempimento è in parte dipendente dal sistema di smaltimento prescelto. Essi hanno particolari funzioni di sicurezza in molti concetti di smaltimento per cui devono soddisfare i requisiti e le specifiche esistenti per questa classe di materiali; ad esempio devono essere soddisfatti dei requisiti che garantiscano la loro funzione di sicurezza a lungo termine. Nel caso in cui si consideri un sistema di smaltimento in formazione rocciosa, un materiale spesso utilizzato, interposto tra i contenitori dei rifiuti radioattivi e le rocce circostanti è la bentonite, la quale durante il trascorrere dei secoli, viene saturata dall'eventuale acqua sotterranea e reagisce gonfiandosi, diventando così una barriera impermeabile. I processi che avvengono durante l'evoluzione del deposito sono simili per molti materiali e per molte condizioni operative (compattazione, diagenesi, cambiamenti delle caratteristiche idrauliche ecc.), il che rende significativo eseguire confronti, anche se l'impatto sulle prestazioni del sistema di smaltimento può essere significativamente diverso.
- *Tamponamento e sigillatura*: le aperture del deposito (gallerie, celle, pozzi, rampe di accesso) devono essere riempite e sigillate durante le operazioni e durante la fase di chiusura. Secondo il concetto di smaltimento preso in esame, il tamponamento e la sigillatura potrebbero avere una funzione di sicurezza oppure no. Nel caso in cui abbiano una funzione di sicurezza, il tamponamento e la sigillatura devono essere progettati e realizzati per creare un disaccoppiamento meccanico e idraulico tra il deposito e l'ambiente esterno, evitando eventuali vie di flusso preferenziali per la risalita in superficie dei radionuclidi confinati in profondità. La progettazione e la costruzione sono effettuate con lo scopo di garantire la

sicurezza del deposito e la compatibilità dei materiali utilizzati con l'ambiente geologico e con le altre barriere ingegneristiche. Come per tutti gli altri componenti, anche per i tamponamenti ed i sigilli è necessario:confermarne l'affidabilità e la fattibilità testando la progettazione e la costruzione alla profondità del deposito, in impianti di ricerca sotterranei URL (Underground Research Laboratory) e implementare modelli matematici per lo studio delle prestazioni a lungo termine.

#### Priorità alta:

**Topic 3.1:** *Dimostrazione della piena operatività dei contenitori per lo smaltimento dei rifiuti ad alta attività (HLW)(2014-2020).* Gli studi e le ricerche riguardanti lo sviluppo e la progettazione di contenitori di acciaio al carbonio e rame, per lo smaltimento dei rifiuti ad alta attività (HLW), stanno procedendo velocemente, per soddisfare in breve tempo i criteri per l'ottenimento della licenza per la realizzazione di depositi di smaltimento in formazioni argillose e granitiche. Riguardo invece ai contenitori destinati all'utilizzo in formazioni geologiche di salgemma, sono stati realizzati dei prototipi utilizzati solo in alcuni esperimenti. Gli studi sui progetti dei contenitori, stanno procedendo in molti paesi d'Europa e concentrano la loro attenzione specie su quelli di acciaio e rame.

**Topic 3.2:** *Dimostrazione delle operazioni di approvvigionamento e messa in opera su scala industriale dei materiali di riempimento con funzione impermeabilizzante(2016-2020).*

**Topic 3.3:** *Costruzione di URL e impianti di ricerca sotterranea. Un esempio è l'impianto sotterraneo di ricerca "Onkalo" in Finlandia(2012-2018).*

**Topic 3.4:** *Sviluppo di principi di progettazione del deposito, compresi studi di sicurezza operativa e di reversibilità/reperibilità (2015-2020).*

**Topic 3.5:** *Dimostrazioni pilota delle operazioni di deposito (2012-2016).*

**Topic 3.6:** *Dimostrazione in scala reale, in URL, delle tecnologie di tamponamento e di sigillatura del deposito(2012-2018).* Questa attività dovrà essere estesa sia alle formazioni argillose che alle rocce cristalline, in modo che tutti gli obiettivi stabiliti sulle prestazioni, siano rispettati e siano conformi con la strategia del concetto di smaltimento.

#### Priorità bassa:

**Topic 3.7:** *Compilazione della conoscenza su test non distruttivi e relativi requisiti sui componenti del deposito(2012-2017).*

**Topic 3.8:** *Preservazione della conoscenza riguardo la reperibilità (2017-2022).*

## 2.2.4 KeyTopic 4: Prestazioni a lungo termine dei componenti

### Priorità alta:

**Topic 4.1:** *Migliorare la comprensione dell'impatto derivato dall'evoluzione idrogeologica (2012-2016).* Attraverso specifici studi di laboratorio e la realizzazione di opportuni modelli, occorre completare la comprensione dell'impatto generato dall'evoluzione idrogeologica a lungo termine sulle prestazioni dei materiali di riempimento impermeabilizzanti, tra i quali la bentonite.

**Topic 4.2:** *Descrizione dei sistemi di tamponamento e sigillatura (2012-2016).* Occorre sviluppare adeguate modellazioni del loro comportamento a lungo termine, con rispettiva valutazione delle conseguenze sulla sicurezza.

### Priorità media:

**Topic 4.3:** *L'evoluzione tecnologica delle sigillature a base di cemento (2015-2021).*

**Topic 4.4:** *Studio dell'interazione tra le sigillature a base di cemento, i materiali da costruzione e i materiali di riempimento (backfill) a base di argilla (2016-2021).*

**Topic 4.5:** *Ottimizzazione dei calcestruzzi a basso pH per non aumentare la permeabilità dell'argilla a contatto con esso (2016-2020).*

**Topic 4.6:** *Comprensione del comportamento a lungo termine (interazione con le rocce circostanti e influenza dei fluidi) e delle proprietà (permeabilità, porosità) degli aggregati di sale, utilizzati come materiale di riempimento impermeabilizzante (backfill) tra i contenitori dei rifiuti e le rocce circostanti (2013-2019).*

**Topic 4.7:** *Studiare l'interazione tra i contenitori e la bentonite (2016-2022).*

### Priorità bassa:

**Topic 4.8:** *Condivisione della conoscenza sul comportamento dei materiali dei contenitori (2012-2022).*

**Topic 4.9:** *Studio degli effetti termici sulle prestazioni dei materiali (2014-2024).* Nelle applicazioni in cui la bentonite viene sistemata direttamente intorno ai contenitori dei rifiuti (che a causa del decadimento radioattivo sprigionano calore), occorre migliorare la conoscenza degli effetti termici sulle prestazioni del materiale per temperature oltre a quelle per cui il comportamento del materiale si può considerare noto ( $>100$  °C).

### 2.2.5 Key Topic 5: La strategia di sviluppo del deposito

Il futuro sviluppo della tecnologia dei reattori, del ciclo del combustibile (*burn-up* più elevati, introduzione di nuovi reattori e combustibili ecc.) e della gestione dei rifiuti, aumenterà inevitabilmente la necessità di cambiamenti nei progetti per la realizzazione di depositi di smaltimento geologico. La tendenza futura è quindi quella di realizzare *progetti flessibili*, strategia che porta spesso però ad avere costi di realizzazione maggiori. A tal proposito, quello che si cerca di fare, è trovare un compromesso di ottimizzazione tra i benefici derivanti dall'aumentata flessibilità e i costi di realizzazione maggiori. L'ottimizzazione dovrebbe poter garantire il miglioramento delle condizioni di lavoro (per rendere più semplice la realizzazione e la messa in opera), il miglioramento della qualità e della sicurezza (a breve e lungo termine) e allo stesso tempo la riduzione dei costi. Per realizzare un progetto flessibile e quindi rendere possibile il compromesso di ottimizzazione, è necessario che il progetto presenti delle capacità di "adattamento" alle nuove tecnologie, ai nuovi sviluppi e ai nuovi progressi scientifici.

Altri importanti argomenti di studio e di ricerca trattati nel *KEY TOPIC* sono quelli riguardanti i concetti di "**recuperabilità**" e "**reversibilità**" dove *con il primo termine si intende la possibilità di poter recuperare i rifiuti radioattivi dopo la chiusura e la sigillatura del deposito mentre con il secondo termine la possibilità di realizzare progetti testabili che possano permettere di ripercorrere ogni fase della realizzazione del deposito così da poterlo modificare e prendere decisioni diverse.*

#### Priorità media:

**Topic 5.1:** *Sviluppare strategie ed approcci per ottenere l'ottimizzazione e l'adattamento del progetto(2012-2016)* .Occorre sviluppare delle linee guida riguardanti la valutazione delle conseguenze di alcuni cambiamenti che si verificano nel sistema di smaltimento geologico, includendo quelli dovuti ai concetti di reversibilità e recuperabilità. In particolare le attività dovranno perseguire gli obiettivi di identificare le differenti tipologie di evoluzioni, dare un'indicazione delle modifiche delle condizioni al contorno per ogni tipo di evoluzione, descrivere l'adattamento del progetto riguardo a tali evoluzioni, e valutare preliminarmente le conseguenze che gli adattamenti possono avere sulla sicurezza del deposito geologico. E' importante che le strategie che tengono conto dell'evoluzione del deposito siano anticipate e chiaramente riconosciute dalla licenza iniziale e quindi dal *SAFETY CASE*.

### 2.2.6 KeyTopic 6: La sicurezza operativa

L'obiettivo del lavoro sulla sicurezza operativa è quello di raggiungere una certa conoscenza degli approcci metodologici, delle strategie, delle procedure e dei valori di riferimento, per la costruzione di un deposito geologico sicuro.

È intuitivo che le questioni pratiche di sicurezza industriale debbano essere affrontate nella fase di costruzione, mentre le questioni di sicurezza riguardanti la radioprotezione, nella successiva fase, ovvero quella operativa. Poiché nel corso del tempo potrebbero essere presi in considerazione degli adattamenti, è necessario valutare come questi potrebbero incidere sulla progettazione del deposito in termini di sicurezza a lungo termine.

A tal proposito, bisogna ricordare che nella complessa progettazione degli impianti di smaltimento geologico, è necessario trovare opportune sinergie tra i seguenti campi:

- ✓ pratica dell'ingegneria nucleare e della radioprotezione;
- ✓ aspetti classici di sicurezza industriale;
- ✓ ingegneria geotecnica e geologia, per la realizzazione dei lavori sotterranei e per lo studio delle caratteristiche geologiche del sito scelto per la costruzione dell'impianto.

#### Priorità alta:

**Topic 6.1:** *Migliorare la metodologia e la documentazione sulla sicurezza operativa(2015-2018).* Il lavoro, basato su studi condotti negli ultimi decenni, incentrati particolarmente sulle questioni di sicurezza a lungo termine, dovrebbe includere:

- miglioramento delle metodologie per la **valutazione del rischio**;
- miglioramento dell'approccio utilizzato per la **gestione del rischio**, durante la fase di costruzione e durante la fase operativa;
- ulteriore sviluppo della documentazione da utilizzare per la dichiarazione di sicurezza della fase di costruzione e della fase operativa.

Una prima serie di guide linea saranno istituite orientativamente nei prossimi 5 anni, mentre gli aspetti tecnici principali da prendere in esame, da sviluppare e da dimostrare sono:

- la realizzazione di un supporto di cemento per lo smaltimento dei rifiuti in formazioni di argilla. Bisogna valutare il comportamento a lungo termine del calcestruzzo e soprattutto le conseguenze di tale comportamento sulla sicurezza a lungo termine.
- progettare ed effettuare la modellazione di efficienti impiantidi ventilazione del deposito geologico, con relativa dimostrazione della strategia utilizzata.

#### Priorità media

**Topic 6.2:** *Sviluppo di strategie e valutazione dell'impatto, riguardanti la sicurezza a lungo termine, la progettazione, la complessità ed il costo dei depositi geologici, per specifiche questioni operative(2020-2022).* Ad esempio, le strategie per valutare i problemi operativi, quali i piani

d'emergenza e l'impatto dei radionuclidi gassosi sui lavoratori e sull'ambiente, durante la fase operativa.

### **2.2.7 Key Topic 7: Il monitoraggio**

Il tema del monitoraggio riguarda tutti quegli aspetti strategici, metodologici e tecnici relativi alle osservazioni e alle misure continue o periodiche di parametri ambientali, ingegneristici o radiologici per la valutazione del comportamento dei componenti di un deposito di smaltimento dei rifiuti o dell'impatto che esso ha sulla popolazione e sull'ambiente fino alla fine del controllo istituzionale, e che comporta lo sviluppo di:

- ✓ strategie di monitoraggio, incluse tecniche per l'implementazione di un sistema di smaltimento, per la caratterizzazione del sito e per la costruzione dell'impianto;
- ✓ strategie di monitoraggio da utilizzare durante le fasi che portano alla chiusura di un impianto di smaltimento e nella fase post-chiusura.

La scelta del sito per la costruzione di un impianto di smaltimento geologico necessita di dati, i quali provengono in parte da osservazioni e misure (continue o periodiche), quindi da processi di monitoraggio. Più in generale quindi, i risultati del monitoraggio devono essere utilizzati per rafforzare i SAFETY CASES e le informazioni necessarie al SAFETY CASE devono essere utilizzate per migliorare continuamente i programmi di monitoraggio. Il monitoraggio dovrebbe essere eseguito durante ogni fase dello sviluppo e del funzionamento dell'impianto di smaltimento geologico, con lo scopo di fornire informazioni per le valutazioni di sicurezza e per garantire la sicurezza di funzionamento in ogni fase.

#### Priorità alta:

**Topic 7.1:** *Miglioramento delle strategie di monitoraggio e dei programmi per la conferma del corretto funzionamento del deposito(2012-2014).* E' riconosciuto che molti paesi hanno incluso l'esigenza di monitoraggio nel loro quadro normativo e di orientamento, in quanto una domanda per ottenere la licenza di costruzione e di messa in opera di un deposito non è accettata se non include un programma di monitoraggio.

**Topic 7.2:** *Disponibilità di nuove tecnologie e tecniche di monitoraggio (2012-2014).* Fattore ormai riconosciuto come decisivo nella gestione e nella realizzazione di un impianto di smaltimento geologico.

**Topic 7.3:** *Monitoraggio e conseguente valutazione dello stato ambientale di riferimento (fase pre-operativa del deposito)(2012-2014).* L'obiettivo è sviluppare delle linee guida che definiscano esaustivamente lo stato di riferimento, identificando i parametri rilevanti e discriminanti della fase pre-operativa, per sostenere lo sviluppo dei futuri programmi di monitoraggio che verranno

utilizzati nelle fasi di post-costruzione. Ad esempio, si potrebbe creare un database in cui si stabiliscono, attraverso il monitoraggio, le condizioni di riferimento iniziali relative all'ambiente scelto come sito di costruzione del deposito e che potrebbero essere utili ai responsabili delle decisioni future.

#### Priorità media:

**Topic 7.4:** *Sviluppo di adeguate tecniche di monitoraggio e di sensori, per monitorare le barriere ingegneristiche durante le operazioni (2016-2019).*

**Topic 7.5:** *Sviluppo di tecniche appropriate per il monitoraggio nella fase di post-chiusura (2020-2025).* Queste tecniche che potrebbero essere prese in considerazione sono ad esempio la trasmissione senza fili e l'utilizzo di tecnologie che presentano una grande autonomia energetica.

Le attività di monitoraggio sono effettuate con lo scopo di confermare che, le singole caratteristiche naturali o ingegneristiche del sistema si comportano nel loro complesso come previsto, e deve essere presente in ogni fase di vita del deposito:

- **nella fase iniziale**, ovvero quella di implementazione, è particolarmente importante poiché è ancora possibile intervenire e risolvere eventuali problemi;
- **durante la fase operativa**, il monitoraggio è utile per dimostrare agli "stakeholders" che le prestazioni del sistema di smaltimento sono quelle previste in sede di progetto, e per fornire una considerevole rassicurazione per il pubblico;
- **nella fase di post-chiusura**, il monitoraggio a lungo termine prevede sfide considerevoli, poiché le sonde e le apparecchiature di misura devono lavorare per lunghi periodi in condizioni estreme e senza la possibilità di poter subire manutenzioni o riparazioni. Inoltre, i collegamenti necessari tra la superficie e gli apparecchi di misura, devono essere posti in modo tale da non creare vie di flusso preferenziali per la migrazione dei radionuclidi. In altre parole, le installazioni per il monitoraggio non devono compromettere le funzioni di sicurezza del deposito.

In molti paesi, le attività di monitoraggio in ogni singola fase sono diventate un requisito indispensabile per l'ottenimento della licenza di costruzione.

#### **2.2.8 Key Topic 8: Coinvolgimento degli stakeholders e governance**

Riguarda i processi attraverso i quali ha luogo il coinvolgimento delle parti interessate (*Stakeholders*) nei programmi di gestione dei rifiuti e della *Governance* di questi processi intendendo quei processi mediante cui, le società e le organizzazioni prendono importanti decisioni e determinano le parti da coinvolgere. La Commissione Europea definisce buono un

processo di *Governance* se caratterizzato dai seguenti requisiti: eccellenza, indipendenza, trasparenza, partecipazione e responsabilità.

Il key topic include l'analisi sui risultati di specifiche ricerche di settore e si concentra in particolar modo sui metodi di comunicazione con chi è coinvolto in *decisioni chiave* e relative alla realizzazione di un sistema di smaltimento geologico. Lo scopo di quest'attività è di sviluppare una guida internazionale per comunicare alle massime autorità decisionali e agli *stakeholders* (*soggetti esperti, autorità di regolamentazione, comunità locali, banche, governo nazionale e locale, lavoratori, organizzazioni sindacali ecc.*) i risultati delle ricerche che sostengono lo sviluppo del *SAFETY CASE* e delle valutazioni ambientali.

La comunicazione deve avvenire mediante diversi strumenti e approcci ed è fondamentale che le informazioni possano essere conservate per lunghi periodi. E' essenziale che i risultati delle ricerche siano comunicati attraverso un dialogo con gli *stakeholders* in modo chiaro, trasparente e integrato così da renderlo il più accessibile e comprensibile possibile. L'integrazione comprende la dimostrazione della validità e della qualità delle informazioni disponibili dalle varie fonti attraverso l'impegno e l'interazione delle varie organizzazioni come gli *stakeholders*, le autorità decisionali e gli istituti di ricerca.

Una serie di progetti di ricerca internazionali quali ARGONA, COWAM, CARL E TRUSTNET aiutano le organizzazioni di gestione dei rifiuti a condividere esperienze e a facilitare i rapporti tra gli "stakeholders" locali in diversi paesi. Al fine di migliorare la conoscenza sul coinvolgimento delle parti interessate e la "governance" dei processi decisionali, dovranno essere attivate continue e coordinate attività, con il coinvolgimento di:

- organizzazioni sulla gestione dei rifiuti, che hanno il ruolo di implementare lo smaltimento dei rifiuti e di ottenere e mantenere una fiducia pubblica sufficiente per completare le attività di stoccaggio;
- le comunità appartenenti al sito scelto per il deposito, che per molti anni dovranno convivere con le conseguenze derivanti dalla costruzione del deposito di smaltimento geologico;
- le massime autorità decisionali, come i governi, i regolatori e le autorità di sicurezza che prenderanno decisioni riguardo al progetto dell'impianto di smaltimento geologico;
- il pubblico.

#### Priorità alta:

**Topic 8.1: Governance dei processi decisionali (2012-2014).** L'esperienza nella realizzazione di un sistema di smaltimento geologico ha mostrato che le decisioni con alto livello di accettazione politica sono raggiunte (e quindi hanno maggiori probabilità di essere messe in atto) se il pubblico e gli "stakeholders" sono coinvolti e partecipano ai processi decisionali. Al fine di migliorare e



rendere più chiara la comunicazione con le istituzioni che prendono decisioni, è necessario sviluppare e migliorare metodi per l'integrazione d'informazioni tecniche, sociali ed economiche.

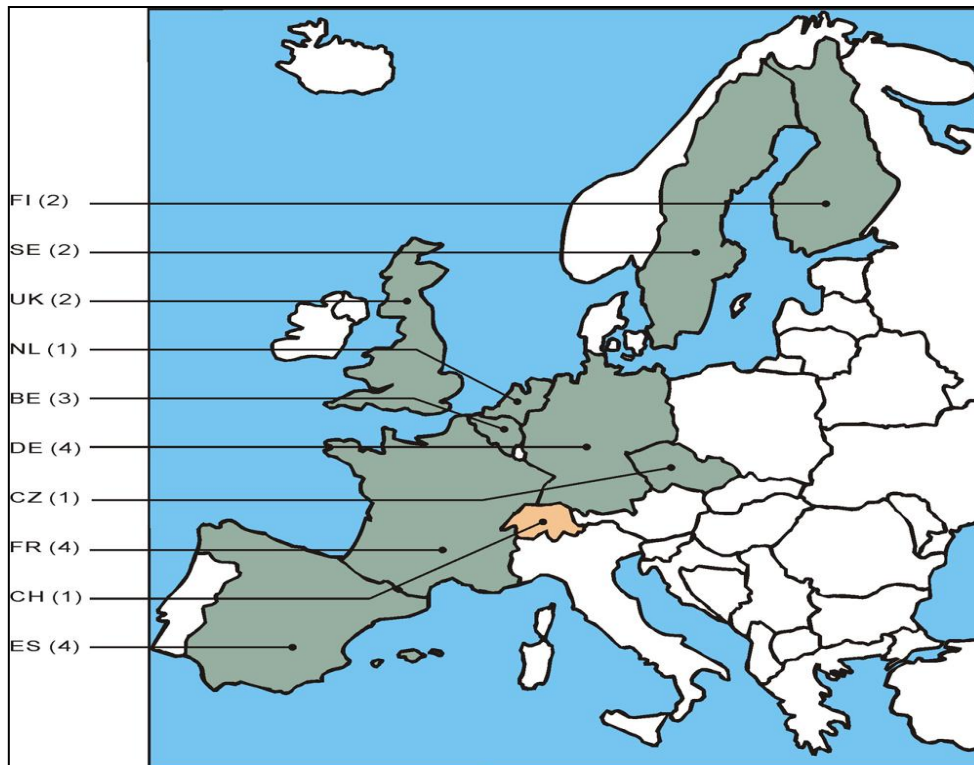
Priorità media:

**Topic 8.2:** *Migliorare i metodi, gli strumenti e le guide (2012-2014).* Sviluppare questa fase in modo tale i risultati delle ricerche ingegneristiche, scientifiche e tecniche possano dar luogo ad un dialogo aperto e trasparente con gli "stakeholder".

**Topic 8.3:** *Coinvolgere gli "stakeholders" nei processi decisionali per la realizzazione di un deposito geologico (2016-2025).*

### **2.3 IL PROGETTO PAMINA**

Il progetto PAMINA (Performance Assessment Methodologies IN Application) ([4],[5]) è stato definito nel "Sixth Framework Programme" della Commissione Europea ed **ha lo scopo di dimostrare la sicurezza di un deposito geologico per guidare e supportare lo sviluppo del SAFETY CASE**. Esso riunisce 25 organizzazioni provenienti da dieci paesi Europei e un Centro di Ricerca Comune della Commissione Europea (fig. 2.1), con l'obiettivo di migliorare e armonizzare le metodologie e gli strumenti che dimostrino la sicurezza dello smaltimento geologico in profondità per vari tipi di rifiuti, per diverse concezioni progettuali e per diversi ambienti geologici. I risultati di tale lavoro saranno d'interesse per le Organizzazioni Nazionali di Gestione dei Rifiuti, per le autorità di regolamentazione e per gli "stakeholders".



**Fig. 2.1: Paesi Europei che aderiscono al progetto PAMINA.**

### 2.3.1 Generalità

Il lavoro è organizzato in quattro “Research and Technology Development Components (RTDCs)” e una componente aggiuntiva, che riguarda la gestione e la diffusione della conoscenza:

- ✓ **RTDC 1:** Lo scopo è valutare lo stato dell’arte (state-of-art) delle metodologie e degli approcci necessari per la valutazione di sicurezza dei sistemi di smaltimento geologico in profondità, sulla base della revisione completa della prassi internazionale. Questo lavoro include l’identificazione di eventuali carenze o lacune nei metodi e negli strumenti utilizzati.
- ✓ **RTDC 2:** Lo scopo è stabilire un contesto e una metodologia per il trattamento delle differenti tipologie d’incertezze durante le valutazioni delle prestazioni (PA, Performance Assessment) e durante lo sviluppo del *SAFETY CASE*. L’obiettivo è sviluppare strumenti per la valutazione probabilistica della sicurezza e tecniche per l’analisi delle incertezze.
- ✓ **RTDC 3:** Lo scopo è sviluppare metodologie e strumenti per le valutazioni integrate delle prestazioni per vari concetti di smaltimento geologico. Questo lavoro include lo sviluppo di:
  - scenari di valutazione delle prestazioni (PA);
  - approcci di valutazione delle prestazioni (PA) per i processi di migrazione dei gas;
  - approcci di valutazione delle prestazioni (PA) per la modellazione della sorgente del rilascio dei radionuclidi;
  - indicatori di sicurezza e di performance.

- ✓ **RTDC 4:** Lo scopo è condurre esercitazioni su processi specifici, in cui sono effettuati confronti tra gli approcci basati su assunzioni semplificative e quelli basati su complessi modelli che tengono conto di un processo di concettualizzazione più completo nello spazio e nel tempo.

In questa sede sarà affrontato il terzo punto, ovvero l'**RTDC 3**, con particolare attenzione agli indicatori di sicurezza e di performance.

### **2.3.2 RTDC 3: Introduzione agli indicatori di sicurezza e di performance**

Lo smaltimento di rifiuti radioattivi in formazioni geologiche profonde implica un potenziale pericolo per l'uomo e per l'ambiente. Pertanto, il compito più importante nel momento in cui si deve effettuare la scelta del sito e la progettazione di un deposito, è quello di assicurare che i rifiuti smaltiti **non provochino danni per la salute umana e per l'ambiente**.

E' stato già osservato come il *SAFETY CASE* rappresenti la sintesi delle prove, delle analisi e degli argomenti che quantifica e giustifica la sicurezza del deposito, dopo la fase di chiusura e dopo il tempo in cui è garantito il controllo attivo dell'impianto. Una sezione importante di ogni *SAFETY CASE* è la prova di calcolo della sicurezza a lungo termine, per una varietà di scenari rilevanti che potrebbero essere possibili, o almeno che non è possibile escludere. L'esito primario di questi calcoli fornisce i flussi di attività dei radionuclidi, che da soli non hanno alcuna rilevanza diretta per la sicurezza. Per consentire una valutazione della sicurezza a lungo termine, è necessario confrontare i valori calcolati con dei valori di riferimento, chiamati **indicatori di sicurezza**.

La maggior parte delle Normative Nazionali forniscono i criteri di sicurezza in termini di "**dose**" e/o di "**rischio**", che sono valutati, utilizzando modelli matematici, per una serie di scenari del sistema di smaltimento, Il calcolo della "**dose**" include percorsi d'esposizione che dipendono dalle caratteristiche biologiche delle differenti specie, così come dal comportamento umano. Quando si calcola la dose per gli esseri umani, bisogna compiere un gran numero di assunzioni, che aumentano il livello d'incertezza delle misure e dei rilevamenti. Un esempio è la ricorrente ipotesi, molto discutibile, che le proprietà della biosfera rimangano invariate per il prossimo milione di anni. Di conseguenza, una dichiarazione di sicurezza basata solamente sul calcolo della "**dose**" e del "**rischio**" non è molto solida, per questo si è introdotto l'utilizzo d'indicatori di sicurezza complementari, che riducono notevolmente i livelli d'incertezza e rafforzano il *SAFETY CASE*. Mentre gli indicatori di sicurezza forniscono soltanto dichiarazioni sulla sicurezza complessiva di un sistema di deposito, può essere utile calcolare anche delle quantità che permettano di analizzare il funzionamento del sistema di deposito e dei suoi componenti a un livello più tecnico, ad esempio descrivendo l'efficacia delle barriere e di tutte le parti del sistema. Queste quantità sono chiamate **indicatori di performance**. Essi forniscono un buon mezzo per comprendere e comunicare il funzionamento del sistema e possono supportare il *SAFETY CASE* in modo chiaro e illustrativo.

Tipici indicatori di performance sono le ***concentrazioni e i flussi di radionuclidi all'interno o tra le differenti parti del sistema***.

L'utilizzo degli indicatori di sicurezza per valutare la sicurezza complessiva di un deposito e degli indicatori di performance per dimostrare il funzionamento del sistema, è stato ampiamente discusso in sede internazionale da progetti come ad esempio lo SPIN (**S**afety and **P**erformance **I**ndicators). Tale progetto di ricerca è stato fondato dalla Commissione Europea all'interno del programma "Nuclear Energy" della Comunità Europea dell'energia atomica (EURATOM).

### 2.3.2.1 Radiotossicità

La **radiotossicità** è un indice della capacità potenziale di un radionuclide di produrre effetti dannosi nelle cellule viventi o nei diversi tessuti in seguito alla sua inalazione (in genere la situazione più pericolosa) o alla sua ingestione.

La formula impiegata per calcolare il valore della radiotossicità **R** (Sv) è la seguente:

$$R = F_d A$$

dove **F<sub>d</sub>** è il fattore di dose (Sv/Bq) e **A** l'attività del radionuclide (Bq).

L'**International Commission on Radiation Protection (ICRP)** ha pubblicato i fattori di dose **F<sub>d</sub>** per quasi tutti i radioisotopi dei nuclidi conosciuti. Questi diversi radioisotopi sono classificati in 4 categorie di radiotossicità: bassa, moderata, alta e molto alta.

### 2.3.2.2 Sicurezza a lungo termine

Per ogni deposito geologico realizzato, deve essere dimostrata la sicurezza a lungo termine, ***cioè che per un lungo periodo (in linea di principio illimitato), a partire dalla sigillatura del deposito, non ci siano effetti provenienti dal sistema di smaltimento geologico che possano mettere in pericolo la salute e la vita umana o disturbare lo stato naturale e l'evoluzione dell'ambiente, al di fuori di una minima zona tecnicamente inevitabile d'influenza.***

Questa definizione evidenzia due problemi fondamentali della sicurezza, ovvero la protezione della vita e della salute umana e la protezione dell'ambiente. La sicurezza non deve essere ridotta all'analisi e alla valutazione di un singolo aspetto, come ad esempio la salute umana, poiché nonostante questo possa essere l'aspetto più importante, non è l'unico. Talvolta si sostiene che la protezione dell'uomo includa automaticamente tutti gli altri aspetti di protezione, ad esempio nei confronti dell'ambiente, ma è intuitivo comprendere che quest'assunzione non sempre può essere considerata accettabile. Alla luce di ciò, è possibile affermare che un deposito può essere sicuro rispetto a un aspetto, ma non sicuro rispetto a un altro, dove gli aspetti sono:

- salute umana;
- fertilità umana;
- qualità della vita umana;

- qualità delle acque sotterranee;
- qualità delle acque superficiali;
- qualità dell'acqua di mare;
- equilibrio delle specie biologiche;
- salute degli esseri viventi non umani.

Gli aspetti di sicurezza possono essere più o meno globali, per questo, un aspetto che risulta totalmente coperto da un altro può essere considerato un sotto-aspetto. Spesso, tuttavia, può accadere che vi sia una sovrapposizione tra i diversi aspetti senza che però nessuno sia un sotto-aspetto degli altri, ad esempio la qualità delle acque sotterranee è chiaramente rilevante per la salute umana ma anche per la salute degli esseri viventi non umani.

***Nell'istituzione di un SAFETY CASE deve essere chiaramente indicato a chi sono rivolti gli aspetti di sicurezza.***

### **2.3.2.3 Indicatori di sicurezza**

Per valutare mediante un modello di calcolo la sicurezza a lungo termine riguardo ad un aspetto specifico, è necessario che le quantità calcolabili siano legate alla sicurezza e che possano essere confrontate con valori di riferimento.

***Un indicatore di sicurezza è una quantità calcolabile per mezzo di opportuni modelli, che fornisce una misura della prestazione del sistema nel suo complesso, riguardo a uno specifico aspetto di sicurezza, rispetto a un valore di riferimento ritenuto sicuro.***

Un indicatore di sicurezza dovrebbe fornire un'indicazione di quanto un deposito possa essere considerato sicuro riguardo alcuni aspetti di sicurezza. Tale indicazione deve essere quantificata mediante una misura numerica, da confrontare con un valore di riferimento che definisca il livello di sicurezza. ***Un indicatore di sicurezza senza un valore di riferimento non può essere utilizzato per valutare la sicurezza a lungo termine di un sistema di deposito***, per questo si raccomanda di non parlare mai di un indicatore di sicurezza senza fare riferimento a un valore di riferimento specifico.

In alcuni casi, quando è nota la quantità da utilizzare come riferimento, ma non se ne conosce il valore numerico, si parla di "parametro di riferimento" o "quantità di riferimento".

Quando si determina un valore di riferimento, è essenziale tener conto di uno specifico aspetto di sicurezza, in quanto, la stessa misura numerica per la sicurezza del deposito, anche se effettuata esattamente nello stesso modo, può produrre dichiarazioni di sicurezza differenti se riferita ad aspetti di sicurezza diversi e se combinata con valori di riferimento appropriati.

Ad esempio si può considerare come indicatore di sicurezza la "radiotossicità del flusso delle acque sotterranee" e ci si può chiedere quale sia il valore di riferimento che definisca il livello ritenuto sicuro. Se si suppone che nelle vicinanze del deposito ci sia un fiume, quando si considera

come aspetto di sicurezza la “salute della fauna fluviale” o, riguardo alla salute umana, “l’integrità dell’acqua potabile proveniente dal fiume”, sembrerebbe una buona idea quella di confrontare la radiotossicità del flusso calcolato con il flusso di **radiotossicità naturale del fiume**. Nei grandi fiumi però, il flusso di radiotossicità può raggiungere le migliaia di Sievert per anno, il che può portare a definire “sicuro”, rispetto ai suddetti aspetti di sicurezza, anche il peggior deposito.

Se come aspetto di sicurezza si considera l’“integrità dell’acqua proveniente da una sorgente”, può essere scelto come valore di riferimento la **radiotossicità naturale del flusso nelle acque sotterranee locali**, che normalmente è diversi ordini di grandezza inferiore a quella relativa al fiume.

Dato che le dichiarazioni di sicurezza che derivano prendendo in considerazione i due diversi valori di riferimento sono completamente differenti, anche i rispettivi indicatori di sicurezza dovrebbero essere visti in modo differente, pur se basati sulle stesse quantità calcolate.

I valori di riferimento possono essere:

- ✓ **validi a livello mondiale**, come ad esempio la “concentrazione di radiotossicità nell’acqua potabile innocua per la salute umana”;
- ✓ **validi a livello locale**, soltanto in specifici ambienti, come ad esempio il “flusso di radiotossicità naturale nelle acque sotterranee”.

A ogni aspetto di sicurezza preso in considerazione può essere associato uno o più indicatori di sicurezza. I **più importanti aspetti di sicurezza** e gli **indicatori di sicurezza più idonei** sono:

### **1) Salute umana**

La salute umana è l’aspetto di sicurezza più importante e non deve essere compromessa dal rilascio dei radionuclidi dal deposito. Questo significa che tutti gli effetti biologici su un individuo umano devono rimanere così piccoli da non avere ripercussioni sulla salute. Tale aspetto di sicurezza include i seguenti scenari:

- ✓ incorporazione dei radionuclidi da parte degli esseri umani;
- ✓ irradiazione esterna.

Altri aspetti di sicurezza, come ad esempio la qualità delle acque sotterranee, possono essere rilevanti per la salute umana senza essere sotto-aspetti.

Il modo più adeguato per misurare l’influenza delle sostanze radioattive sulla salute umana, cioè la radiotossicità, è quello di moltiplicare l’attività con coefficienti di dose relativi a ogni specifico radionuclide. Questi coefficienti tengono conto della fisiologia umana e comprendono tutti gli effetti dannosi per un essere umano.

Un appropriato indicatore di sicurezza per l’aspetto di sicurezza della “salute umana” è la **dose annuale effettiva assorbita da un individuo umano (dose rate)**, calcolata utilizzando percorsi standardizzati d’esposizione, fattori di conversione per ogni radionuclide e confrontata con un livello ben al di sotto del valore naturale, quindi considerato sicuro.

La dose annuale collettiva di un gruppo d'individui umani, analogamente, è calcolata utilizzando percorsi standardizzati di esposizione e fattori di conversione per ogni radionuclide ed è confrontata con un tipico valore naturale che può essere considerato sicuro. La dose collettiva, differisce dalla dose individuale poiché si riferisce alla salute generale della popolazione, senza tener conto della salute dei singoli individui.

## **2) Qualità dell'acqua potabile**

La qualità dell'acqua potabile è un aspetto di sicurezza legato alla salute umana e può in generale essere visto come un importante sottoaspetto di essa. Per conferire un significato più generale a tale aspetto di sicurezza, si può assumere che in futuro gli esseri umani utilizzeranno l'acqua potabile proveniente da fonti accessibili a tutte le specie biologiche.

Un indicatore di sicurezza appropriato per tale aspetto di sicurezza è **la misura della qualità dell'acqua potabile in termini di radiotossicità**, calcolata moltiplicando l'attività di ogni radionuclide per il fattore di dose d'ingestione relativo ad ogni determinato radionuclide e confrontata **con un valore di radiotossicità noto, non dannoso per la salute umana**. Tale valore di riferimento può essere ottenuto da indagini sull'acqua che è stata bevuta per secoli senza causare alcun danno.

## **3) Qualità delle acque sotterranee**

La qualità delle acque sotterranee è essenziale non solo per la salute umana, ma anche per la flora e la fauna. Essa può essere compromessa dalla contaminazione radioattiva, dovuta all'eventuale rilascio di radionuclidi a seguito del danneggiamento dei contenitori.

Dal momento che i livelli d'accettazione delle differenti parti dell'ambiente possono variare sensibilmente, la misura della qualità delle acque sotterranee non è semplice. Un possibile approccio si basa sul confronto della contaminazione con quella dovuta alla presenza di radionuclidi naturali, ma poiché molti dei radionuclidi rilasciati da un deposito non sono presenti in ambienti naturali, possono sorgere dei problemi.

Un indicatore di sicurezza appropriato per l'aspetto di sicurezza **"qualità delle acque sotterranee"** è la **"concentrazione di radiotossicità nelle acque sotterranee"**, confrontata con quella naturale. Questa è calcolata direttamente moltiplicando la concentrazione dei radionuclidi per i fattori di dose d'ingestione.

Molto utilizzati sono anche gli indicatori di sicurezza in termini di flusso, ad esempio **il flusso di radiotossicità delle acque sotterranee provenienti dal deposito** rispetto alla **radiotossicità naturale presente nelle acque sotterranee**. Il calcolo degli indicatori in termini di flusso è più robusto rispetto a quello degli indicatori basati sulla concentrazione, poiché non è richiesta nessuna conoscenza sull'evoluzione della geosfera.

## **4) Qualità delle acque del fiume**

Prendendo in considerazione tale aspetto di sicurezza, si assume che tutti i radionuclidi rilasciati dal deposito raggiungano l'ambiente idrogeologico circostante, ad esempio un fiume. La qualità

dell'acqua del fiume non deve essere compromessa dal rilascio di radionuclidi dal deposito e come riferimento può essere utilizzata la contaminazione naturale. Il problema nell'utilizzare tale riferimento è che i grandi fiumi trasportano una considerevole quantità di radionuclidi naturali e a causa di ciò, anche flussi considerevoli provenienti da un deposito potrebbero non alterare la contaminazione delle acque, facendo considerare sicuro un deposito che in realtà non lo è. Tale aspetto di sicurezza, pertanto, è normalmente di scarsa rilevanza, salvo che il fiume non sia piuttosto piccolo.

Un indicatore di sicurezza appropriato per tale aspetto di sicurezza è **il flusso di radiotossicità dal deposito verso il fiume, confrontato con il flusso naturale di radiotossicità presente nel fiume**. La radiotossicità è calcolata, come al solito, moltiplicando l'attività di ciascun radionuclide per il relativo fattore di dose.

### **5) Integrità degli esseri non umani altamente radiosensibili**

Mentre gli indicatori di sicurezza menzionati fin ora si riferiscono direttamente o indirettamente alla salute umana, questo aspetto di sicurezza si riferisce esclusivamente a forme di vita non umane, particolarmente sensibili alle radiazioni ionizzanti.

L'utilizzo d'indicatori di sicurezza riguardo tale aspetto, richiede ampie e dettagliate conoscenze, attualmente non disponibili, sulla radiosensibilità della flora e della fauna.

A tal proposito, una stima conservativa può essere eseguita utilizzando il seguente indicatore di sicurezza:

**la dose annuale di un essere ipotetico, che combina tutte le più alte radiosensibilità di ogni specie, confrontata con la dose derivante dall'esposizione naturale.**

Come per gli esseri umani, questa è calcolata moltiplicando l'attività di ciascun radionuclide per uno specifico set di fattori di dose, ovvero quello in cui compaiono i massimi valori per ogni radionuclide.

L'utilizzo di tale indicatore di sicurezza richiede un ingente lavoro e dei grandi sforzi, per questo non è considerato all'interno del progetto PAMINA.

### **6) La salute umana e il "RISCHIO" utilizzato come indicatore di sicurezza**

In alcuni paesi la normativa richiede una valutazione del rischio, che in generale non dovrebbe superare il limite di  $10^{-6}$  per anno. Il calcolo del rischio è effettuato mediante procedure semplificate, ad esempio in Spagna il valore  $10^{-6}$  /anno è associato direttamente a una dose annua assorbita (**dose rate**) di  $10^{-4}$  Sv/anno, così che il calcolo del rischio è in realtà un calcolo di dose.

Il rischio (R) è definito dalla combinazione di due parametri, ovvero:

- ✓ la probabilità che si verifichi un evento incidentale per un definito periodo;
- ✓ la misura delle conseguenze di tale evento.



In questo modo, per fornire una descrizione quantitativa del rischio, bisogna conoscere tre informazioni, ovvero:

- ✓ una serie di condizioni (lo scenario “**S**”),
- ✓ la probabilità “**p**” che si verifichi lo scenario;
- ✓ le conseguenze “**C**” dello scenario.

Le conseguenze devono essere delle misure calcolabili, che **possono anche essere utilizzate come indicatore di sicurezza.**

Nella valutazione del rischio, l’aspetto di sicurezza che si considera è “**la salute umana**” e il calcolo è effettuato, per semplicità, sulla base della **dose annua assorbita (“dose rate”, Sv/anno)** in seguito all’esposizione allo scenario analizzato.

Il rischio, basato sul calcolo della dose  **$R_D$**  e derivante da una serie di possibili scenari  **$S_j$**  con probabilità  **$p_j$** , può essere calcolato come:

$$R_D = \sum_{i=1}^n p_i C_i$$

Dove  $C_j$  è il “dose rate” risultante dallo scenario  $i$ -esimo. L’unità di misura del rischio  $R_D$  è evidentemente Sv/anno. Al fine di confrontare il rischio  $R_D$  con gli altri rischi accettati, il valore calcolato deve essere trasformato in un valore che sia più illustrativo e che permetta di calcolare il rischio personale.

**Un indicatore di rischio (RI) confronta la probabilità di un evento e le sue conseguenze con un limite di rischio accettato dalle autorità e dalla società.**

Introducendo un coefficiente di rischio ( $r$ ) si può scrivere la seguente relazione:

$$R = r \times R_D$$

dove  $R$  rappresenta il **rischio di ammalarsi di cancro** a causa del rilascio di radionuclidi dal deposito. Il coefficiente ( $r$ ) assume valori compresi tra  $0,04 \text{ Sv}^{-1}$  e  $0,07 \text{ Sv}^{-1}$ , in quanto il rischio di subire danni alla salute può essere molto più alto del rischio di morire. Di solito si utilizza il valore  $0,05 \text{ Sv}^{-1}$ .

Il rischio calcolato può essere utilizzato come un indicatore di sicurezza se confrontato con i rischi derivanti da altre fonti, che ad esempio possono essere:

- Il rischio di avere un incidente mortale nel traffico stradale in Germania, stimato nel 2007 con il valore di  $6 \cdot 10^{-5}$  /anno;
- Il rischio di morire in un incidente aereo che è circa  $10^{-7}$  /anno.

Entrambi i rischi sono generalmente accettati dalla società e possono quindi essere utilizzati come valori di riferimento.

Prendendo in considerazione tutti i possibili scenari e considerando la probabilità pari ad 1 per lo scenario più avverso, si può calcolare in riferimento a quest'ultimo, il **rischio massimo**, che è pari a  $1,5 \cdot 10^{-5}$  /anno, se si assume che lo scenario rispetti il limite di dose di 0,3 mSv/anno imposto dalle autorità tedesche:

$$R_{\max} = 0,05 \cdot \text{Sv}^{-1} \cdot 1 \cdot 0,3 \text{ mSv/anno} = 1,5 \cdot 10^{-5} \text{ /anno}$$

Tale valore è circa un quarto del rischio di avere un incidente stradale mortale in Germania.

L'utilizzo degli indicatori di rischio a volte può essere fuorviante, poichè la probabilità che si verifichi un particolare scenario non sempre è calcolabile precisamente, ma può soltanto essere stimata, compiendo inevitabilmente degli errori che conferiscono al valore un elevato grado di incertezza.

#### **2.3.2.4 Indicatori di prestazioni**

Secondo la definizione del progetto SPIN, gli indicatori di performance sono un buon metodo per visualizzare il funzionamento del sistema e per aiutare a comprendere l'interazione dei suoi componenti. Questa definizione, tuttavia, è più ampia del necessario e sembra interferire con alcuni termini utilizzati da altri per altri scopi. Per questo motivo la definizione utilizzata è più restrittiva ed è la seguente:

***Un indicatore di performance è una quantità, calcolabile per mezzo di modelli appropriati, che fornisce una misura delle prestazioni di un componente del sistema, di più componenti o dell'intero sistema.***

Gli indicatori non hanno bisogno di valori di riferimento o criteri tecnici e sono utili per:

- ✓ l'ottimizzazione del sistema di smaltimento;
- ✓ confrontare le differenti opzioni;
- ✓ migliorare la comprensione del ruolo svolto dai diversi componenti del sistema;
- ✓ la comunicazione delle prestazioni dei vari componenti agli esperti e al pubblico in generale.

Gli indicatori di sicurezza sono un buon metodo per valutare il livello di sicurezza del sistema globale, ma non forniscono informazioni su come il sistema lavora e su com'è raggiunto il livello di sicurezza. Questa informazione, tuttavia, è molto importante per rafforzare la fiducia nel SAFETY CASE. Per gli esperti è essenziale comprendere come le differenti barriere lavorano insieme per contenere i radionuclidi all'interno del deposito e ciò è possibile mediante l'utilizzo degli indicatori di performance. Essi sono in genere le concentrazioni o i flussi di radionuclidi in o tra specifiche parti del sistema di deposito, il quale è suddiviso in più compartimenti. La struttura a compartimenti è molto utile per dimostrare il funzionamento dei vari componenti del deposito poichè è possibile calcolare e confrontare gli indicatori in ogni zona.

I compartimenti possono essere: sottosistemi naturali (geosfera, biosfera), componenti ingegneristici (contenitori e barriere) e le fasi fisicamente indipendenti nelle specifiche regioni (acqua attorno ai contenitori o precipitato). Spesso è utile considerare compartimenti che al loro interno ne contengono altri, ad esempio il compartimento del contenitore che contiene altri tre compartimenti, ovvero la matrice dei rifiuti, l'acqua attorno ai contenitori, (che può contenere i radionuclidi in soluzione) e il precipitato. Si considera tale compartimento in quanto, i radionuclidi rilasciati dal contenitore danneggiato possono andare in soluzione oppure precipitare, in base ai limiti di solubilità che presentano.

Quando si progetta la struttura a compartimenti per uno specifico sistema di deposito, si deve effettuare una distinzione tra i processi che avvengono *nei compartimenti* e quelli che avvengono *tra i compartimenti*, perché in base a ciò si possono considerare strutture diverse.

Nel progetto SPIN sono considerati soltanto i sistemi di deposito realizzati in formazioni granitiche e si assume che tutti i contenitori siano identici. Con tale assunzione si definisce un solo compartimento del contenitore, formato dalla matrice dei rifiuti, dall'acqua circostante e dal precipitato. Il compartimento del contenitore è circondato da un "buffer" di bentonite e da una zona EDZ (Excavation Damaged Zone) che rappresenta la galleria di smaltimento. Questi compartimenti insieme rappresentano il *campo vicino*, circondato poi dalla geosfera e infine dalla biosfera.

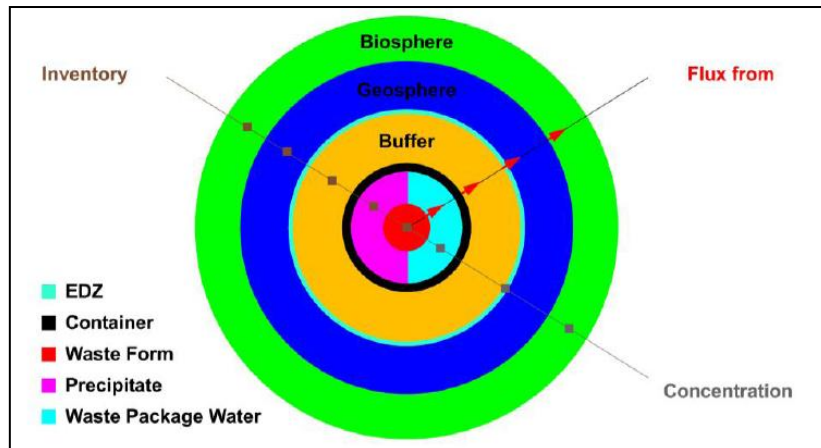
**Per i sistemi di deposito realizzati in formazioni di argilla,** si può utilizzare una struttura a compartimenti simile a quella descritta per formazioni granitiche, con la sola differenza che il compartimento del contenitore è direttamente seguito dalla geosfera, poiché non ha senso distinguere la bentonite e la formazione di argilla circostante.

**I sistemi di deposito realizzati in Germania, in formazioni di sale,** richiedono normalmente una struttura differente di quella a compartimenti concentrici, poiché i differenti tipi di rifiuti sono collocati in diverse parti della miniera. Per tale motivo, è più adatto prendere in considerazione una struttura a compartimenti paralleli. Essa contiene due compartimenti riguardanti il combustibile esaurito (Spent Fuel, SF), un compartimento per rifiuti HLW (High Level Waste) e un compartimento per rifiuti ILW (Intermediate Level Waste).

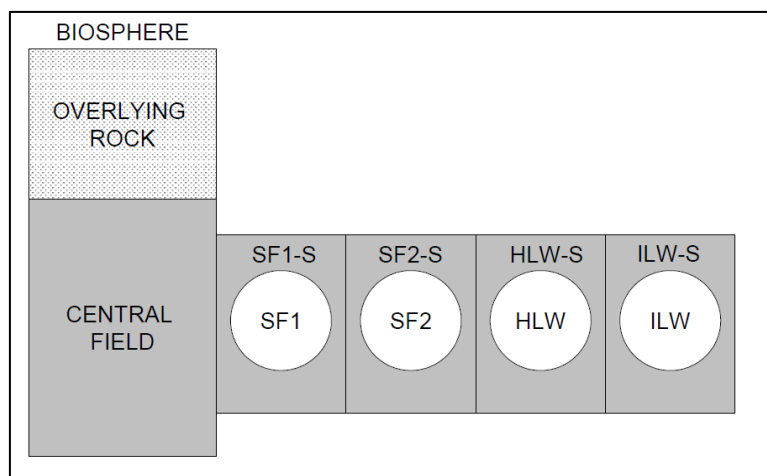
Ognuno di questi compartimenti è suddiviso in:

- forme di rifiuti (wasteform);
- contenitori;
- gallerie di smaltimento;
- pozzi profondi 300 m dove sono collocati i rifiuti.

Due ulteriori compartimenti sono il "*centralfield*" ovvero l'area centrale e le rocce sovrastanti. Nelle figure 2.2 e 2.3 sono rappresentate le due tipologie di strutture a compartimenti, quella a compartimenti concentrici, per le formazioni granitiche, analizzata nel progetto SPIN e quella a compartimenti paralleli, per le formazioni di sale, utilizzata in Germania.



**Fig. 2.2** *Struttura a compartimenti del progetto SPIN (formazioni rocciose granitiche)*



**Fig. 2.3** *Struttura a compartimenti del progetto SPIN (formazioni evaporitiche)*

Gli indicatori di performance utilizzati nel progetto SPIN, per mostrare i differenti aspetti del funzionamento dei singoli compartimenti e per valutare le prestazioni delle barriere del sistema, sono:

- **Inventari all'interno dei compartimenti:** Lo sviluppo nel tempo degli inventari, nei differenti compartimenti, mostra dove si trovano i radionuclidi in ogni istante di tempo. Gli inventari sono calcolati: nei rifiuti all'interno dei contenitori, nel precipitato, nel materiale di buffer, nella geosfera e nella biosfera (fig. 2). Questo indicatore è di facile comprensione e consente di valutare la capacità di ritenzione dei radionuclidi da parte delle barriere. Se calcolato per il compartimento della biosfera, esso può raggiungere valori piuttosto elevati, conseguentemente al fatto che con biosfera s'intende tutto ciò che si trova al di fuori della geosfera. Complessivamente questo è un indicatore utile per mostrare il funzionamento del sistema riguardo all'accumulo di radionuclidi in specifiche parti di esso.
- **Inventari al di fuori dei compartimenti:** Questo indicatore è simile al precedente ed è utilizzato per mostrare le prestazioni combinate di tutte le barriere, evidenziando soprattutto quelle che sono inefficaci.

- **Concentrazioni nei compartimenti:** Il calcolo delle concentrazioni ha senso soltanto nei compartimenti dov'è presente l'acqua, quindi si effettua nell'acqua intorno ai contenitori e nell'acqua della biosfera (fig.2.2). Dal confronto tra le due concentrazioni è evidenziata la diluizione dei radionuclidi e quindi la diminuzione di concentrazione nei vari compartimenti del sistema di smaltimento. Si tratta di un indicatore che quantifica direttamente la funzione di sicurezza "**dispersion and dilution**". Lo sviluppo nel tempo di questo indicatore può essere illustrativo, ma a volte difficile da interpretare, perché non vi è normalmente un tempo di ritardo tra le curve.
- **Flussi dai compartimenti:** Lo sviluppo nel tempo dei flussi tra compartimenti adiacenti mostra come i radionuclidi si muovono all'interno del deposito. I flussi sono calcolati: dai rifiuti, dai contenitori, dal campo vicino e dalla geosfera (fig.2.2). Questo indicatore è utile per mostrare i tassi di rilascio, **decrescenti compartimento dopo compartimento**, fornendo un'indicazione diretta della funzionalità delle barriere di ogni compartimento e dell'intero sistema.
- **Flussi integrati nel tempo dai compartimenti:** Questo indicatore è ottenuto integrando nel tempo i flussi provenienti dai compartimenti. Tale operazione si traduce graficamente in curve di tempo che possono solo crescere e raggiungere un valore costante. Tale valore, se normalizzato rispetto all'inventario iniziale dei compartimenti, mostra la quantità di radionuclidi che sono stati trattenuti o che sono decaduti in ogni compartimento, fornendo un'indicazione diretta della capacità di ritenzione di ogni singolo compartimento. Esso quantifica la funzione di sicurezza "**delay and decay**".
- **Tempi di trasporto attraverso i compartimenti:** Può essere indicativo calcolare i tempi di trasporto dei differenti radionuclidi attraverso i compartimenti e confrontarli con i rispettivi tempi di dimezzamento. A causa degli effetti di dispersione, tuttavia, il calcolo di tale indicatore può non essere semplice e richiedere sistemi di calcolo sofisticati e ben definiti nei modelli.
- **Misura dei rifiuti non totalmente isolati:** Questo indicatore è stato specificatamente introdotto nel progetto SPIN per quantificare la funzione di sicurezza "**isolamento e contenimento**". Normalmente, una gran parte dell'inventario iniziale è trattenuto o decade all'interno del deposito, senza mai raggiungere l'ambiente esterno. Il potenziale d'isolamento dell'intero sistema può essere illustrato chiaramente dividendo l'inventario rilasciato per l'inventario iniziale.

### 2.3.2.5 SUPPORTO DEL “SAFETY CASE” MEDIANTE GLI INDICATORI

Ogni **indicatore di sicurezza** che si utilizza nel *SAFETY CASE* deve essere definito da una **dichiarazione di sicurezza** (*safety statement*), basata su un **aspetto di sicurezza** (*safety aspect*) individuato in precedenza. Tali aspetti di sicurezza sono basati su almeno uno dei due principali **problemi della sicurezza** (*safety concerns*): la **“tutela della salute umana”** e la **“tutela dell’ambiente”**.

Una dichiarazione di sicurezza potrebbe essere ad esempio: “Tutti gli effetti biologici su un essere umano, dovuti all’incorporazione dei radionuclidi rilasciati da un deposito, devono rimanere così contenuti da non avere alcun impatto sulla salute umana”. Il corrispondente aspetto di sicurezza è la salute umana.

Per una dichiarazione di sicurezza completa è necessario:

- ✓ effettuare una misura numerica che permetta di calcolare gli effetti biologici provocati dall’incorporazione dei radionuclidi;
- ✓ individuare un valore di riferimento per definire un livello di sicurezza.

Spesso si utilizza come misura l’effettiva dose annua assorbita (*dose rate*) e come valore di riferimento il limite nazionale imposto. A questo punto l’indicatore di sicurezza è teoricamente fissato e definito.

La misura numerica necessaria per l’utilizzo di un indicatore di sicurezza a supporto del *SAFETY CASE* è effettuata per mezzo di un modello di *Performance Assessments*, PA, riferito al corrispondente sistema di deposito. Il modello di PA consente il calcolo della migrazione dei radionuclidi da un deposito basandosi su un progetto di riferimento e sulla descrizione del sito geologico. Una volta confrontato il risultato proveniente dal modello di PA con il valore di riferimento dell’indicatore di sicurezza, la determinazione dell’indicatore di sicurezza è completa e può essere aggiunta al *SAFETY CASE*.

Gli indicatori di performance non sono basati su una dichiarazione di sicurezza bensì sono una parte del modello della valutazione di sicurezza. Per ogni indicatore di performance è necessario definire una struttura a compartimenti, scelta in base a diverse condizioni, quali la formazione rocciosa ospitante il deposito o la quantità calcolata (attività, concentrazione, flusso ecc.). Se si utilizzano più indicatori di performance all’interno di uno studio, la struttura a compartimenti scelta dovrebbe essere la stessa, o al limite il più simile possibile, al fine di consentire un confronto dei risultati.

Gli indicatori di performance sono molto importanti per la comprensione dei processi modellati mediante la PA e possono essere utilizzati per l’ottimizzazione del sistema di deposito. Non tutti gli indicatori di performance utilizzati sono aggiunti al *SAFETY CASE*, ma la maggior parte fornisce informazioni importanti per incrementare la fiducia nella sicurezza di un sistema di deposito geologico.

## 2.4 LE INDICAZIONI IAEA

La IAEA nelle (IAEA Safety Series n.99, 1989), detta i principi di sicurezza e criteri tecnici per lo smaltimento dei rifiuti ad alta attività in formazioni geologiche profonde, che sono di seguito riassunti.

### 2.4.1 Principi di sicurezza

**Principio N. 1: Carico alle generazioni future** - Deve essere minimizzato il carico lasciato alle future generazioni, sistemando i rifiuti radioattivi ad alta attività in modo sicuro e in tempi appropriati, tenendo conto dei fattori tecnici, sociali ed economici (Principio ALARA)

**Principio N. 2: Indipendenza della sicurezza dai controlli istituzionali** - La sicurezza di un deposito per rifiuti radioattivi ad alta attività nel periodo posteriore alla chiusura non deve basarsi su monitoraggio e sorveglianza attiva, o su altri controlli istituzionali, o azioni equivalenti, dopo l'abbandono del controllo diretto del deposito stesso.

**Principio N. 3: Effetti nel futuro** - Il grado di isolamento dei rifiuti radioattivi ad alta attività deve essere tale che non possano essere previsti in futuro rischi per la salute dell'uomo, o conseguenze per l'ambiente, che oggi non sarebbero ritenuti accettabili.

**Principio N. 4: Considerazioni transfrontaliere** - Come principio di base, le strategie e i criteri di radioprotezione delle popolazioni al di fuori dei confini nazionali per il rilascio di sostanze radioattive non devono essere meno restrittivi di quelli adottati per le popolazioni all'interno dei confini nazionali.

**Principio N. 5: Limiti di dose – condizioni di normale evoluzione** - Per gli eventuali rilasci dal deposito dovuti a processi evolutivi naturali, la dose annua prevista agli individui del gruppo critico deve essere inferiore al limite di dose stabilito dall'Autorità Nazionale

**Principio N. 6: Limiti di dose - scenari anomali, associati al verificarsi di eventi e processi improbabili** - Il livello di sicurezza di un deposito per rifiuti ad alta attività deve essere tale che un eventuale rischio di effetto sulla salute in un anno su un individuo del gruppo critico per effetto di eventi anomali non inclusi nel Principio N. 5 sia inferiore ai limiti di rischio stabiliti dall'Autorità Nazionale.

**Principio N. 7: Ulteriore principio di radioprotezione** - Tutte le esposizioni alle radiazioni che potrebbero derivare dal deposito dei rifiuti radioattivi ad alta attività devono essere mantenute al più basso livello ragionevolmente possibile, tenuto conto dei fattori sociali ed economici (ALARA).

### 2.4.2 Criteri di tipo tecnico

**Criterio N. 1: Approccio globale del sistema** - La sicurezza a lungo termine dello smaltimento dei rifiuti radioattivi ad alta attività deve essere basata sul concetto multi barriera, e deve essere validata sulla base delle prestazioni dell'intero sistema nel suo complesso.

**Criterio N. 2: Inventario radiologico** - I criteri di accettazione del sito devono essere commisurati all'inventario radiologico di riferimento

**Criterio N. 3: Forma del rifiuto** - I rifiuti radioattivi ad alta attività destinati al deposito devono essere in forma solida, con proprietà fisiche e chimiche tali da favorire la ritenzione dei radionuclidi, e compatibili con il sistema di deposito.

**Criterio N. 4: Periodo iniziale di isolamento** - Il sistema di smaltimento dei rifiuti radioattivi ad alta attività deve essere progettato in modo tale che sia garantito il completo isolamento dei radionuclidi per un periodo iniziale.

**Criterio N. 5: Progetto e costruzione del deposito** - Il deposito per rifiuti radioattivi ad alta attività deve essere progettato, realizzato, operato e chiuso in modo tale che siano preservate le giunzioni di sicurezza post-chiusura della formazione ospite e dei suoi dintorni.

**Criterio N. 6: Criticità nucleare** - Il deposito per rifiuti radioattivi ad alta attività deve essere progettato, e i rifiuti sistemati, in modo tale che tutte le materie fissili rimangano in una configurazione intrinsecamente sottocritica.

**Criterio N. 7: Geologia del sito** - Il deposito deve essere situato a profondità sufficiente per proteggere in modo adeguato i rifiuti dagli eventi e dai processi esterni, in una formazione ospite avente proprietà tali da minimizzare adeguatamente il deterioramento delle barriere fisiche e il trasporto dei radionuclidi dal deposito all'ambiente.

**Criterio N. 8: Considerazione delle risorse naturali** - Il sito del deposito deve essere scelto, per quanto possibile, in modo da evitare contiguità con risorse naturali di valore, o di materiali che non sono facilmente ricavabili altrove.

**Criterio N. 9: Dimostrazione della sicurezza** - La rispondenza dell'intero sistema di deposito con gli obiettivi di sicurezza e radioprotezione deve essere dimostrata per mezzo di analisi di sicurezza basate su modelli il più possibile validati.

**Criterio N. 10: Assicurazione della qualità** - Deve essere stabilito e attuato un programma di assicurazione della qualità per i componenti del sistema di deposito, e per tutte le attività dalla validazione del sito alla costruzione e operazione e alla chiusura del deposito, allo scopo di assicurare la congruenza con i relativi standard e criteri.

#### **2.4.3 Criteri di selezione del sito di un deposito**

Un deposito forma insieme all'ambiente geologico circostante il sistema che serve per contenere i radionuclidi ed evitare che raggiungano la biosfera. Detto ciò, si deduce che non sono rilevanti soltanto i parametri e le proprietà dei materiali del deposito bensì anche tutto ciò che riguarda l'area circostante. La prima cosa di cui bisogna accertarsi quando si considera un sito per la costruzione di un deposito geologico è che esso ***sia stabile da milioni di anni e si prevede che tale***



***rimarrà per molti altri milioni di anni.*** Stabile non vuol dire “senza cambiamenti” ma piuttosto si richiede che questi siano lenti e prevedibili.

Le acque sotterranee sono il principale vettore per la migrazione dei radionuclidi in superficie, per questo, quando si sceglie un sito per la costruzione di un deposito geologico profondo, è necessario dimostrare che le acque presenti abbiano molti milioni di anni, cosa che indicherebbe che non hanno avuto luogo glaciazioni e movimenti d’acqua durante tutto l’arco di tempo.

In Europa, più di 150 anni di ricerche geologiche hanno permesso di accumulare una grande abbondanza d’informazioni, che permettono di tracciare un quadro abbastanza dettagliato delle formazioni geologiche a poche centinaia di metri dalla crosta terrestre. Ulteriori dettagli rilevanti devono essere raccolti durante i processi d’investigazione e selezione del sito. In primo luogo si preferisce utilizzare tecniche non invasive tipo quelle sismiche, le quali hanno enormemente beneficiato dello sviluppo degli hardware e dei software, necessari per la modellazione e l’interpretazione dei segnali registrati.

Le tecniche invasive, come ad esempio la perforazione, sono invece utilizzate con cautela per non compromettere e danneggiare le barriere. Tutte le tecniche geostatistiche sono utilizzate per analizzare la formazione geologica in esame e per fare previsioni sulla distribuzione spaziale di discontinuità quali guasti e fratture.

***Complessivamente, per le esigenze dello smaltimento geologico, le tecniche e i modelli numerici utilizzati nell’investigazione della situazione geologica e idrogeologica di un sito hanno raggiunto un sufficiente grado di maturità.***

Le strategie pensate per selezionare un sito sono indipendenti dalla scelta del particolare tipo di formazione rocciosa e sono essenzialmente due:

- ✓ Si sceglie un solo sito che sembra avere un’elevata probabilità di essere idoneo e si tenta di dimostrare ciò attraverso lo sviluppo dei SAFETY CASES. Una domanda che ci si pone è cosa s’intende per “idoneità” e come sia definita. In semplice istanza, si può affermare che un sito è “idoneo” quando un dato un set di parametri relativi al deposito è conforme con un set di obiettivi predefiniti.
- ✓ Si sottopone un certo numero di potenziali siti a una serie di SAFETY CASES preliminari che hanno lo scopo di eliminare quelli non idonei o quelli meno idonei rispetto ad altri presi in esame.

È possibile sviluppare un catalogo dei criteri per identificare i siti idonei adatti a ospitare un deposito geologico. Questo catalogo è basato su quello delle FEPs (Features, Events, Processes) e tenta di identificare i siti che hanno le FEPs migliori, cercando allo stesso tempo di scartare quelli considerati non idonei.

***Le caratteristiche che rendono le formazioni geologiche idonee al confinamento sono una lunga stabilità, una bassa permeabilità, una sufficiente conduttività termica, una plasticità che limiti i rischi di frattura, una debole solubilità, proprietà meccaniche che facilitino la perforazione e una sensibilità ridotta di tutte queste proprietà alle variazioni delle condizioni ambientali.***

Lo smaltimento geologico rappresenta un sistema di confinamento passivo per cui il deposito può essere considerato "a perdita di memoria" dopo che, per un lungo periodo, di qualche secolo, è stato mantenuto aperto e "reversibile", per quanto riguarda la possibilità di riestrarre e riparare rifiuti confezionati in maniera difettosa. La procedura di selezione di un sito può essere determinata non solo da criteri tecnico-scientifici, ma anche da criteri e fattori sociopolitici, ambientali ed economici quali l'accettazione locale o la disponibilità di idonee formazioni. Dato che i tre maggiori gruppi di formazioni rocciose promettenti sono già stati identificati e che il progetto base di un deposito è già stato sviluppato, le procedure di selezione di un sito potranno probabilmente essere abbreviate per gli Stati Membri entrati di recente in questa fase.

Infine, la selezione di un sito può essere l'unica strategia per minimizzare il rischio di un'intrusione umana dopo il periodo in cui sono garantiti i controlli istituzionali. L'intrusione umana potrebbe avvenire ad esempio per la volontà di estrarre le materie prime quali i minerali, il carbone, il gas e il petrolio oppure per lo sfruttamento dell'energia geotermica. Il criterio che si utilizza per la selezione di un sito è quindi quello di scegliere luoghi in cui l'uomo non abbia i suddetti motivi per effettuare degli scavi in profondità nel sottosuolo.

Inoltre, anche nelle caratteristiche di progetto si tiene conto di ciò e si cerca di operare in modo da minimizzare le conseguenze di un'involontaria intrusione umana.

## **2.5 Criteri generali di sicurezza italiani**

### **2.5.1 Riferimenti**

I criteri di sicurezza e radioprotezione relativi al deposito definitivo dei rifiuti radioattivi italiano, qui di seguito enunciati, fanno diretto riferimento alla normativa nazionale ([6]-[8]), alle normative vigenti nei paesi industriali dotati della normativa più avanzata in campo nucleare ([9]-[14]), nonché alle raccomandazioni emesse dalle più autorevoli organizzazioni internazionali del settore ([15]-[33]). Si può pertanto affermare che su tali criteri esiste un largo e consolidato consenso in ambito internazionale.

### **2.5.2 Fasi operative caratteristiche del deposito definitivo**

Le fasi operative caratteristiche di un deposito definitivo di rifiuti radioattivi sono le seguenti:

- la fase di sviluppo, durante la quale sono svolte le attività di studio preliminare, di selezione del sito, di progettazione dell'impianto, di definizione dei criteri di accettabilità dei rifiuti radioattivi ammessi allo smaltimento;
- la fase di realizzazione dell'impianto, con la preparazione del sito, la costruzione dei fabbricati e degli impianti;
- la fase di esercizio, che comprende la ricezione dei rifiuti e la loro disposizione nel deposito, la gestione del sistema di monitoraggio dei rilasci;
- la fase di chiusura finale, che ha lo scopo di fornire una configurazione definitiva al deposito;

In ciascuna delle fasi si deve dimostrare e confermare la rispondenza del sistema agli obiettivi specifici di sicurezza per la protezione dei lavoratori, della popolazione e dell'ambiente.

### **2.5.3 Obiettivo fondamentale di sicurezza e radioprotezione**

L'obiettivo fondamentale di sicurezza e radioprotezione per la gestione dei rifiuti radioattivi, di tutte le tipologie (II categoria, III categoria, combustibile irraggiato se considerato rifiuto) è il seguente: *In tutte le attività inerenti alla gestione dei rifiuti radioattivi deve essere garantita la protezione dell'uomo e dell'ambiente, a breve e a lungo termine, e non devono essere imposti alle future generazioni carichi non dovuti.*

### **2.5.4 Principi generali di sicurezza e radioprotezione relativi al deposito definitivo**

L'obiettivo fondamentale sopra ricordato, se applicato al deposito definitivo dei rifiuti radioattivi, comporta il rispetto dei principi generali e dei criteri operativi enunciati qui di seguito:

*1° Le dosi aggiuntive, sia individuali che collettive, causate dal deposito definitivo alla popolazione esistente e alle future generazioni, dovranno essere mantenute al livello più basso ragionevolmente ottenibile, tenuto conto dei fattori economici e sociali (Principio ALARA: As Low As Reasonably Achievable). In Italia la dose annualmente assorbita da ogni individuo della popolazione per effetto della radioattività naturale è mediamente di 2,4 (mSv/anno). La dose causata dal deposito definitivo deve rimanere confinata a una piccola frazione della dose dovuta alla radioattività naturale a cui si va ad aggiungere (tipicamente 0,01 ÷ 0,1 mSv/anno rispetto a 2,4 mSv/anno, ossia tra lo 0,4% e il 4% della dose dovuta al fondo naturale).*

*2° Il deposito definitivo dei rifiuti radioattivi deve garantire la protezione dell'ambiente.*

*3° Il grado di isolamento dei rifiuti radioattivi deve essere tale che non possano essere previsti in futuro rischi per la salute dell'uomo, o conseguenze per l'ambiente, che oggi non sarebbero ritenuti accettabili.*

*4° La generazione che ha usufruito dei benefici delle attività che hanno prodotto i rifiuti radioattivi deve risolvere la problematica del deposito definitivo di tali rifiuti con i più elevati standard di sicurezza disponibili, in modo che nessun carico indebito debba essere trasferito alle future generazioni.*

*5° Fino al completamento della fase di controllo istituzionale, deve essere possibile il recupero dei rifiuti dal deposito nel sito di smaltimento, garantendo ai lavoratori, alla attuale generazione e a quelle future, nonché all'ambiente, le medesime condizioni di protezione di quelle della fase di esercizio.*

6° Le informazioni essenziali relative al deposito definitivo devono essere conservate anche successivamente alla fase di controllo istituzionale, al fine di evitare il rischio di indebite intrusioni o di improprie riutilizzazioni del sito.

Tali principi e criteri sono applicabili sia per i rifiuti di II categoria che per quelli di III categoria anche se alcuni di essi sono particolarmente specifici, come ad esempio:

- il “controllo istituzionale” che si effettua sui depositi ingegneristici per i rifiuti di II categoria dopo la chiusura definitiva allo scopo di verificare la tenuta del sistema di confinamento e di assicurare la protezione contro le intrusioni;
- il controllo di sottocriticità per i rifiuti di III categoria contenenti materie fissili.

### **2.5.5 Criteri operativi di sicurezza e radioprotezione**

Per l'applicazione dei suddetti principi generali, è necessario che siano rispettati i seguenti criteri operativi di sicurezza e radioprotezione:

*A. La ricettività radiologica del sito deve essere adeguata a consentire nelle condizioni di massima sicurezza lo smaltimento dell'intero inventario nazionale dei rifiuti radioattivi.*

*B. Nelle fasi di esercizio, chiusura e controllo istituzionale del deposito definitivo, la dose per i lavoratori e per la popolazione deve essere mantenuta entro i vincoli previsti dalla normativa vigente, nel rispetto dei seguenti obiettivi di progetto:*

*Gruppo critico della popolazione:*

- *In condizioni normali: 10  $\mu$ Sv/anno*
- *In condizioni incidentali: 1 mSv/anno*

*Lavoratori:*

- *In condizioni normali: 5 mSv/anno*
- *In condizioni incidentali: 20 mSv/anno*

Il “gruppo critico” è quello che include gli individui della popolazione che, sulla base degli scenari di potenziale rilascio dei radionuclidi dal deposito, sono più direttamente soggetti a ricevere dosi aggiuntive in quantità più significativa.

*C. Nel periodo successivo alla fase di controllo istituzionale, per qualsiasi arco temporale considerato, la dose efficace ricevuta dall'individuo appartenente al gruppo critico<sup>10</sup> della popolazione non deve eccedere:*

- *per condizioni di normale evoluzione: 10  $\mu$ Sv/anno*
- *per scenari anomali, associati al verificarsi di eventi e processi improbabili: 100  $\mu$ Sv/anno*

*D. La sicurezza a lungo termine del deposito definitivo deve essere garantita da un sistema di barriere multiple del quale fanno parte la matrice e il contenitore del rifiuto radioattivo, le varie barriere ingegneristiche e le barriere assicurate dalle caratteristiche naturali del sito.*

*E. Il deposito per rifiuti radioattivi deve essere progettato in modo tale che i rifiuti contenenti materie fissili siano sistemati in modo tale da garantire una configurazione intrinsecamente sottocritica.*

*F. La rispondenza dell'intero sistema di deposito con gli obiettivi di sicurezza e radioprotezione deve essere dimostrata per mezzo di analisi di sicurezza specialistiche ("safety assessment") basate su modelli il più possibile validati.*

*G. Il deposito definitivo deve garantire la conformità con i requisiti di tipo non radiologico per i rifiuti che presentano anche un rischio di natura chimico-biologica e che rientrano quindi nella categoria dei rifiuti tossico-nocivi.*

*H. Si deve prevedere un periodo di controllo istituzionale sul deposito, successivo alla sua chiusura, per controllare eventuali mancanze del sistema di confinamento e per assicurare la protezione contro le intrusioni.*

*I. Deve essere predisposta una opportuna raccolta di selezionate informazioni relative al deposito definitivo, incluse localizzazione, progetto e rifiuti in esso smaltiti, da conservare su supporto opportuno, in modo tale da poter mantenere la memoria storica del deposito stesso anche dopo il termine della fase di controllo istituzionale.*

#### **2.5.6 Considerazioni sui limiti di dose efficace**

Il limite di dose efficace per il lungo termine di 10  $\mu\text{Sv}/\text{anno}$ , citato nel paragrafo precedente (criteri B e C), è imposto dall'attuale normativa italiana come limite al disotto del quale si può ritenere che la pratica che determina l'esposizione non abbia rilevanza radiologica (D.L. 26 maggio 2000, n. 241, Allegato 1, "Criteri di non rilevanza radiologica delle pratiche", in applicazione della Direttiva 96/29 Euratom, Allegato I, paragrafo 3). Il suddetto limite è tuttavia inferiore a quello assunto come riferimento per la realizzazione e la gestione dei depositi definitivi per i rifiuti radioattivi di bassa e media attività già operativi in ambito internazionale. In aggiunta, la Commissione Internazionale per la Protezione Radiologica (ICRP), l'organismo internazionale più autorevole e rispettato nel settore specifico, nella sue pubblicazioni N. 77 (1997) e N. 81 (1998) relative ai depositi definitivi per i rifiuti radioattivi, stabilisce tale limite a 300  $\mu\text{Sv}/\text{anno}$ . Identica valutazione è riportata nella guida IAEA 2003 "Geological Disposal of Radioactive Waste – Safety Requirements". Il rispetto integrale e incondizionato del limite di 10  $\mu\text{Sv}/\text{anno}$  previsto dall'attuale normativa italiana rischia pertanto di introdurre vincoli troppo restrittivi per il deposito definitivo nazionale, in considerazione della quantità e della qualità dei rifiuti radioattivi ad esso destinati. Si ritiene pertanto di mantenere il limite di dose di 10  $\mu\text{Sv}/\text{anno}$  per gli scenari di normale evoluzione, elevando tale limite a 100  $\mu\text{Sv}/\text{anno}$  per scenari di tipo anomalo o associati al verificarsi di eventi e processi con probabilità di accadimento più ridotta.

## BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 2.

- [1] Preview Document “IGD-TP Strategic Research Agenda (SRA)”, Version November 8, 2010;
- [2] JRC Reference Reports, “Geological Disposal of Radioactive Waste: Moving Towards Implementation”. W.E Falck and K.-F. Nilsson 2009;
- [3] Symposium Proceedings Paris, France 23-25 January 2007 Organised by the OECD Nuclear Energy Agency (NEA) of the Organisation for Economic Co-operation and Development (OECD) in co-operation with the European Commission (EC) and the International Atomic Energy Agency (IAEA): “Safety Cases for Deep Geological Disposal of Radioactive Waste: Where Do We Stand?”;
- [4] PAMINA (Performance Assessment Methodologies in Application to Guide the Development of the Safety Case), contract number FP6-036404: “GENERAL CONCEPTS OF SUPPORTING THE SAFETY CASE BY MEANS OF SAFETY AND PERFORMANCE INDICATORS” DELIVERABLE (D-N°:3.4.1),23/07/2008, authors Dirk-A. Becker, Jens Wolf.
- [5] PAMINA (Performance Assessment Methodologies in Application to Guide the Development of the Safety Case), contract number FP6-036404:“SAFETY INDICATORS AND PERFORMANCE INDICATORS” DELIVERABLE (D-N°:3.4.2), 30/09/2009, authors D.-A. Becker (Editor), J.L. Cormenzana, A. Delos, L. Duro, J. Grupa, J. Hart, J. Landa, J. Marivoet, J. Orzechowski, T.-J. Schröder, A. Vokal, J. Weber, E.Weetjens, J. Wolf.
- [6] Decreto Legislativo 17 marzo 1995, n. 230 – attuazione delle direttive EURATOM 80/836, 84/467, 84/466, 89/618, 90/641 e 92/3 in materia di radiazioni ionizzanti – Gazzetta Ufficiale della Repubblica Italiana – Roma, 13 giugno 1995.
- [7] Decreto Legislativo 26 maggio 2000, n. 241 – attuazione della direttiva 96/29/EURATOM in materia di protezione sanitaria della popolazione e dei lavoratori contro i rischi derivanti dalle radiazioni ionizzanti – Gazzetta Ufficiale della Repubblica Italiana – Roma – 31 agosto 2000.
- [8] ENEA DISP - Guida Tecnica 26 – Gestione dei rifiuti radioattivi – ENEA DISP – Roma,1987.
- [9] 10 CFR Ch. I PART 61 – Licensing requirements for land disposal of radioactive waste –U.S. Nuclear Regulatory Commission – 1-1-98 Edition (*normative americana*).
- [10]REGLE N. I-2 - Conception Générale et PrincipesGénéraux – Objectives de sureté et bases de conception pour les centres de surface destinés au stockage à long terme des déchets radioactifs solides de période courte ou moyenne et de faible ou moyenne activité massique – 19 juin 1984 (*normative francese*).
- [11] RFS-III.2.f – Definition of goals to be set in the engineering and works phases for final disposalof radioactive waste in deep geologic formations, in order to ensure safety after theoperational life ofthe repository - June 1991 – (*normative francese*).
- [12] GUIDELINE HSK-R-21 – Protection objectives for the disposal of radioactive waste – Swiss Federal Nuclear Safety Inspectorate (*normative svizzera*).
- [13] Environment Agency – Radioactive Substances Act 1993 – Disposal facilities on land for lowand intermediate level radioactive wastes: Guidance on requirements for authorization (*normative inglese*)
- [14] AECB - Regulatory Document R-104 - Regulatory objectives, requirements and guidelines for the disposal of radioactive wastes – long term aspects – June 1987 (*normative canadese*).

- [15] IAEA – Safety Standard Series - Siting of Near Surface Disposal Facilities, IAEA safety Series No. 111-G-3.1 -IAEA, Vienna, 1994.
- [16] IAEA - Safety Standard Series – Near Surface Disposal of Radioactive Waste – REQUIREMENTS – No. WS-R-1 – IAEA, Vienna, 1999.
- [17] IAEA - Safety Standard Series – Safety Assessment for Near Surface Disposal of Radioactive Waste – SAFETY GUIDE – No. WS-G-1.1 – IAEA, Vienna, 1999.
- [18] IAEA – Safety Standard Series - The Principles of Radioactive Waste Management, Safety Series No. 111-F, IAEA, Vienna, 1995.
- [19] IAEA – Technical Report Series no. 412 – Scientific and Technical Basis for the Near Surface Disposal of Low and Intermediate Level Waste – IAEA, Vienna, December 2002.
- [20] IAEA – Safety Series N° 99 – Safety Principles and Technical Criteria for the Underground Disposal of High Level Radioactive Waste – IAEA, Vienna, 1989
- [21] IAEA – Safety Series N° 111-G-4.1 – Siting of Geological Disposal Facilities – IAEA, Vienna, 1994
- [22] IAEA – TECDOC 1187 – Retrievability of high level waste and spent nuclear fuels – IAEA, Vienna, 2000
- [23] IAEA – TECDOC 1282 – Issues relating to safety standards on the geological disposal of radioactive waste – IAEA, Vienna, 2002
- [24] IAEA – DS 154 – Geological disposal of radioactive waste – Draft Safety Requirements –IAEA, Vienna, 2003
- [25] ICRP 46 – Radiation Protection Principles for the Disposal of Solid Radioactive Waste – Annals of the ICRP – Volume 15/4 – Pergamon Press, 1985.
- [26] ICRP 60 – Recommendations of the International Commission on Radiological Protection – Annals of the ICRP – Volume 21 N. 1-3, Pergamon Press, 1991.
- [27] ICRP 77 – Radiological Protection Policy for the Disposal of Radioactive Waste – Annals of the ICRP – Volume 27 – Pergamon Press, 1997.
- [28] ICRP 81 – Radiation Protection Recommendations as applied to the Disposal of Long-lived Solid Radioactive waste - Annals of the ICRP – Volume 28/4 – Pergamon Press, 1998.
- [29] NEA/OECD - Reversibility and Retrievability in Disposal of Radioactive Waste: Reflections at the International Level – Paris, 2001.
- [30] EUR 14598 IT – Evacuazione dei rifiuti radioattivi: criteri raccomandati per un sito di deposito– Serie Euradwaste n.6 – CEE, Bruxelles, 1992.
- [31] 1999/829 EURATOM – Raccomandazione della Commissione del 6 Dicembre 1999 sull'applicazione dell'articolo 37 del Trattato EURATOM per lo smaltimento dei rifiuti radioattivi.
- [32] Proceedings of the International Symposium on Radioactive Waste Disposal : “Health and Environmental Criteria and Standards” – Stockholm, 1998.
- [33] Proceedings of the International Conference on “Record Management and Long Term Preservation and Retrieval of Information regarding Radioactive Waste” – Roma, Gennaio 2003.

### 3. LA SITUAZIONE MONDIALE DEI DEPOSITI GEOLOGICI

I depositi in profondità sono ancora nella fase di studio o di realizzazione pilota nei casi più avanzati. Secondo le attuali previsioni, il primo deposito geologico di tipo commerciale dovrebbe essere quello finlandese, la cui entrata in operazione è programmata per il 2020, seguito da quello svedese nel 2025. In attesa di disporre di un sito di smaltimento geologico, i paesi con importanti produzioni di combustibile irraggiato o rifiuti vetrificati si sono attrezzati con sistemi impiantistici adatti allo stoccaggio per periodi dell'ordine di qualche decennio ed oltre.

#### **Belgio**

Un rapporto sulla necessità di un Deposito Geologico è stato presentato nel 2001 da ONDRAF (*Organism National des déchets radioactifs et des matières fissiles enrichies*). Iniziati nel 1984, sono tuttora in corso accertamenti su uno strato di argilla nella regione di Mol presso la cittadina di Boom a 200 metri di profondità.

#### **Canada**

Ad aprile 2011, dopo 4 anni di studi e ricerche, l'OPG (*Ontario Power Generation*) ha presentato all'Autorità un progetto di Deposito Geologico per i rifiuti a bassa e media attività da costruire nella Contea di Bruce, in Ontario. Il progetto prevede la localizzazione del deposito a 680 metri di profondità in uno strato di roccia calcarea a bassa permeabilità<sup>1</sup>. I lavori per la costruzione e preparazione del deposito potrebbero cominciare nel 2013, con una previsione di accesso per i primi contenitori non precedente al 2018/2020. Non ci sono riferimenti sui costi.

#### **Finlandia**

Nel 2004 sono stati avviati a Olkiluoto, sulla costa sudoccidentale del Paese, gli scavi per la costruzione del primo deposito geologico al mondo (denominato Onkalo, cava) per lo smaltimento definitivo di scorie radioattive. I lavori - gestiti da PosivaOy - proseguiranno fino al 2020, quando le gallerie scavate nella bentonite (argilla) a circa 450 metri di profondità cominceranno ad accogliere, per 100 anni, i contenitori, prima della chiusura definitiva del sito. Il costo finale per la progettazione, costruzione (650 milioni), messa in opera (2,1 miliardi) e chiusura (250 milioni) del Deposito ammonterà a 3 miliardi di euro.<sup>2</sup>

#### **Francia**

In seguito all'autorizzazione governativa dell'agosto 1999, l'ANDRA ha avviato la costruzione di un laboratorio sotterraneo in una formazione di argilla a 500 metri di profondità, nella località di Bure, in Lorena, regione nell'est del Paese, per ricerche connesse alla fattibilità di un deposito geologico reversibile. Nel 2005 è stato presentato un rapporto che indicava le condizioni geologiche del sito come "favorevoli" per lo stoccaggio di scorie ad alta attività<sup>3</sup> e nel 2006 l'Andra è stata incaricata della localizzazione del sito per il Progetto Cigéo (*Centre industriel de stockage*

---

<sup>1</sup><http://www.opg.com/power/nuclear/waste/dgr/index.asp>

<sup>2</sup> [http://www.posiva.fi/en/final\\_disposal](http://www.posiva.fi/en/final_disposal)

<sup>3</sup><http://www.andra.fr/download/site-principal/document/editions/265.pdf>



*géologique*). Il programma, dopo la localizzazione ed il rilascio delle autorizzazioni governative e locali, prevede l'inizio dei lavori nel 2017 e l'effettiva messa in esercizio del sito nel 2025<sup>4</sup>.

### **Germania**

**Asse II** (distretto di Wolfenbüttel, Sud-Est della Bassa Sassonia). Il deposito fu ricavato in una miniera di sale, utilizzata dal 1900 al 1964, che raggiunge una profondità di 750 metri. Nel 1968, dopo pochi anni di studi, cominciò ufficialmente lo stoccaggio di rifiuti. Negli anni, benché si ritenga di norma che le miniere di sale siano in contesti geologici stabili e impermeabili, si è avuto un deciso aumento delle infiltrazioni d'acqua, andando ad intaccare la tenuta di alcuni contenitori e causando perdite di cesio, già a partire dal 1988. Nel 1995 sono cominciati gli studi per la chiusura e la messa in sicurezza definitiva del sito e, al riguardo, nel 2008 l'Esecutivo Federale ha imposto un cambio nella gestione del Deposito, affidandola a BfS (*Bundesamt für Strahlenschutz*), l'Autorità per la Radioprotezione.

**Morsleben** (distretto di Börde nella Sassonia-Anhalt). Deposito aperto dal Governo della Germania dell'Est in una miniera di sale a 525 metri di profondità, con l'obiettivo di liberare il sito di Lohmen nei pressi di Dresda. Localizzato nel 1965, la concessione della licenza temporanea e i primi trasferimenti di materiale a bassa e media attività avvennero tra il 1971 ed il 1973, ma la licenza finale venne assegnata solo nel 1986. In seguito all'unificazione della Germania e al rilevamento del concreto rischio di crollo di alcune pareti della miniera, nel 1998 vennero sospese le attività di deposito e si avviò il processo di chiusura del sito. Non sono disponibili dati sul costo totale dall'avvio delle operazioni di stoccaggio, ma il Governo federale ha stimato in 2,2 miliardi di Euro la spesa per la messa in sicurezza e chiusura definitiva.

**Gorleben** (distretto di Lüchow-Dannenberg, Nord-Est della Bassa Sassonia). La miniera di sale venne scelta nel 1977 dall'Esecutivo della Bassa Sassonia come sito per la creazione di un Deposito Geologico per rifiuti radioattivi di terza categoria. Gli studi in superficie e nel sottosuolo, fino a 850 metri di profondità, si sono protratti dal 1979 al 1996, senza giungere, anche a causa delle prime notizie di contaminazione provenienti da Asse II, ad un'effettiva messa in opera del Deposito. Al momento, dopo una stima di spesa di 1,5 miliardi di Euro per le ricerche effettuate tra il 1979 ed il 2000, le attività di esplorazione sono sospese.<sup>5</sup>

**Konrad** (Salzgitter, Sud-Est della Bassa Sassonia). E' una vecchia miniera di minerali di ferro sfruttata tra il 1867 e il 1975 e situata ad una profondità tra gli 800 e i 1300 metri. Proposta come Deposito Geologico per rifiuti a bassa e media attività, gli studi preparatori cominciarono nel 1976, la progettazione nel 1982 e la licenza per lo stoccaggio di 300mila m<sup>3</sup> di materiali venne rilasciata nel 2002. Successivamente, numerosi ricorsi di cittadini e associazioni hanno bloccato l'effettiva messa in opera del sito. Per quanto risulta, lo stoccaggio dovrebbe cominciare nel 2013, in 9 diversi ambienti situati a diverse profondità fino a 1300 metri. I costi dall'inizio delle operazioni di localizzazione, conversione e progettazione del sito sono nell'ordine dei 2 miliardi di Euro.

---

<sup>4</sup><http://www.andra.fr/download/site-principal/document/editions/339.pdf>

<sup>5</sup><http://www.spiegel.de/international/germany/0,1518,577018,00.html>

## Gran Bretagna

Nel 2010, la **NDA** (Nuclear Decommissioning Authority) ha presentato delle proposte per la costruzione di un Deposito Geologico Nazionale operativo a partire dal 2040 e che possa ospitare i rifiuti radioattivi che al momento sono conservati in 34 differenti siti sul territorio britannico. Sono stati stimati circa 30 anni prima dell'effettiva messa in opera del Deposito (studi preparatori, ricerche in loco, costruzione), altri 90 anni di operatività fino alla chiusura e messa in sicurezza del sito, la quale dovrebbe avvenire in un periodo di 10 anni, intorno al 2140. Al momento, soltanto due municipi nella contea di Cumbria, nel Nord-Ovest del paese nei pressi di Sellafield, hanno avanzato la candidatura per ospitare il sito. Nel suo rapporto, la NDA ha previsto un costo definitivo intorno ai 5 milioni di Euro.<sup>6</sup>

## Stati Uniti d'America

**Yucca Mountain.** Con l'amministrazione Obama, dopo l'approvazione del Congresso nel 2002, è stato definitivamente abbandonato il progetto di deposito geologico reversibile posto a 300 metri di profondità sotto la Yucca Mountain (una montagna di tufo alta 2.000 metri) in Nevada, a circa 140 km da Las Vegas, costruito dopo un percorso di quasi 30 anni (primi studi nel 1978, localizzazione nel 1987). Il deposito di Yucca Mountain era stato progettato per essere a tenuta d'aria e a prova di infiltrazione per 10.000 anni e avrebbe dovuto accogliere, a partire già dal 1998, 77.000 tonnellate di scorie. Al momento non è stata ancora trovata una destinazione alternativa e le scorie continueranno ad accumularsi nei 121 depositi esistenti (non sotterranei) dislocati in 39 stati. Il deposito aveva ottenuto una licenza dal NRC per 70 anni di esercizio, in previsione di un probabile riutilizzo futuro delle scorie stesse<sup>7</sup>.

**Waste Isolation Pilot Plant, o WIPP.** E' un deposito geologico per lo stoccaggio e la conservazione di scorie transuraniche generate dalla ricerca e dalla produzione di armi nucleari, collocato a 42 km da Carlsbad nel New Mexico. Autorizzata con atto del Congresso nel 1979, la costruzione del sito è avvenuta nel corso degli anni Ottanta e la sua messa in opera con relativo trasferimento e stoccaggio dei materiali radioattivi - dopo la concessione della licenza da parte dell'EPA (Environmental Protection Agency) - è cominciata nel marzo 1999. I contenitori sono collocati in ambienti scavati a 650 metri di profondità in un deposito di sale stratificato, geologicamente stabile negli ultimi 250 milioni di anni.<sup>8</sup> Sebbene i parametri di calcolo siano controversi, il costo totale della struttura fino al 2070 dovrebbe ammontare intorno ai 9 miliardi di dollari (6,5 miliardi di Euro).

## Svezia

Nel 1993 SKB ha cominciato gli studi di fattibilità di un Deposito finale per il combustibile irraggiato in 8 diversi siti: nel giugno 2009 si è giunti alla scelta definitiva di Forsmark – 150 km a Nord di

---

<sup>6</sup><http://www.nda.gov.uk/documents/upload/Geological-Disposal-Steps-Towards-Implementation-Executive-Summary-March-2010.pdf>

<sup>7</sup><http://www.nei.org/resourcesandstats/documentlibrary/nuclearwastedisposal/factsheet/yucca-mountainmyths-and-facts-opponents-distort-or-ignore-research/>

<sup>8</sup>[http://www.wipp.energy.gov/fctshts/Why\\_WIPP.pdf](http://www.wipp.energy.gov/fctshts/Why_WIPP.pdf)

Stoccolma - nella municipalità di Östhammar<sup>9</sup>. A marzo 2011, SKB ha inoltrato all'Autorità (SSM) la richiesta per il rilascio della licenza di inizio attività a Forsmark, prevedendo l'avvio della costruzione nel 2015. Il deposito sarà costruito nel granito a 500 metri di profondità e dovrà ospitare 12mila tonnellate di combustibile irraggiato<sup>10</sup>. Si prevede che il periodo di esercizio del sito tra costruzione, attività di stoccaggio e chiusura del sito sarà nell'ordine dei 70 anni: i primi contenitori arriveranno nel 2025, gli ultimi 50 anni dopo e, successivamente, saranno necessari almeno altri 10 anni per la chiusura e messa in sicurezza definitiva del sito. Il costo finale dovrebbe attestarsi intorno ai 24 miliardi di corone<sup>11</sup> (2,6 miliardi di Euro).

### **Svizzera**

Le sue specificità geologiche impongono alla Svizzera una soluzione diversa da quella scandinava: i tecnici hanno spostato l'attenzione sull'argilla opalina, uno strato omogeneo di roccia sedimentaria stabile, non soggetto a terremoti e attività tettonica, che si estende sotto la regione del Weinland zurighese. Nel 2002 è stato presentato alle autorità nazionali il piano di fattibilità per la costruzione del deposito in quell'area, senza indicazioni precise sul sito, piano poi approvato nel corso del 2006 dal Consiglio Federale. Il sito specifico sarà scelto in seguito. Sono in via di sperimentazione altre barriere nei laboratori di Grimsel e Mont Terri.

Vengono di seguito riportate le descrizioni schematiche e sintetiche delle diverse soluzioni progettuali di depositi geologici profondi per lo smaltimento definitivo di rifiuti radioattivi, ipotizzate o in fase di avanzata fase di progetto dalle principali organizzazioni internazionali responsabili della loro gestione [1].

### **3.1 Il deposito geologico proposto in Belgio**

Il rifiuto considerato è il combustibile esaurito d'ossido d'uranio  $UO_2$ , derivante dalle 7 centrali nucleari in esercizio di tipo PWR (Pressurized Water Reactor). La vita utile prevista per ogni reattore è di 40 anni e la produzione totale proveniente da fonte nucleare ammonta a 5,5 GW. Questi dati si traducono in una quantità di combustibile esaurito pari a circa 4000 tonnellate (di cui circa 700 sono state riprocessate) con un burn-up di 50 GWd/t.

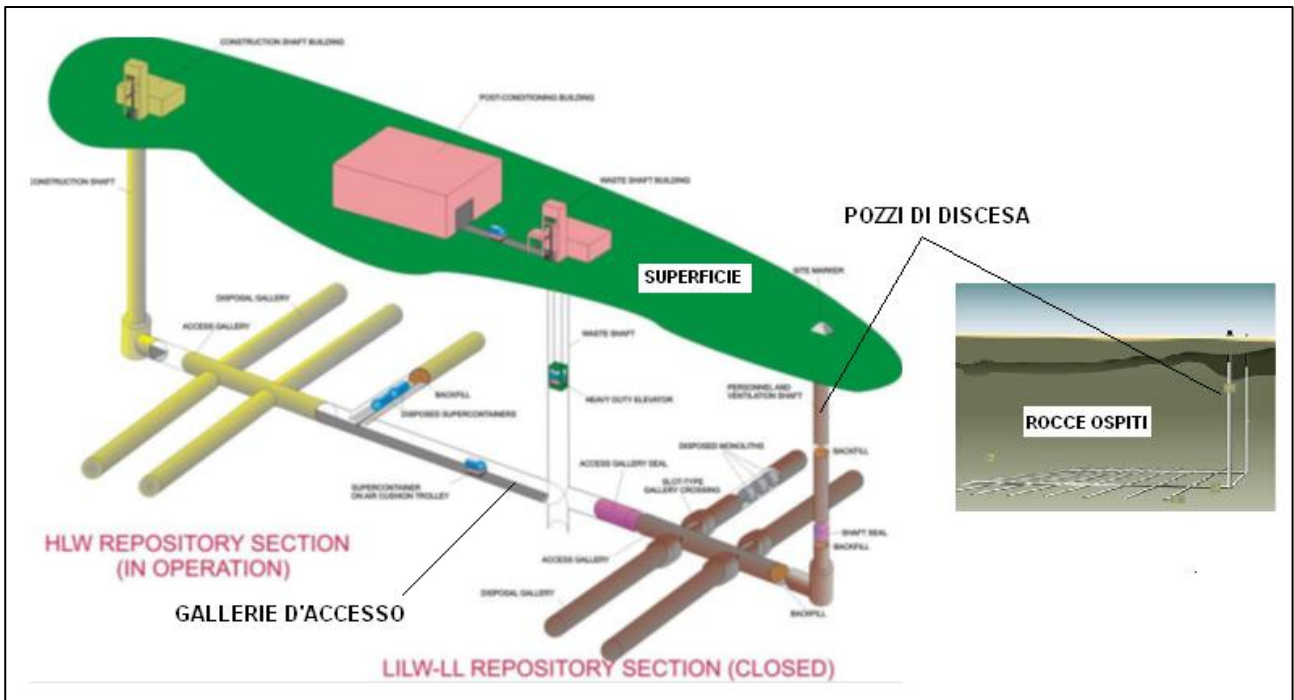
Il sistema di smaltimento geologico preso in considerazione (*Fig. 3.1*) consiste in una serie di gallerie rettilinee in cui saranno disposti i contenitori dei rifiuti. L'accesso alle gallerie di smaltimento avverrà mediante la galleria d'accesso, situata in posizione centrale e collegata alla superficie mediante almeno due pozzi (*shafts*) e una rampa. Poiché l'argilla utilizzata è di tipo plastico, è necessario un rivestimento di calcestruzzo per evitare la convergenza delle pareti delle gallerie.

---

<sup>9</sup><http://www.skb.se/483a0bca-f2bd-4299-a3e7-f885ec0ad85b.fodoc>

<sup>10</sup>[http://www.skb.se/Templates/Standard\\_\\_\\_28848.aspx](http://www.skb.se/Templates/Standard___28848.aspx)

<sup>11</sup>[http://www.skb.se/Templates/Standard\\_\\_\\_26444.aspx](http://www.skb.se/Templates/Standard___26444.aspx)



**Fig. 3.1: Sistema di smaltimento geologico considerato in Belgio.**

Un componente chiave del sistema di barriere ingegneristiche, utilizzato in questa configurazione di deposito, è il cosiddetto “**supercontenitore**”, che ha la funzione di contenere il combustibile radioattivo esaurito ed evitare fughe di radionuclidi per un periodo stabilito (vd. Fig. 3.2).

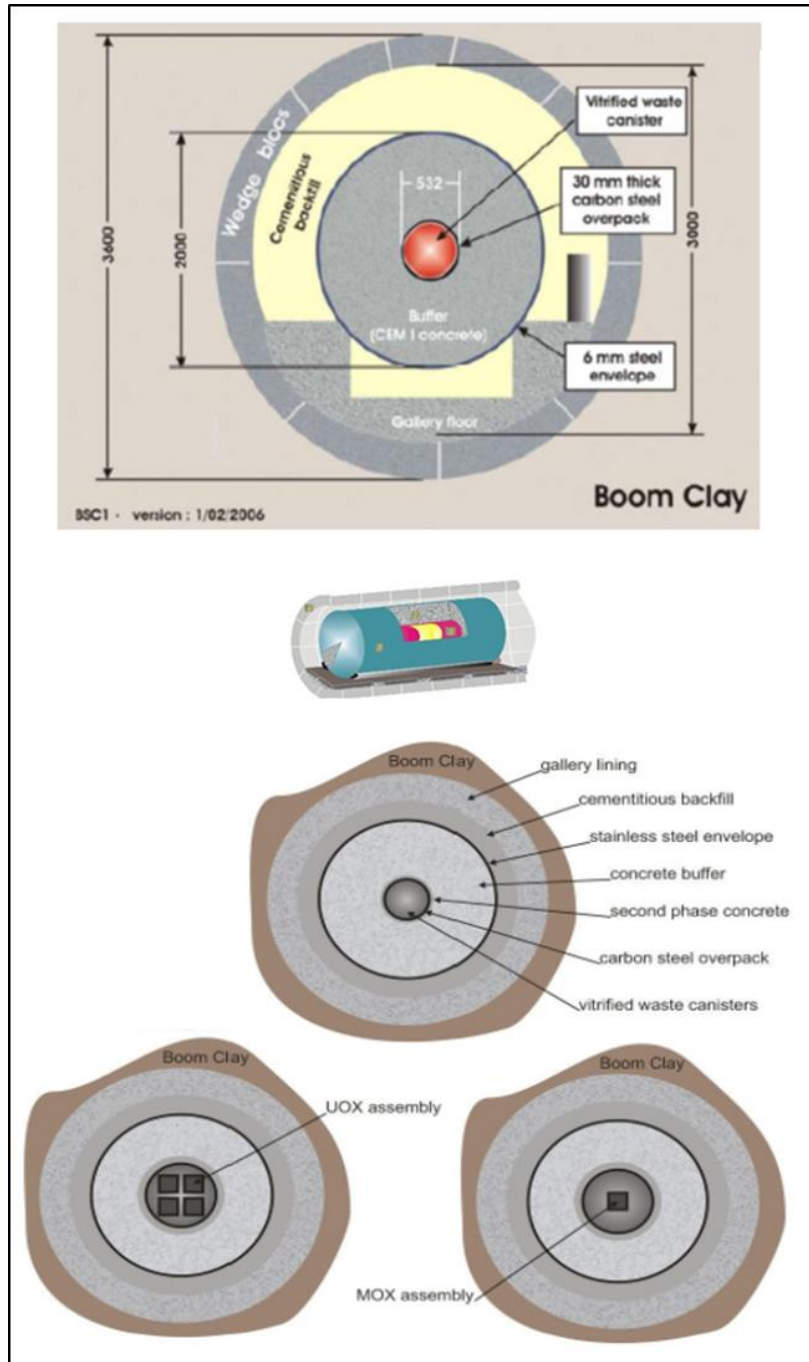
Ogni “supercontenitore” può contenere quattro elementi di combustibile UOX esaurito, oppure uno di MOX, all’interno di un sovra imballaggio spesso 30 mm di acciaio al carbonio. Tale sovra imballaggio è posto in un contenitore prefabbricato di cemento ordinario Portland, con lo scopo di rendere altamente alcalino l’ambiente e abbassare quindi la solubilità dei radionuclidi. Il tutto è infine racchiuso in uno spessore di 6 mm di acciaio inossidabile. La costruzione e l’assemblaggio dei contenitori avvengono in superficie, in modo che siano limitate al minimo le operazioni di movimentazione nel sottosuolo e sia garantita una protezione ottimale per i lavoratori. Le distanze tra i contenitori e tra le gallerie di smaltimento (vd. Fig. 3.3) sono determinate tenendo in considerazione:

- **Criteri termici**, in modo che la temperatura non salga al di sopra di valori ritenuti critici per le proprietà mineralogiche dell’argilla;
- **Compatibilità** delle diverse tipologie di rifiuti.

Per evitare gli effetti dannosi dovuti all’inevitabile crollo delle pareti delle gallerie dopo lunghi periodi, gli spazi vuoti sono riempiti con materiali cementizi.

Nelle analisi e negli studi, lo scenario di evoluzione che si considera è proprio quello che ci si aspetta, ovvero che dopo 5000 anni avvenga la perforazione del sovrinballaggio e l’acqua sotterranea inizi a venire in contatto con i rifiuti radioattivi. A contatto con l’acqua sotterranea, le matrici dei rifiuti inizieranno a corrodersi e di conseguenza avverrà un rilascio di radionuclidi. Le ipotesi che si fanno per sviluppare dei modelli riguardo alla corrosione sono:

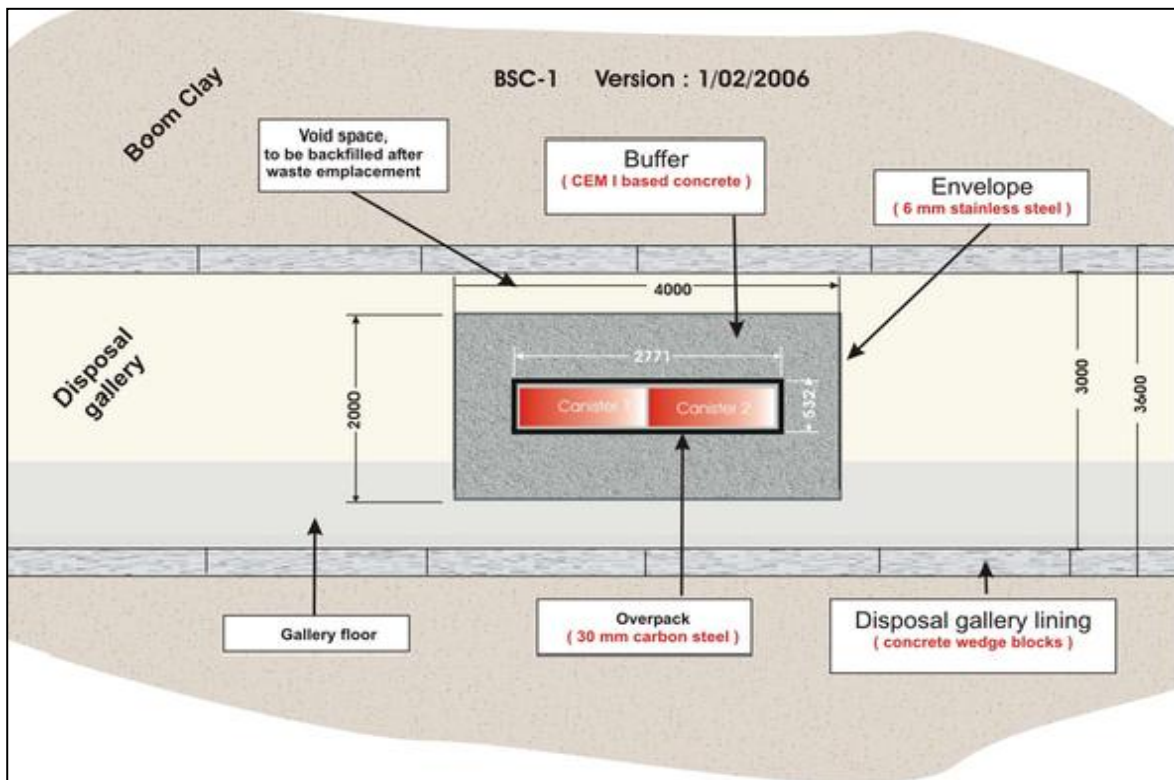
- Velocità di corrosione costante per 10000 anni per i rivestimenti del combustibile e per le parti metalliche strutturali;
- Velocità di corrosione costante per 1 milione di anni per la matrice dell'ossido di uranio  $UO_2$ .



**Fig. 3.2: Struttura del supercontenitore**

La barriera principale che garantisce l'isolamento a lungo termine dei radionuclidi e la sicurezza del sistema di smaltimento è fornita dallo strato geologico che ospita il deposito, ovvero l'argilla. Questa è la barriera più importante, perché è in grado di rallentare per tempi sufficientemente lunghi la migrazione dei radionuclidi, a partire dal momento in cui le barriere ingegneristiche non sono più efficaci. Poiché l'argilla presenta una conduttività idraulica molto bassa, il trasporto dei

radionuclidi attraverso un suo strato è dovuto essenzialmente alla diffusione molecolare e per sviluppare i modelli di calcolo si assume uno spessore pari a 40 m.



**Fig. 3.3: Supercontenitore all'interno della galleria di smaltimento.**

### 3.2 Il deposito geologico proposto in Francia

Per valutare la fattibilità di un sistema di smaltimento geologico in Francia [2], come inventario dei rifiuti sono stati considerati:

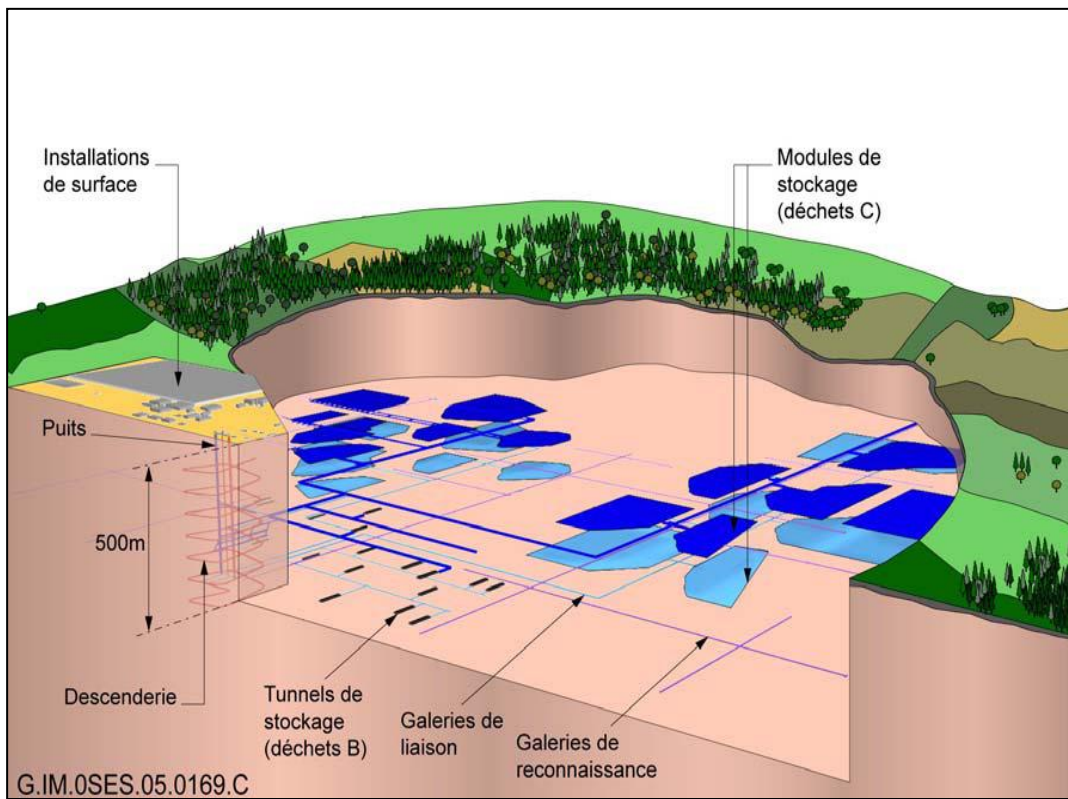
- **ILW-LL** vetrificati: Intermediate Level Waste-Long Lived, detti anche rifiuti di tipo B.
- **HLW-LL** vetrificati: High Level Waste-Long Lived, detti anche rifiuti di tipo C.
- Combustibile esaurito: **UOX, MOX** ovvero ossidi di uranio e ossidi misti.

Le formazioni geologiche per contenere tali rifiuti, oggetto di studio in Francia, sono il granito e l'argilla. In entrambi i casi, la strategia presa in esame è la stessa, ovvero di costruire un deposito realizzato su due livelli, ciascuno dedicato a una tipologia di rifiuti: un livello per i rifiuti di tipo B e un livello per i rifiuti di tipo C e per il combustibile esaurito. Ciascun livello è poi suddiviso in moduli distinti. Questo approccio riduce al minimo le potenziali interazioni tra le diverse categorie di rifiuti, permette una gestione migliore e consente l'applicazione del concetto di "recuperabilità" dei rifiuti, qualora fosse considerato in fase di progetto.

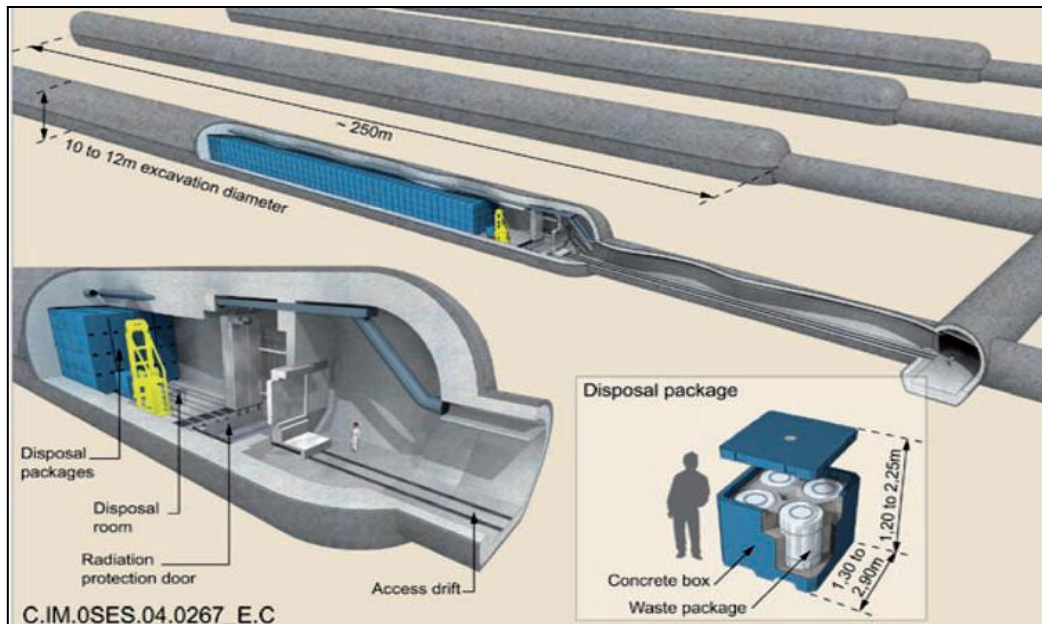
L'accesso alle installazioni sotterranee avviene mediante strutture verticali (shafts) e rampe inclinate, che permettono il trasferimento delle attrezzature, dei materiali, e dei rifiuti dalla superficie alle installazioni sotterranee e viceversa.

### 3.2.1 Modulo per rifiuti ILW-LL

Il concetto di smaltimento per *i rifiuti a media attività e lunga vita* (vd. figg. 3.4 e 3.5) si basa su “pacchetti” di forma parallelepipedica collocati in grandi tunnel di smaltimento orizzontali senza uscita, dalle seguenti dimensioni: diametro di scavo di circa 10 m e lunghezza di circa 250 m. Ogni “pacchetto” consiste in un blocco di cemento contenente all’interno uno o più contenitori di rifiuti e tutti i “pacchetti” sono impilati su più livelli in appositi spazi rettangolari di smaltimento (disposal room). All’entrata di ogni galleria di smaltimento è presente una zona (radiation protection door) che permette di effettuare il trasferimento dei “pacchetti” radioattivi in modo che gli operatori non entrino in contatto con la zona irradiata, cioè con la “disposal room”. Il trasporto dei “disposal packages” avviene utilizzando veicoli elettrici, preferiti a quelli diesel per ridurre il rischio d’incendi.



**Fig. 3.4: Sistema di smaltimento su due livelli proposto in Francia**



**Fig. 3.5: Modulo per lo smaltimento dei rifiuti a media attività e lunga vita (ILW-LL)**

### 3.2.2 Modulo per rifiuti HLW-LL vetrificati o combustibile esaurito

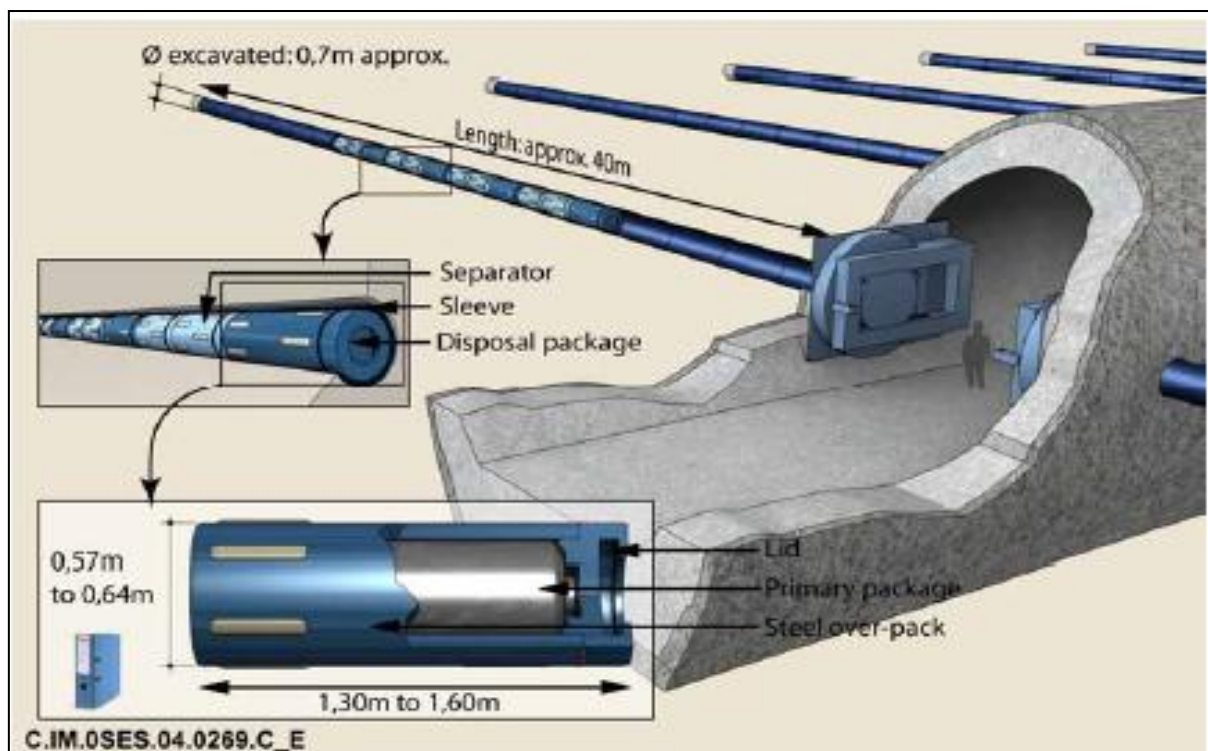
I concetti per lo smaltimento dei rifiuti ad alta attività vetrificati (rifiuti di tipo C, fig.3.6) e del combustibile esaurito, si basano sull'utilizzo di contenitori di smaltimento cilindrici in acciaio al carbonio, progettati per avere una vita di 1,000 anni per i rifiuti HLW-LL vetrificati e 10,000 anni per il combustibile esaurito. Questi contenitori sono collocati all'interno di celle di smaltimento rivestite d'acciaio, dalle seguenti dimensioni: diametro che può variare da 0,7 m a 2,5 m e lunghezza di 30 o 40 m.

Attualmente sono in studio due alternative concettuali, ovvero:

- 1) Presenza di materiale di riempimento argilloso interposto tra il rivestimento d'acciaio e la roccia;
- 2) Assenza di materiale di riempimento.

Un approccio flessibile che è in fase di studio è quello che prevede la possibilità di ritardare la sigillatura della cella di smaltimento dei rifiuti. Tuttavia, per evitare il rinnovo d'aria, che accelererebbe il processo di corrosione dei contenitori, è possibile effettuare una chiusura temporanea con un tappo rimovibile. Una volta che si decide di sigillare la cella, il tappo è rimosso ed è sostituito da una colata di cemento.





**Fig. 3.6: Modulo per smaltimento dei rifiuti ad alta attività e lunga vita (HLW-LL) e (SF).**

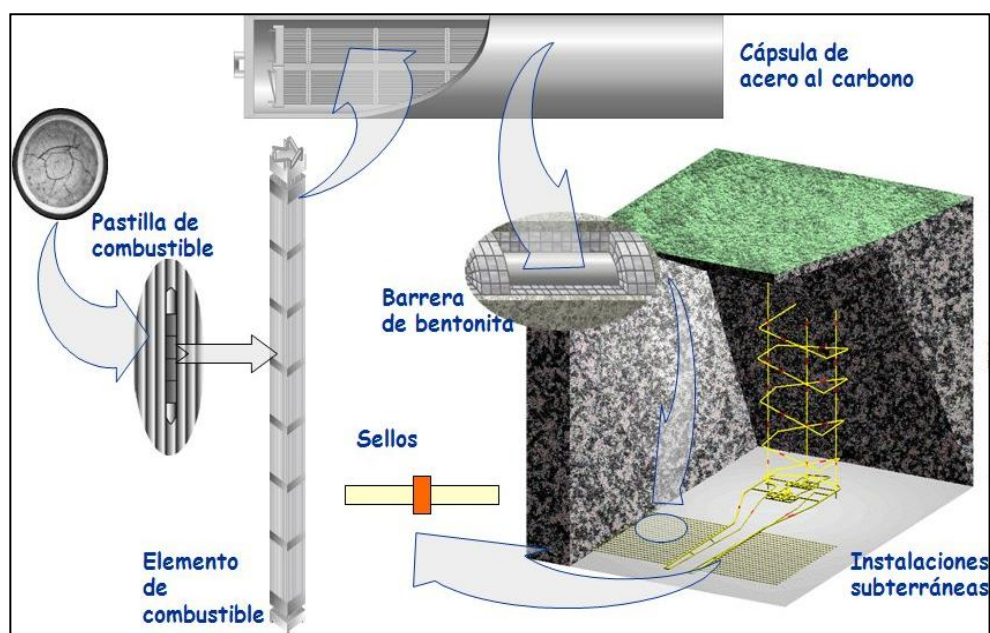
### 3.3 Il deposito geologico proposto in Spagna

Il concetto promosso da ENRESA, l'Agencia di Gestione dei rifiuti radioattivi Spagnola, si basa sul concetto di smaltimento del combustibile esaurito in contenitori di acciaio al carbonio, collocati all'interno di gallerie orizzontali e circondati da blocchi di bentonite. L'accesso al deposito avviene per mezzo di gallerie principali che intersecano perpendicolarmente le gallerie di smaltimento e che s'incontrano in un'area centrale, comprendente le infrastrutture sotterranee richieste. La comunicazione tra la superficie e l'area centrale sotterranea avviene per mezzo di tre pozzi (shafts) e una rampa. Le gallerie di smaltimento si trovano interposte tra due strati di argilla: uno a 260 m di profondità e uno, spesso 280m, al di sotto del livello del deposito. Lo strato al di sopra del livello del deposito è costituito da 100 m di argilla, 110 m di marne e una falda acquifera spessa 50 m. I contenitori di acciaio al carbonio misurano circa 4,5 m in lunghezza, 90 cm in diametro e 10 cm in spessore e contengono in una configurazione subcritica:

- 4 elementi di combustibile di un PWR; oppure
- 12 elementi di combustibile di un BWR

I contenitori, con le dimensioni suddette, sono in grado di resistere alle pressioni cui saranno sottoposti in condizioni di deposito e di garantire un periodo minimo di contenimento di 1000 anni. Dopo essere stati estratti dal reattore, gli elementi di combustibile sono stoccati temporaneamente per 50 anni, in modo da consentirne il decadimento della potenza termica a un livello per cui possano essere smaltiti, ovvero 1200 W per contenitore. I contenitori sono disposti in gallerie di smaltimento cilindriche, costruite con blocchi di bentonite pre-compattata, lunghe 500 m, con un diametro di 2,4 m e con un rivestimento di calcestruzzo spesso 30 cm. Sulla base di

criteri termici, è stato stabilito che i contenitori devono essere posti a 2,5 m l'uno dall'altro e le gallerie di smaltimento a 50 m l'una dall'altra, in modo da non superare la temperatura ritenuta critica per la bentonite, ovvero 100° C. Una volta che una galleria di smaltimento è piena di contenitori e di blocchi di bentonite, essa è sigillata con ulteriori blocchi di bentonite lunghi 6 m ed è chiusa con un tappo di cemento all'entrata. Una volta riempite tutte le gallerie di smaltimento, le gallerie principali, le rampe, i pozzi (shaft) e tutte le altre cavità presenti saranno sigillate con l'argilla estratta durante lo scavo del deposito.



**Fig. 3.7: Rappresentazione schematica del sistema di smaltimento geologico proposto da ENRESA.**

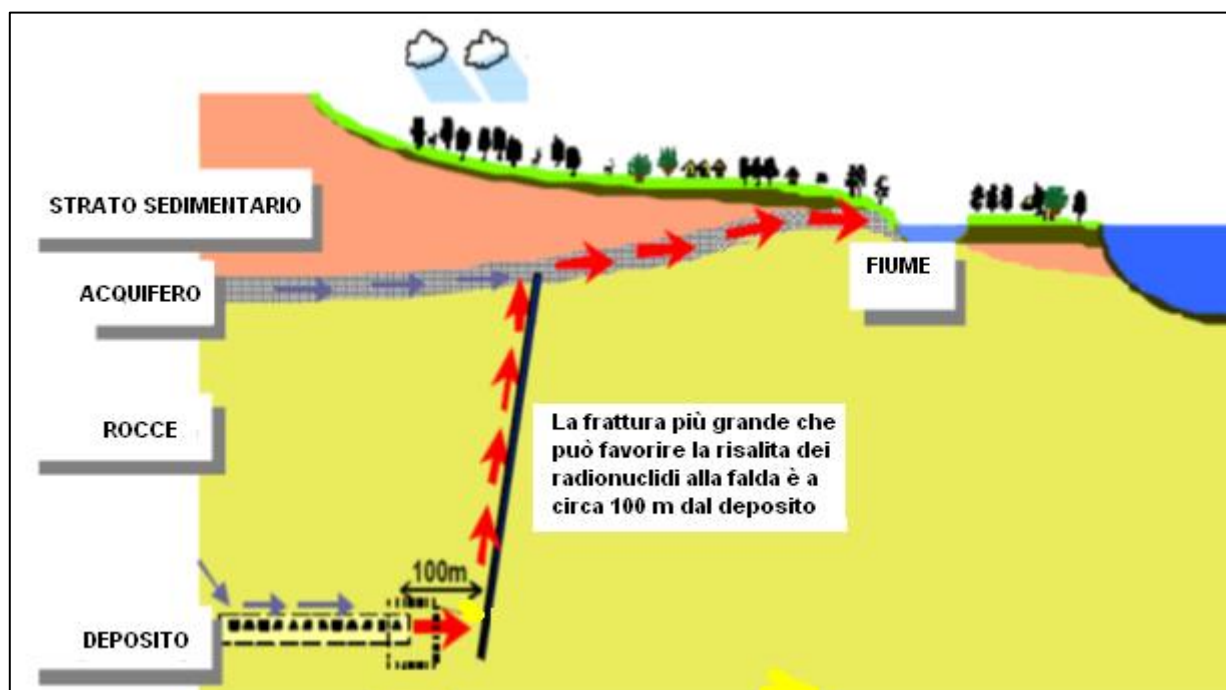
Dal momento in cui la bentonite è saturata dall'acqua, processo che richiede al massimo qualche centinaio di anni, le acque sotterranee cominciano a venire in contatto con i contenitori, dando così inizio a un processo di corrosione anaerobica. La durata del contenitore, a causa del processo di corrosione cui è sottoposto, è di circa 10000 anni.

L'assunzione che si fa per sviluppare modelli di studio e di calcolo, è che i contenitori comincino "a fallire" in sequenza con una velocità costante, per un periodo pari al 20% della durata minima del contenitore. Dopo il fallimento del contenitore, l'acqua raggiunge l'ossido d'uranio irraggiato e inizia il processo di rilascio dei radionuclidi, che in base ai loro limiti di solubilità dissolvono o precipitano.

I radionuclidi possono migrare attraverso la bentonite, le formazioni di argilla e le marne fino a raggiungere le falde acquifere superiori o inferiori (fig. 3.8). Nello studio del modello di trasporto sono inclusi i seguenti processi:

- precipitazione/ridissoluzione;
- diffusione attraverso la bentonite, l'argilla e le marne;
- processi di sorption nella bentonite, nell'argilla e nelle marne;
- advezione attraverso la formazione di argilla;

- decadimento radioattivo.



**Fig. 3.8:** Rappresentazione schematica della migrazione dei radionuclidi a seguito della corrosione del contenitore (ENRESA).

Nel modello di calcolo utilizzato da ENRESA è considerato un solo contenitore (superficie di 50 m x 7,04 m) con la rispettiva galleria di smaltimento e la formazione rocciosa circostante. Sono poi definiti diversi compartimenti, ovvero: rifiuti radioattivi, precipitato, Bentonite, 100 m di argilla al di sopra del deposito, 90 m di argilla al di sotto del deposito, 110 m di marne al di sopra dell'argilla e la falda acquifera al di sopra delle marne.

### 3.4 Il deposito geologico proposto in Svezia e Finlandia

La SKB (Swedish Nuclear Fuel and Waste Management Company) sta effettuando delle indagini per la ricerca di un sito dove realizzare un deposito geologico profondo, da rendere operativo nel 2025, nei comuni di Oskarshamn (350 km a sud di Stoccolma) e Östhammar (150 km a nord di Stoccolma), entrambi in prossimità di centrali nucleari.

Il deposito dovrà essere in grado di stoccare definitivamente 4500 contenitori di rifiuti (sia di tipo PWR che BWR), equivalente a 9300 tonnellate di uranio, provenienti dai 10 reattori in esercizio e dai 2 reattori chiusi prematuramente. Durante la fase operativa di test, saranno depositati il tra il 5% e il 10% dei rifiuti totali, ovvero circa 300 contenitori, in modo che le autorità e la SKB possano effettuare una valutazione approfondita delle prestazioni del deposito.

Anche la Posiva, che gestisce lo smaltimento del combustibile irraggiato in Finlandia, sta prendendo in seria considerazione l'idea della realizzazione di un deposito geologico da rendere operativo nel 2020. Il sito proposto e sotto investigazione è Olkiluoto, dove per ora è in funzione un impianto sotterraneo di ricerca (ONKALO) che potrebbe essere utilizzato come una parte del

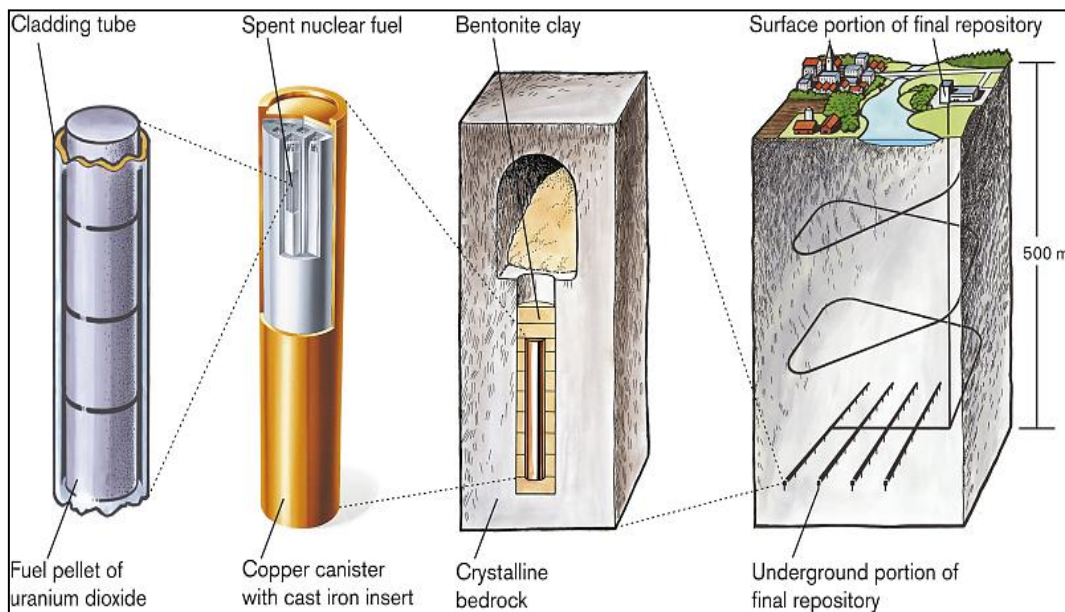
futuro deposito. Il metodo di smaltimento svedese e finlandese per il combustibile nucleare esaurito è lo stesso ed è chiamato KBS-3 (fig. 3.9).

Esso prevede l'incapsulamento del combustibile in contenitori di rame e l'immersione di ogni contenitore in blocchi di bentonite all'interno di una serie di gallerie sotterranee a una profondità di circa 500 m. Le gallerie sotterranee, lunghe circa 260 m e distanziate di 40 m, sono realizzate in una formazione granitica cristallina. Il principio si basa su l'utilizzo di molteplici barriere protettive che hanno la funzione di isolare il combustibile esaurito altamente radioattivo.

Il combustibile è racchiuso in contenitori costituiti da:

- un inserto di ghisa, in modo da conferire a essi una buona stabilità e resistenza meccanica;
- un guscio di rame di 5 cm, in modo da proteggerli dal processo di corrosione.

Ogni contenitore ha una lunghezza di 4.8 m, un diametro di 1.05 m e un peso una volta riempito compreso tra le 25 t e 27 t, in base al combustibile considerato. Una volta collocati all'interno del deposito, i contenitori sono circondati da un materiale di riempimento impermeabilizzante, che ha lo scopo di proteggerli dal flusso delle acque sotterranee, di tenerli in posizione e di ritardare la migrazione dei radionuclidi. Il materiale di riempimento consiste in blocchi e anelli di bentonite sodica ad altissimo indice di rigonfiamento (MX-80).



**Fig. 3.9: Concetto di smaltimento KBS-3 per lo stoccaggio definitivo del combustibile esaurito.**

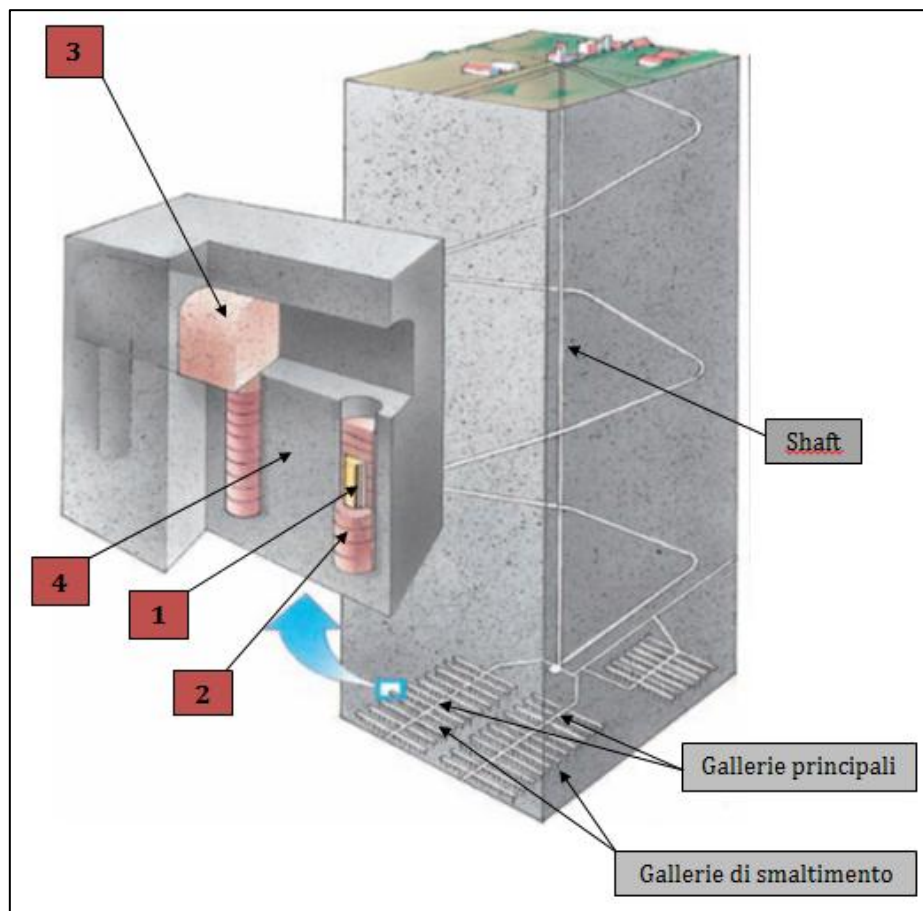
Allo stato attuale sono in via di sviluppo due tipi di concetto del KBS-3, ovvero:

- KBS-3V, in cui i contenitori sono disposti in cavità verticali (è la variante preferita);
- KBS-3H, caratterizzato da gallerie di smaltimento orizzontali.

In entrambe le varianti, i contenitori, i materiali di “buffer” e “backfill” e gli accessi alle gallerie sono gli stessi.

### 3.4.1 Tecnica di smaltimento KBS-3V

Nel concetto di smaltimento KBS-3V (fig. 3.10), il deposito è costituito da: *condotti verticali* (shafts) che collegano la superficie con la parte sotterranea, *tunnel di accesso*, *gallerie principali* e un *sistema di gallerie di smaltimento* lunghe circa 260 m (la lunghezza può variare in base alle condizioni delle rocce circostanti).



**Fig. 3.10: Illustrazione del concetto di smaltimento KBS-3V.**

**Legenda:**

**1:** Contenitore di rifiuti.

**2:** Blocchi di bentonite per proteggere i contenitori dall'acqua.

**3:** Misto di bentonite e roccia frantumata che riempie il tunnel.

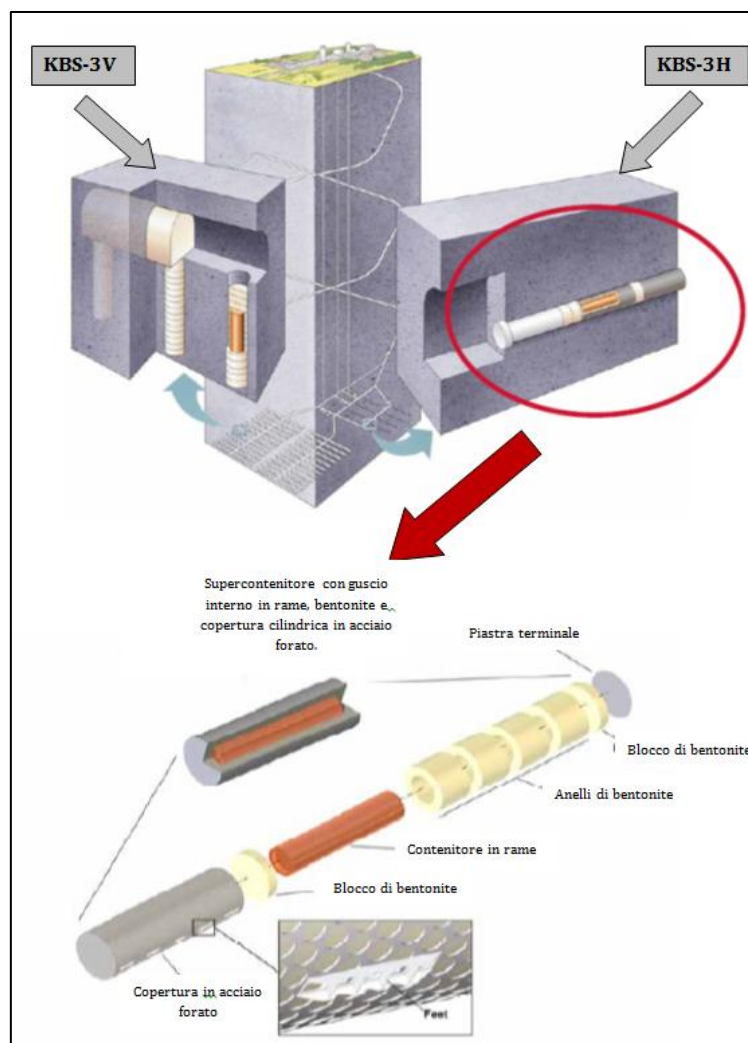
**4:** Roccia che offre un ambiente protettivo sia dal punto di vista meccanico che chimico.

Ogni galleria di smaltimento ha una sezione trasversale di circa  $30 \text{ m}^2$  e contiene una serie di fori verticali in cui saranno collocati i contenitori del combustibile esaurito. Il diametro di ciascun foro è di 1,75 m e la profondità è di circa 8 m. Una volta collocati nei fori, i contenitori sono circondati

da bentonite ben compattata e la galleria è riempita con un miscuglio di argilla e rocce frantumate.

### 3.4.2 Tecnica di smaltimento KBS-3H

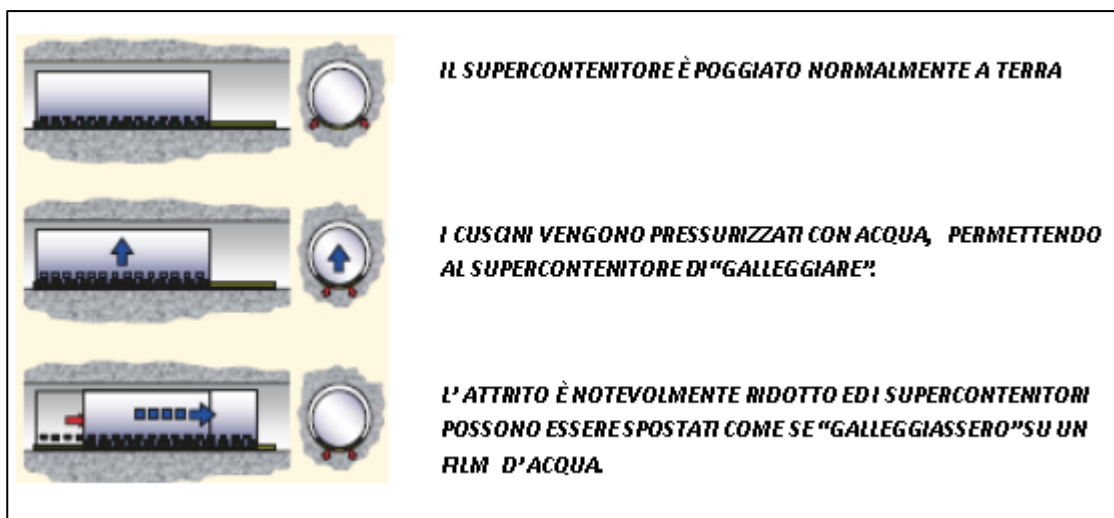
Nel concetto di smaltimento KBS-3H non è necessaria la presenza delle gallerie di smaltimento, poiché i fori sono realizzati direttamente dalle gallerie principali. Il diametro dei fori di smaltimento è circa 2 m e la profondità 200/300 m, in tal modo il volume di scavo è notevolmente ridotto rispetto alla tecnica di smaltimento in verticale KBS-3V. La differenza principale che distingue il concetto di smaltimento KBS-3H dal concetto di smaltimento KBS-3V è che i rifiuti sono stoccati in dei “pacchetti” che fungono da supercontenitore (fig. 3.11).



**Fig. 3.11: Concetto di smaltimento KBS-3H e struttura del supercontenitore(cerchiato in rosso).**



*Fig. 3.12a: Prototipo di macchina per la deposizione dei rifiuti negli appositi fori.*



*Fig. 3.12b: Sistema per lo spostamento dei supercontenitori.*

Questi sono realizzati ponendo attorno ai contenitori un cilindro forato d'acciaio che permette all'acqua di penetrare e saturare la bentonite, la quale gonfiandosi diventa una barriera impermeabile. Per spostare i supercontenitori dal peso di circa 50 t ed inserirli nei fori è in fase di studio un sistema che utilizza cuscini ad acqua per ridurre l'attrito (fig. 3.12a, 3.12b). Tra ogni supercontenitore è interposto un blocco di bentonite e quando ogni foro è riempito completamente viene sigillato con un tappo di cemento.

### 3.5 Il deposito geologico proposto in Germania

La Germania è l'unica Nazione che sta prendendo in considerazione il concetto di smaltimento geologico in formazioni di sale. La formazione proposta per ospitare il deposito è la cupola salina di Gorleben, con una copertura sedimentaria di circa 300 m. Il deposito sarà situato a una profondità di 870 m dalla superficie (livello di smaltimento), in uno strato omogeneo di salgemma, all'interno della cupola di sale. Il modello di deposito è costituito da un pozzo (shaft), un'area centrale e due gallerie di accesso che collegano l'area centrale con una rete di gallerie orizzontali di smaltimento. All'interno di queste gallerie (vd. Fig. 3.13) sono scavati dei pozzi profondi 300 m, dove saranno collocati i contenitori dei rifiuti. L'obiettivo di sicurezza del deposito è di isolare i rifiuti radioattivi, sfruttando le proprietà e la stabilità per lunghissimi periodi delle formazioni di salgemma. Dato che l'enfasi è posta sulla formazione geologica, le barriere ingegneristiche non sono progettate per garantire un contenimento a lungo termine, ma soltanto per richiudere la formazione di sale dopo la costruzione del deposito. Le principali barriere ingegneristiche sono il sigillo dello "shaft" e i sigilli delle gallerie.



**Fig. 3.13: Lavori nel deposito tedesco di Gorleben.**

Il deposito è in grado di contenere il volume totale dei rifiuti ad alta attività (HLW) che si prevede di accumulare in Germania fino al 2080. I tipi di rifiuti considerati sono il combustibile esaurito, i rifiuti ad alta attività e lunga vita vetrificati (HLW) e i rifiuti a media attività e lunga vita (ILW). I contenitori utilizzati sono:

- contenitori a pareti sottili di tipo BSK 3 con lunghezza di 4,98 m e raggio di 0,22 m per il combustibile esaurito;
- contenitori di tipo CSD-V con lunghezza di 1,34 m e raggio di 0,22 m per rifiuti HLW;
- contenitori di tipo CSD-C con lunghezza di 1,35 m e raggio di 0,22 m per rifiuti ILW.

Lo scopo principale del deposito è far sì che l'acqua non raggiunga i contenitori dei rifiuti. Il modello di studio che si utilizza, si basa sulle seguenti ipotesi:

- la permeabilità del sigillo dello "shaft" sia pari a  $10^{-18} \text{ m}^2$  per un periodo di 75 anni e



aumenti al valore  $10^{-14} \text{ m}^2$  negli anni successivi;

- la permeabilità dei sigilli delle gallerie è considerata costante e pari a  $10^{-15} \text{ m}^2$ .

La combinazione di questi parametri pessimistici permette di considerare le infiltrazioni d'acqua, che in breve tempo (0-10 anni) portano al fallimento dei contenitori e al conseguente rilascio dei radionuclidi dalla matrice dei rifiuti. A questo punto i radionuclidi possono dissolversi in acqua oppure precipitare, se raggiungono il limite di solubilità.

Per il trasporto dei radionuclidi al di fuori del deposito sono presi in considerazione i processi di advezione, di sorption, di dispersione/diluizione e di decadimento radioattivo. La formazione geologica sottoposta alla migrazione dei radionuclidi, è considerata nel modello di studio come un mezzo omogeneo dalle seguenti caratteristiche:

- porosità pari a 0,2 ( $V_{\text{vuoti}}/V_{\text{materiale}}$ );
- lunghezza di 820 m;
- spessore di 45 m.

### **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 3**

- [1] IAEA Nuclear Energy Series No. NW-T-1.19, “ Geological Disposal of Radioactive Waste: Technological Implications for Retrievability”, International Atomic Energy Agency Vienna, 2009.
- [2] Report Series Dossier 2005: “Architecture and management of a geological repository”, Andra.

#### 4. RASSEGNA SULLE PROBLEMATICHE TECNICHE DEI SISTEMI DI SMALTIMENTO DI RIFIUTI RADIOATTIVI IN DEPOSITI GEOLOGICI

Le problematiche tecniche dei sistemi di smaltimento di rifiuti radioattivi in depositi geologici possono essere definite sulla base della conoscenza di come un ambiente geologico possa interagire con i componenti di un deposito geologico e influenzare le interazioni tra questi componenti. Ad esempio, una forma di rifiuto interagirà con i componenti dell'EBS (contenitore, buffer, ecc.) che lo circondano attraverso numerosi processi che dipendono dalle caratteristiche della forma di rifiuto e dal particolare progetto di EBS, così come i componenti dell'EBS sono influenzati dai gas che possono svilupparsi dal rifiuto.

- Lo smaltimento di rifiuti diversi (LLW-HLW) nello stesso luogo è definito come lo smaltimento di diversi tipi di rifiuti in diverse parti di un deposito che hanno un comune punto di accesso e comuni impianti di superficie. Lo smaltimento nello stesso luogo potrebbe implicare il posizionamento di tipi diversi di rifiuti su diversi livelli o in zone diverse di un deposito e, in questo caso dovrebbero anche essere considerati le interazioni chimiche tra i sistemi di contenimento in diverse parti di un impianto. Ciò è probabilmente molto importante per la co-presenza di forme di rifiuti contenenti materiali cementizi e HLW, ma potrebbe essere anche importante per il co-smaltimento di altri tipi di rifiuti.
- La resistenza alla corrosione e la durata dei materiali del deposito non sono ancora ben comprese, specialmente quando diversi materiali potrebbero interagire tra di loro. Le caratteristiche (superfici, geometrie, proprietà idrauliche e così via) delle interfacce tra diversi materiali rappresentano altrettanti importanti fattori che influenzano la resistenza alla corrosione e sulla durata.
- Se un deposito è realizzato in un evaporite e riempito con materiali evaporitici le interfacce tra la roccia ospite e il backfill tenderanno a scomparire nel tempo, a causa della deformazione plastica della roccia ospite e del riempimento.
- La degradazione termica, la radiolisi e la degradazione dovuta all'eventuale presenza di acqua sono argomenti chiave per i potenziali fenomeni di polimerizzazione dei rifiuti, al cui riguardo non si hanno sufficienti conoscenze.
- La possibilità di criticità sarà controllata da molti fattori, tra cui la geometria locale dei contenitori, i flussi sotterranei, le condizioni geochimiche e la presenza di eventuali moderatori neutronici.
- I gas generati dalla corrosione dei componenti in acciaio hanno una composizione diversa dai gas generati dagli organici. Queste due sorgenti sarebbero presenti in quantità diverse in diversi depositi e genererebbero diversi volumi di gas per unità di materiale sorgente (a seconda che la base sia la massa o il volume). La generazione di gas dai rifiuti potrebbe essere un argomento più serio di quanto attualmente considerato che potrebbe avere conseguenze sulla sicurezza a lungo termine del deposito.
- L'utilizzo di super-plasticizzanti nella costruzione, costituisce una lacuna conoscitiva a causa della mancanza di ricerche specifiche su come essi possano influenzare il trasporto dei radionuclidi. Una nuova generazione di super-plasticizzanti promettono minori

problematiche rispetto a quelli studiati una decina di anni fa da NIREX per il sito di Sellafield.

- Si è assunto che l'ambiente locale del deposito diventi povero di ossigeno fino a diventare anossico subito dopo la chiusura del deposito e la risaturazione. Questo cambiamento in condizioni riducenti è importante soprattutto perché esso influenza la degradazione della forma di rifiuto, la velocità di corrosione metallica e la solubilità e il trasporto di quei radionuclidi che sono meno mobili in stati più ridotti.
- La risaturazione del rifiuto avrà luogo lungo archi di tempo molto diversi, a seconda dell'ambiente geologico e della natura di ciascun riempimento e sigillante. La tempistica di risaturazione avrà una grande influenza sulla natura, il tempo e la significatività delle interazioni tra i componenti del deposito.

**Tab. 4.1 - Interazioni tra i componenti dell'EBS e la geosfera per diversi tipi di rocce ospiti [1].**

EBS Component/ Characteristic	1 Hard fractured rock to surface	2 Hard fractured rock overlain by relatively high-permeability sedimentary rocks in which advective transport dominates	3 Hard fractured rock overlain by sedimentary rocks containing at least one significant low-permeability unit in which diffusion dominates solute transport	4 Bedded evaporite host rock	5 Siliceous sedimentary host rock	6 Mudstone host rock	7 Plastic clay host rock	8 Carbonate host rock	9 Non-evaporitic host rock with hypersaline groundwater
System geometry (depth, access, footprint, tunnels)	Rock stress, depth compromise between stress and low transmissivity, avoid major structures, a large footprint may be required to locate sufficient "good" rock or a multi-layer repository, keeping excavations open for an extended period may be difficult.			Dependent on sedimentary architecture and heterogeneity, variable strength of rock affects size of caverns/tunnels, avoid major structures, circular cross-section tunnel only in plastic clay rock, some environments may be limited in extent compared to required footprint?				May suffer any of Environment 1-8 restrictions. Disturbance to inherently stable system may be a problem	
Waste package only (no buffer/backfill)	NOT FEASIBLE: inadequate geosphere performance.		Unlikely to be acceptable to stakeholders although cover would provide adequate geosphere performance	Barrier provided by impermeable host rock	High degree of package and overpack engineering, gallery / tunnel construction for retrieval, long travel times essential		Closure over canisters, corrosion	Long travel times, engineering, tunnel construction	Very long travel times, corrosion, no reliable buffer available
Longer-lived waste package/overpack	Corrosion by HS or O <sub>2</sub> , high salinity, high dependence on buffer, probability of defective canisters, seismic shearing		Stable groundwater system	With halite / other evaporite backfill	Corrosion by HS or O <sub>2</sub> , high salinity, high dependence on buffer, probability of defective canisters, seismic shearing		Closure over canisters, corrosion	Travel times, engineering	Very long travel times, corrosion, no reliable buffer available
Shorter-lived waste package/overpack	(NOT FEASIBLE?): totally dependent on buffer/backfill retention, short travel time in geosphere		Longer travel time in geosphere	Gas release from ILW is an issue	Totally dependent on buffer/backfill retention and adequate travel time and retention in geosphere		Corrosion, closure over canisters, irregular closure	Long travel times, engineering, tunnel construction	Very long travel times, corrosion, no reliable buffer available
Buffer as physical, chemical and microbial barrier	Less stable groundwater, buffer erosion	Loss of swelling due to salinity, colloid generation, long-term alteration, emplacement		Not applicable	Stability of groundwater, loss of swelling due to salinity, erosion and colloid generation, long-term alteration		Clay buffer not required unless to bar organics	Swelling pressure, colloids, alteration, erosion	(NOT FEASIBLE): is there a compatible buffer?
Backfills in deposition and access tunnels	Less stable groundwater	Cover provides more long-term stability of groundwater		Salt backfill only	Erosion and colloid generation		Backfill not required unless to bar organics	Erosion and colloid generation	Void fill function only
Chemical containment and conditioning	Degradation, loss of high pH, corrosion, sorption	Degradation by groundwater, leaching of alkalinity and high pH, container corrosion, poor retention		Not applicable	Degradation by groundwater, leaching of alkalinity and high pH, container corrosion, poor retention		Not applicable	Degradation, leaching, carbonation	Not applicable
Linings, plugs and seals for deposition holes/tunnels	Rock stress and fracturing, insertion and preservation of linings for efficient emplacement of containers, seal emplacement important in fractured environment and also in Environment 3 to re-instate the diffusive barrier in the access shaft/drifts.			Not applicable	Rock stress and fracturing, insertion and preservation of linings for efficient emplacement of containers, seal emplacement important in permeable horizons and zones		Important to ensure seals effectively re-instate the natural barrier?	Rock stress, fracturing and joints	Fracturing, insertion
Excavation support for galleries and access tunnels	Strong rock, large caverns and tunnels possible, risks of rock falls in fracture zones, rock bolting, grouting of major structures to control water inflows			High creep rate in halite, may need support	Variable rock quality, fracturing	Fracturing, cleavage	High rate of closure, circular tunnel	Fracturing, block joints	Very high corrosion rate of steel support
Operational infrastructure	Excavation methods (drill and blast or TBM)			Corrosion, salt dust in ventilation, exclude water	No special issues		Short time for retrieval	No special issues	Corrosion in brine, salt clogging of pumps, etc
Other aspects of engineering design and operation	Radon hazard and ventilation, rock spoil and sulphide oxidation (acid rock drainage)			Gas hazard	No special issues	Rock spoil, pyrite oxidation	No special issues		Any of Environment 1-8 issues

#### 4.1 Descrizione degli argomenti tecnici

Per quanto riguarda l'influenza di diversi tipi di forma di rifiuto sul progetto degli EBS, si osserva che sarà necessario progettare/ottimizzare gli EBS per contenere l'inventario dei rifiuti per il particolare ambiente selezionato ad ospitare un deposito geologico profondo.

Un ampio spettro di soluzioni ingegneristiche che forniscono il grado richiesto di contenimento per diversi tipi di rifiuti è disponibile in relazione alla particolare tipologia di ambienti geologici identificati nei diversi Paesi. È importante considerare la forma dei rifiuti, gli EBS e la geosfera come un sistema accoppiato. Così, la discussione a livello scientifico riguarda il ruolo della geosfera nel determinare il progetto degli EBS così come l'influenza dei diversi tipi di forma dei rifiuti.

Poiché i diversi tipi di rifiuti richiedono diversi livelli di confinamento da parte del sistema contenitori/EBS che lo circondano, un EBS ottimizzato è probabile che includa diverse soluzioni ingegneristiche per adattarsi a diversi tipi di rifiuti e, probabilmente, si dovrebbero studiare diverse soluzioni ingegneristiche ottimizzate non solo per LLW/ILW e HLW/SF, ma anche per diversi tipi di rifiuti all'interno di ciascuno di questi ampi gruppi.

Oltre a fare il miglior uso del volume di roccia disponibile e minimizzare le interazioni tra le porzioni di LLW/ILW e HLW/SF del deposito (se c'è compresenza), diverse forme di waste interagiranno con i materiali ingegneristici limitrofi (e possibilmente ciascuno con l'altro) in modi diversi.

Un progetto "one size fits all" di EBS è molto improbabile che risulti appropriato ai fini della sicurezza. È probabile che ciascun deposito che prenda tutto l'inventario di un Paese necessiti di essere suddiviso a un livello più dettagliato che una semplice suddivisione tra zone ILW e HLW/SF (vd. ad esempio il progetto francese di ANDRA (ANDRA, 2005), dove l'EBS è ritagliato sulle caratteristiche del rifiuto).

Poiché quando si progetta l'EBS, la soluzione ottimale deve minimizzare ciascun aspetto potenzialmente dannoso di queste interazioni e allo stesso tempo massimizzare ciascun potenziale aspetto positivo è importante sviluppare campagne di ricerca tese ad evidenziare le interazioni tra le forme di rifiuto e i componenti dell'EBS, tra le quali particolarmente importanti sono le seguenti interazioni:

- interazioni che coinvolgono fluidi alcalini interstiziali rilasciati dai rifiuti incapsulati nel cemento che possono accelerare la dissoluzione di vetri, causare infragilimento e cracking della bentonite, e ridurre la pressione di rigonfiamento della bentonite;
- interazioni tra componenti EBS e prodotti di degradazione radio litica degli incapsulanti polimerici, soprattutto acidi e complessanti organici;
- aumento dei ratei di dissoluzione di combustibile esausto vetroso e ceramico, Pu e U da interazioni che coinvolgono acidi provenienti da rottura di polimeri;
- cattura di C-14 sviluppatosi dai rifiuti da parte di barriere cementizie

- corrosione promossa dall'accoppiamento galvanico tra grafite e metalli e leghe di minor potenziale di riposo
- complessazione di radionuclidi con materiali di rifiuti misti (quali agenti complessanti ivi situati) e prodotti di degradazione del rifiuto (quali prodotti di degradazione della cellulosa come acidi grassi a catena corta)
- trattenimento dei radionuclidi negli oli, nei grassi e altri liquidi non acquosi.

Interazioni tra diverse forme di rifiuti sono importanti in termini della prestazione richiesta del sistema combinato (EBS e geosfera), e potrebbero richiedere di isolare alcuni rifiuti dagli altri più a lungo possibile.

Queste interazioni sono anche affette dall'ambiente geologico poiché due parametri chiave sull'evoluzione della forma dei rifiuti sono:

- il rateo di flusso;
- la composizione delle acque sotterranee.

L'EBS potrebbe isolare i rifiuti oppure i buffer l'acqua in ingresso, ma col tempo l'efficacia di questa barriera è destinata a subire il fenomeno di degrado. Agenti chimici (quali i prodotti di degradazione organica compresi acidi e colloidali) rilasciati da un contenitore di rifiuti potrebbero avere un effetto dannoso sulla prestazione dei contenitori vicini o sulla mobilità dei radionuclidi dopo il loro rilascio. Se i contenitori proposti per diversi flussi di rifiuti sono considerati tra loro isolati, potenziali interazioni tra i contenuti dei package e le sostanze che potrebbero essere rilasciate dai contenitori adiacenti potrebbero non essere propriamente tenute in conto. È improbabile che sia possibile affidarsi al solo contenitore per evitare interazioni tra i contenitori adiacenti. Perciò, sarà probabilmente necessario identificare potenziali interazioni dannose e strategie di posizionamento progettuali per i contenitori di rifiuti per mitigarle. Comunque, non tutte le interazioni tra contenitori saranno necessariamente negative. Ad esempio, un plume a elevato pH che emana da un modulo a base di cemento potrebbe portare alla passivazione (rateo di corrosione decrescente) di materiali in acciaio usati per quello vicino.

Il carico termico potrebbe essere importante per determinare sia il layout del deposito che la scelta dei materiali dell'EBS. La conduttività termica delle forme di rifiuti e i materiali dell'EBS generalmente aumenta con la saturazione. Per questo motivo, quando si progetta il layout e si scelgono i materiali dell'EBS, è necessario capire la probabile scala temporale di risaturazione e la loro potenziale eterogeneità.

Il potenziale di generazione di gas dai rifiuti è un altro importante fattore nel progetto del deposito.

Anche i volumi dei diversi tipi di rifiuti influenzeranno le caratteristiche dell'EBS. Costi e disponibilità di adeguati materiali potrebbe essere un'importante considerazione nel progetto. Ad esempio, in fase di progettazione, questi argomenti potrebbero influire sulla scelta di rame o acciaio al carbonio come materiali per i canisters di HLW/SF.

La prestazione complessiva della geosfera è importante per determinare il tipo di EBS richiesto per fornire il livello di confinamento necessario per ciascun flusso di rifiuti. Una volta che sia stato decisa la tipologia complessiva dell'EBS, la struttura e le proprietà della roccia ospite saranno molto significative nel determinare le opzioni praticabili di progetto/layout/operative. La eterogeneità/variabilità della roccia ospite sarà un fattore chiave nel determinare quanto sforzo sia richiesto per ottimizzare il design/layout dell'EBS per adattarsi al sito e ai diversi tipi di rifiuti. Lo sforzo richiesto per raggiungere questo obiettivo dipenderà fortemente dalle proprietà della roccia ospite, soprattutto la sua eterogeneità alla scala di sottocavità/tunnel, e il ruolo che essa gioca nel *SAFETY CASE*, e tutto questo a sua volta influenzerà il dettaglio con cui sarà necessario caratterizzare la roccia ospite.

Il progetto e il layout del deposito richiederà di tenere conto di tutte le diverse fasi nel ciclo di vita dell'impianto di smaltimento: costruzione, esercizio e prestazioni post-chiusura. Un deposito costruito con zone multiple per ottimizzare le prestazioni post-chiusura potrebbe introdurre complessità aggiuntive significative poiché potrebbe essere necessario attuare un numero di diversi "*fronti di smaltimento*" allo stesso tempo, piuttosto che semplicemente posizionare i rifiuti a un singolo fronte di smaltimento secondo l'ordine in cui arrivano. Ciò potrebbe essere più di un problema per una roccia ospite debole o per quelle soggette a scorrimento viscoso. A causa di potenziali problemi con il mantenimento di aperture multiple stabili per lunghi periodi di tempo, ciò potrebbe anche complicare significativamente la costruzione e l'esercizio se è pianificato che la costruzione di nuove cavità di smaltimento procederà in parallelo con il posizionamento di rifiuti nelle prime cavità di smaltimento. Comunque, alcuni operatori responsabili della gestione di rifiuti radioattivi (quali ANDRA, 2005) hanno sviluppato schemi che consentono il posizionamento in zone multiple in parallelo con la costruzione di futuri tunnels per lo smaltimento.

#### **4.2 Interazioni tra componenti ingegneristici**

Attività di ricerca a livello internazionale, sono condotte per aumentare la conoscenza delle interazioni tra ciascun componente ingegnerizzato usato all'interno del deposito, come parte di un EBS o per altri scopi.

Le interazioni potenziali tra componenti ingegnerizzati sono diverse e includono:

- interazioni fisiche, come la pressurizzazione del canister a causa del rigonfiamento dei buffer di bentonite;
- interazioni chimiche, che tipicamente coinvolgono fasi solide e fluide.

La maggior parte dei componenti ingegnerizzati all'interno di un EBS saranno in grado in qualche misura di interagire gli uni con gli altri se sono sufficientemente vicini. Queste interazioni potrebbero essere dirette, quando un componente è in contatto fisico con un altro consentendo ai due componenti di reagire chimicamente. Alternativamente, le interazioni potrebbero essere

indirette, quando due componenti non sono in contatto fisico diretto, ma sono entrambi in grado di reagire con acqua interstiziale che diffonde da uno all'altro.

I principali componenti che sono tipicamente proposti e che potrebbero interagire sono:

- componenti metalliferi dell'EBS, che possono includere canisters, inserti dei canisters (quali inserti di acciaio in canisters di rame) e overpacks;
- incapsulanti dei rifiuti, ad esempio cemento, vetro o asfalto/bitume (sebbene questi siano tipicamente non considerati essere parte dell'EBS);
- buffers, più comunemente di bentonite o misture di bentonite con altri materiali, quali la sabbia;
- materiali di riempimento di cavità scavate (compresi tunnels e condotti e/o accessi), che possono essere cementizi, bentonite o misture di bentonite con altri materiali (quali roccia triturrata, sabbia, o rocce saline in depositi con rocce ospiti evaporitiche) e MgO;
- guarnizioni, tipicamente composte di materiali simili a quelli proposti per i riempimenti, sebbene in alcuni programmi siano anche stati scelti asfalto/bitume;
- materiali ingegnerizzati usati per stabilizzare gli scavi, compresi calcestruzzo spruzzato, tiranti e liners di acciaio.

Le interface tra materiali diversi (naturali e antropici) sono probabilmente la chiave per le prestazioni del sistema. Molte delle interazioni tra barriere ingegnerizzate avverranno proprio in corrispondenza di queste interfacce. Alcune possono avere un effetto positivo sulla sicurezza (ad. es.: la crescita del pH dell'acqua interstiziale a un'interfaccia tra un componente cementizio e un componente di acciaio potrebbe rallentare il rateo di corrosione dell'acciaio). Altre interazioni potrebbero essere dannose, quali una diminuzione nella capacità di rigonfiamento del riempimento di bentonite vicino a una sigillatura cementizia.

#### **4.3 Interazioni EBS/roccia ospite**

Le potenziali interazioni tra componenti EBS e la roccia ospite sono classificabili in:

- interazioni fisiche, quali la pressurizzazione e la sigillatura di un EDZ (Excavation Damaged Zone) da parte del rigonfiamento dei buffers bentonitici, o dell'erosione dei buffers bentonitici da parte di flussi di acque sotterranee,
- interazioni chimiche entro la roccia ospite, che tipicamente connesse all'emanazione d'acqua da rifiuti /matrici/EBS e fasi solide.

Il grado atteso di interazione può avere un impatto diretto sul *SAFETY CASE* e sulle risorse richieste per caratterizzarlo adeguatamente e quelle più importanti come gli effetti di acque sotterranee e acque interstiziali sulle proprietà di singoli componenti degli EBS e sulle reciproche interazioni sono trattate nei successivi paragrafi.



Le principali interazioni saranno usualmente tra la roccia ospite e i componenti EBS che sono direttamente in contatto con la roccia. Comunque, sono anche possibili interazioni indirette. Ad esempio, gas che potrebbero essere generati dalla corrosione di componenti metalliferi delle barriere possono contribuire alla pressurizzazione della roccia ospite. Il potenziale per reazioni chimiche sarà generalmente più grande dove i materiali di barriera e le rocce ospiti sono chimicamente e/o fisicamente più dissimili. Ad esempio, ci saranno relativamente grandi cambiamenti mineralogici in una roccia ospite ricca di argilla posta in prossimità di una barriera cementizia (sebbene l'estensione spaziale di tali cambiamenti sarà limitata a causa della generalmente bassa permeabilità dell'argilla). In contrasto, ci potrebbero essere piccole interazioni tra un riempimento che è composto di roccia ospite triturrata e la roccia ospite stessa (quale riempimento sale di roccia tritata usato in una roccia ospite di roccia salina come proposto nel progetto tedesco).

La misura in cui gli EBS e la roccia ospite interagiscono chimicamente dipenderà anche fortemente dall'ambiente geologico e dal particolare concetto di EBS. Quei concetti che minimizzano il contatto tra rifiuti e acque sotterranee (ad esempio, usando buffers/riempimenti a bassa permeabilità per isolare i rifiuti) comporteranno una minore interazione di quei concetti dove il riempimento/buffer gioca un ruolo più attivo nel fornire il voluto contenimento chimico (come i buffer cementizi porosi permeabili).

Le reazioni chimiche più spazialmente estese sono previste intorno ai depositi in rocce ospiti relativamente permeabili (quali rocce cristalline fratturate) che impiegano estese barriere cementizie. In questi casi, un pennacchio alcalino si estenderà oltre il deposito portando una qualche alterazione della roccia ospite in una zona chiamata la zona disturbata alcalina (ADZ). L'estensione spaziale della ADZ dipenderà dalla permeabilità della roccia ospite e dai potenziali gradienti che guidano i flussi di acque sotterranee, che saranno una combinazione di gradienti idraulici naturali e gradienti idraulici che risultano dall'effetto di disturbo del deposito. Le interazioni sono probabili essere più spazialmente estese in più attivi regimi di flusso (quali zone di frattura che attraversano la traccia del deposito) e sono minimizzate in ambienti dove il flusso è scarso (quali rocce ospiti saline).

Le caratteristiche della roccia ospite possono influenzare la forma fisica dell'interfaccia tra gli EBS e la roccia. Ad esempio, nelle rocce fratturate la bentonite che compone le guarnizioni dei tunnel penetrerà le fratture in qualche misura. La natura della fratturazione potrebbe in qualche modo controllare la distribuzione spaziale della bentonite.

Un altro aspetto che potrebbe influenzare le potenziali reazioni chimiche è legato alla particolare litologia della roccia ospite. Ad esempio, in molte rocce ospiti di fango indurito, l'ossidazione della pirite durante la fase aerobica del deposito potrebbe generare acido che quindi interagire con i materiali dell'EBS, sebbene questo processo influenzerà solo piccoli volumi dell'EBS. Potenzialmente più significativo è l'effetto delle interazioni acqua/roccia dentro la roccia ospite sulla chimica delle acque sotterranee e/o acque interstiziali che potrebbero quindi interagire con l'EBS. Un caso estremo di tale influenza potrebbe avvenire in rocce ospiti che contengono minerali

evaporitici (che possono presentarsi in litologie diverse da quelle evaporitiche). La dissoluzione di questi minerali può influenzare la salinità e la composizione delle acque sotterranee e/o interstiziali. Esempi di questi tipi di interazioni sono:

- diminuzione della capacità di rigonfiamento delle barriere di Na-bentonite dovuta a  $\text{Na}^+$  scambio per  $\text{Ca}^{2+}$  nelle acque sotterranee;
- carbonatazione di barriere cementizie da parte di carbonato disciolto nelle acque sotterranee

Lo scavo del deposito risulterà in una EDZ in cui le proprietà delle rocce sono state disturbate dal processo di scavo (usualmente da parte di “*drill and blast*” o macchine per la trivellazione di tunnel), il rilascio di stress associato con lo scavo e le interazioni chimiche che avvengono durante il periodo operativo. Le caratteristiche e la misura dell’EDZ, che dipendono dai metodi di scavo della litologia della roccia ospite e dal progetto del deposito (quali i diametri dei tunnel) avranno un’importante influenza sulle interazioni tra gli EBS e la roccia ospite. L’EDZ conterrà roccia e superfici minerali esposti di fresco che possono entrare in contatto con i componenti più esterni degli EBS. L’EDZ può anche essere un percorso preferenziale e significativo per il trasporto di acque sotterranee/interstiziali nelle EBS e per il trasporto di fluidi o gas che si originano nel deposito lontano dagli EBS. Potenzialmente, l’EDZ potrebbe bypassare le sigillature, a meno di prendere preventive misure di progetto.

#### **4.4 Impatto delle acque sotterranee/interstiziali sui materiali dell’EBS**

Questi impatti riguardano le interazioni di acqua che si origina nella roccia ospite e nelle formazioni di roccia circostanti sui materiali dell’EBS.

Nel periodo immediatamente successivo alla sua chiusura, la risaturazione del deposito fornirà acque sotterranee/interstiziali all’EBS. Perciò, gli impatti della risaturazione includeranno gli effetti di queste acque sotterranee/interstiziali introdotte sui componenti dell’EBS. Comunque, l’EBS sarà anche interessato da interazioni con acque sotterranee/interstiziali prima della risaturazione (ad esempio, l’acqua sarà inclusa in qualsiasi impasto di bentonite usata nei sistemi di sigillatura) e dopo la risaturazione.

La chimica delle acque sotterranee/interstiziali influenzerà potenzialmente il comportamento dei materiali dell’EBS in diversi modi. Particolarmente importanti sono probabilmente le influenze su:

- evoluzione della pressione di rigonfiamento in tutti i materiali di supporto della bentonite (principalmente buffer e riempimento);
- caratteristiche di corrosione (principalmente ratei e scale spaziali di variabilità);
- degradazione di materiali cementizi,

e questi processi saranno affetti da:

- pH delle acque sotterranee/interstiziali;
- stato di ossidazione (condizione redox) delle acque sotterranee/interstiziali;

- salinità complessiva delle acque sotterranee/interstiziali (concentrazioni dei soluti);
- natura e proporzione dei soluti (ad esempio, se l'acqua è ricca di bicarbonato, di cloro o di solfati).

Il pH delle acque sotterranee/interstiziali naturali, a seconda della natura delle rocce ospiti, sarà generalmente vicino alla neutralità o, al più, leggermente alcalino. Generalmente, le acque sotterranee in sequenza di rocce cristalline tenderanno ad avere caratteristiche leggermente più alcaline di quelle derivanti da sequenze di rocce sedimentarie. Comunque, lungo il range di valori di pH attesi in un ambiente di deposito, ci possono essere solo piccole variazioni nel comportamento dei componenti delle barriere ingegneristiche.

Lo stato redox delle acque sotterranee/interstiziali immediatamente intorno a un deposito sarebbe relativamente ossidante subito dopo la chiusura, a causa dell'ingresso di ossigeno atmosferico dai vuoti di scavo. Comunque, l'estensione spaziale di tali condizioni ossidanti sarebbe molto limitato a causa del tamponamento chimico da parte della roccia ospite e della bassa permeabilità attesa della roccia ospite.

È previsto che in tutti gli ambienti geologici considerati, le condizioni diventerebbero riducenti (anossiche) molto presto dopo la chiusura (molto probabilmente entro pochi anni o decenni). Questo ritorno a condizioni riducenti sarebbe molto probabilmente causato da uno o più dei seguenti motivi:

- ingresso di acque sotterranee/interstiziali;
- corrosione dei metalli (in componenti strutturali e nell'EBS);
- ossidazione dei minerali nella roccia ospite e/o materiali di barriera (quali piccole quantità di pirite nelle rocce ospiti e/o nel riempimento di bentonite);
- degradazione di materiali organici dentro la roccia ospite e l'EBS.

Comunque, tutti questi processi sono attesi risultare in cambiamenti insignificanti per le proprietà dei materiali di barriera, a causa delle proporzionalmente piccole quantità di ossigeno che sarebbero sigillate nel deposito alla chiusura.

Molto maggiore sarà l'importanza della salinità complessiva e il carico di soluti nelle acque sotterranee/interstiziali. I cambiamenti precisi che avvengono saranno una funzione complessa delle concentrazioni e delle proporzioni dei soluti presenti. Ad esempio, laddove è possibile accedere alla bentonite che forma il buffer, acqua (fresca) con bassissima salinità potrebbe rimuovere i cationi, portando a una diminuzione nella pressione di rigonfiamento. D'altra parte, la bentonite di una specifica densità a secco tenderebbe a esibire una minore pressione di rigonfiamento nella presenza di acque sotterranee altamente saline dominate da Na-Cl piuttosto che in acque sotterranee dominate da Na-Cl più diluite.

Acque sotterranee altamente saline in particolare presentano potenzialmente molti problemi, poiché in condizioni altamente saline c'è una tendenza per:

- il rateo di corrosione metallica a essere rinforzato;

- materiali cementizi a essere degradati (ad esempio per formazione di minerali ad alto volume specifico quali ettringite se le concentrazioni di  $SO_4$  sono alte);
- le solubilità di gas a essere abbassate;
- l'assorbimento di radionuclidi a diventare meno efficace.

È probabile che i materiali dell'EBS possano essere progettati per funzionare adeguatamente in salinità da basse a moderate (possibilmente fino a una salinità equivalente a circa due volte quella dell'acqua di mare). Comunque, la condizione di ipersalinità dell'acqua, come quella attesa in ambienti geologici di salgemma stratificato od rocce ospiti non evaporitiche con acqua sotterranea ipersalina, presenterebbe maggiori problemi, sebbene altre proprietà della roccia ospite di salgemma stratificato rendano la presenza dell'EBS non così rilevante.

La salinità delle acque sotterranee impatta anche sulla predicibilità dell'evoluzione dell'EBS. I comportamenti dei materiali per EBS più comunemente proposti sotto condizioni di acque sotterranee fortemente saline non sono stati ancora investigati sperimentalmente. Inoltre, modelli termodinamici convenzionali sono inapplicabili per soluzioni con salinità maggiori di quella del mare. Mentre il cosiddetto "approccio Pitzer" è applicabile per modellizzare reazioni a salinità maggiori, esso è strettamente applicabile solo per acque con composizioni simili a quelle usate negli esperimenti di laboratorio da cui i dati termodinamici sottostanti sono stati ottenuti. In più, dati termodinamici affidabili sono carenti per molti minerali sotto condizioni simili di deposito. L'acqua salina può dimostrarsi più un problema durante la fase operativa che nella fase post chiusura. Cloruri, e in particolare tiosolfati, devono essere tenuti lontani dai fusti stoccati per prevenire la corrosione durante le operazioni. Chiaramente, più è lunga la fase operativa, più difficile diventa tale requisito.

#### **4.5 Durata per cui i materiali EBS possono mantenere le loro funzioni**

L'importanza di questo argomento dipende fortemente dall'ambiente geologico, dal concetto di EBS e dalla natura dei rifiuti. Tra di loro, questi fattori determinano le funzioni di sicurezza che i vari materiali dell'EBS devono garantire e quindi la durata che è loro richiesta.

In termini generali, una maggior durata sarà richiesta dai materiali dell'EBS quando il deposito è costruito in un ambiente dove la geosfera è attesa fornire un contenimento relativamente piccolo.

Ad esempio, la SKB svedese ha progettato un EBS altamente ingegnerizzato e duraturo per lavorare in un ambiente a roccia dura fratturata (SKB 2006). In questo caso la geosfera può essere ragionevolmente assunta proteggere l'EBS, ma di suo non può essere usata a riferimento per fornire il contenimento necessario per conseguire i target regolatori. Dall'altra parte in Francia, il *SAFETY CASE ANDRA*, è in grado di fare molto più affidamento sulla geosfera (ANDRA, 2005).

I requisiti di durata varieranno anche con il tipo di rifiuti. Una soluzione ottimizzata terrà in conto i diversi requisiti dei vari rifiuti valutare la durata dei materiali dell'EBS richiederà una buona comprensione dell'evoluzione con il tempo dei sistemi accoppiati nel campo vicino. Questo deve includere una comprensione del grado di eterogeneità sviluppabile, poiché questo potrebbe

determinare il grado in cui i processi di degradazione (quali corrosione localizzata) influenzano l'integrità dell'EBS. In alcuni casi, potrebbe essere necessario determinare/dimostrare la misura in cui la radiazione influenza la durata dell'EBS. Questo sarà più importante per HLW/SF che per ILW.

Comprendere l'evoluzione delle interfacce tra i diversi materiali nel sistema è una sfida chiave nella ricerca scientifica a supporto dei progetti di depositi geologici profondi. Le interfacce sono probabilmente sempre gli "anelli deboli" nella struttura così è probabilmente valore nell'assicurare che l'EBS siano i più semplici possibile (consistendo del minor numero di componenti possibile), minimizzando quindi il numero di interfacce.

Sarà importante dimostrare che il posizionamento a larga scala di rifiuti sottoterra è possibile ad adeguati livelli di garanzia e controllo della qualità (QA/QC). In pratica, questo significherà usualmente dimostrare che livelli raggiungibili di QA/QC saranno simili a quelli raggiunti nei test su scala più piccola realizzati negli URL che sostengono il progetto del deposito. In Svezia, SKB ha sperimentato difficoltà nel produrre anelli di bentonite compatti su una scala sufficientemente larga per le operazioni di deposito piuttosto che semplicemente per test/dimostrazioni. Per raggiungere questo obiettivo sarà probabilmente importante dimostrare, in un URL o impianto simile, che gli EBS scelti possono essere posizionati con il richiesto livello di consistenza e qualità prima di passare alla fase di progetto dettagliato. Potrebbe anche essere vantaggioso fabbricare il più possibile degli EBS sopra terra dove è probabile che sia più facile assicurarne e verificarne la qualità. Ad esempio, potrebbe essere vantaggioso per il packaging sopraterra dei fusti nelle "disposal units" che già contengono un riempimento, come fatto dalla maggior parte dei programmi europei. Per il buffer, un approccio alternativo, potrebbe essere quello di posizionarlo intorno ai HLW/SF sopra terra, come nel concetto belga di *supercontenitore*.

Dimostrare la durata dell'EBS richiede le seguenti azioni:

- esperimenti dimostrativi a lungo termine, combinati con la dimostrazione che i risultati possano essere scalati a condizioni e scale temporali tipiche di deposito;
- uso di analoghi naturali;
- lavoro di modellizzazione accuratamente mirato che si basi sui precedenti risultati sperimentali e le osservazioni di analoghi.

La durata degli EBS è una tematica tipica della fase di post-chiusura che potrebbe essere influenzato dalle attività realizzate in fase pre-chiusura. In particolare, la durata per cui un deposito rimane aperto (non riempito) prima della chiusura finale potrebbe influenzare la lunghezza di tempo per cui i componenti EBS possono successivamente adempiere le loro funzioni. Ad esempio, i componenti metallici possono subire una maggior corrosione pre-chiusura se c'è un periodo prolungato di esercizio prima del riempimento, come in certi concetti di deposito in caverna (quale il concetto recuperabile di caverna giapponese, CARE).

Vari processi possono influenzare la durata, compresi:

- reazioni acqua/solidi;

- calore (generato soprattutto dai rifiuti stessi);
- radiazione, che è probabile essere significativa solo per HLW/SF e che influenzerà i componenti di barriera più vicini ai rifiuti stessi;
- progressione verso forme più stabili di solidi negli EBS che sono inizialmente non all'equilibrio termodinamico (ad esempio, solidi presenti nel cemento gradualmente si trasformano in fasi più stabili con l'invecchiamento del cemento);
- stress meccanici sui componenti delle barriere ingegnerizzate, che potrebbero essere applicati ai componenti di barriera:
  - gradualmente, ad esempio perché gli scavi riequilibrano con lo stress naturale il campo a seguito della chiusura;
  - rapidamente, ad esempio se un difetto attivo precedentemente identificato sposta una volta (evento che dovrebbe essere estremamente improbabile se il siting e il progetto del deposito sono stati eseguiti efficacemente);
- erosione di barriere di bentonite da parte di acqua sotterranea che scorre.

Il primo di questi processi sarà generalmente importante, poiché le acque sotterranee/interstiziali saranno presenti e influenzeranno gli effetti degli altri processi. Ad esempio, il principale effetto del riscaldamento sarà l'aumento dei ratei delle reazioni acqua/solido.

#### **4.6 Interazioni Gas/acque sotterranee (o interstiziali)**

In un deposito è probabile che siano generati gas come risultato della corrosione dei metalli e della degradazione dei rifiuti organici. Una piccola proporzione di questo gas sarà radioattivo, soprattutto composti di  $^3\text{H}$  o  $^{14}\text{C}$ , ma la maggior parte del gas inattivo (principalmente  $\text{H}_2$ ) può essere trasportato insieme a questi gas radioattivi. Le interazioni tra i gas del deposito e le acque sotterranee o interstiziali sono importanti per diverse ragioni in diversi ambienti. In ambienti "umidi" alti ratei di generazione di gas possono condurre a un rapido avanzamento dei radionuclidi attraverso il gas fino alla superficie o ad una sovra pressurizzazione del sistema ingegneristico.

Se il gas non può facilmente uscire dal deposito, la sovra pressurizzazione potrebbe compromettere la struttura ingegneristica e l'integrità della roccia ospite. Potrebbe pertanto essere necessario progettare gli EBS specificamente per consentire alla pressione del gas di disperdersi o di limitare la possibilità di generazione di gas attraverso la scelta di materiali usati nella costruzione e il contenimento dei rifiuti o anche attraverso la scelta attenta della forma reale di rifiuti.

L'accoppiamento tra i processi che controllano l'evoluzione e la migrazione dei gas è difficile da simulare. Ci sono limitazioni fondamentali nella nostra comprensione degli accoppiamenti e la loro modellizzazione dettagliata è computazionalmente difficile. Queste limitazioni sono riflesse in incertezze nei modi migliori di tenere in conto questi accoppiamenti nella valutazione dei modelli.

Ad esempio, potrebbe essere difficile fare assunzioni conservative. Poiché la migrazione dei gas è altamente sito-specifica, è difficile valutare la potenziale importanza di gas provenienti dal deposito in assenza di un sito specifico e ben caratterizzato.

La salinità e la chimica delle acque sotterranee e delle acque interstiziali sono parametri importanti sull'evoluzione e migrazione dei gas e sulla stima delle pressioni raggiungibili. In senso lato, la salinità influenza la solubilità dei gas, con i gas generalmente meno solubili in soluzioni più saline. Di conseguenza, assumendo che tutti gli altri parametri siano uguali, maggiori pressioni di gas potrebbero essere attese in sistemi di acque sotterranee e acque interstiziali più saline.

Similmente, il pH delle acque sotterranee influenzerà la solubilità e la migrazione di CO<sub>2</sub>. Ad esempio, in rocce cristalline fratturate le acque sotterranee sono tipicamente più alcaline che in rocce sedimentarie clastiche. La CO<sub>2</sub> tenderà quindi a sciogliersi più prontamente nelle acque più alcaline.

Le caratteristiche fisiche delle rocce, compresa l'estensione in cui sono saturate d'acqua, influenzerà anche le interazioni tra i gas che migrano e le acque sotterranee e interstiziali.

Il tipo di porosità di una roccia (quale la misura in cui il flusso avviene attraverso la matrice di una roccia o attraverso le fratture e/o l'interconnettività della rete di frattura) influenza l'area di contatto effettiva tra i gas e le acque sotterranee. Maggiore è l'area di contatto maggiore è il potenziale per la dissoluzione di gas, a parità di altri fattori. Similmente, per i gas che migrano, l'eterogeneità litologica influenzerà il loro potenziale a restare intrappolati e quindi il tempo di residenza disponibile per l'interazione con acque sotterranee e acque interstiziali. Ad esempio, i gas che migrano verso l'alto potrebbero accumularsi sotto uno strato di bassa permeabilità dentro la sequenza di copertura situata al di sopra della roccia ospite del deposito. C'è quindi molto più tempo per il gas accumulato per interagire con l'acqua sotterranea circostante di quello che si avrebbe nel caso di assenza di un tale strato a bassa permeabilità.

La generazione e la migrazione dei gas potrebbero avere importanti conseguenze durante la fase operativa così come durante la fase di post chiusura. La durata dell'intervallo tra il posizionamento dei rifiuti e la chiusura, e le condizioni durante questo periodo, sono importanti per determinare sia il "rischio operativo" che la natura dell'inventario del gas generato che necessita di essere considerato durante il periodo di post chiusura.

Nel caso del progetto inglese per ILW, i rifiuti sono ventilati per ridurre la possibilità che il gas generato dentro il package possa portare a un cedimento del package stesso. Purtroppo, queste ventilazioni forniscono anche percorsi per la migrazione di radionuclidi disciolti dai rifiuti che sono attivi prima che si siano prodotti i canali dovuti alla corrosione.

#### **4.7 Adeguata caratterizzazione del sito**

La caratterizzazione del sito è il processo attraverso il quale l'informazione è acquisita da un sito per fornire inputs nel processo di progettazione e supportare lo sviluppo e la dimostrazione di un *SAFETY CASE*.

La caratterizzazione del sito comprende diversi stadi che variano nei diversi programmi di gestione dei rifiuti radioattivi in depositi geologici profondi, ma che tipicamente includono:

- una fase iniziale di studi “a tavolino”, compresi studi di letteratura scientifica;
- una fase di indagini basate sulla superficie, compresa la mappatura di superficie;
- perforazione, campionamento e test di pozzi; studi geofisici (sismici, elettromagnetici, ecc.)
- una fase di indagini sotterranee, con un URL costruito allo scopo a o vicino al sito del deposito e/o durante la costruzione programmata del deposito stesso

Queste fasi diverse tipicamente si sovrappongono in qualche misura (ad esempio, studi sismici possono continuare dopo l’inizio delle indagini sotterranee). Essi sono anche condotti iterativamente con le attività di progetto e di valutazione di sicurezza; gli esiti di ciascuna fase di progetto e di valutazione di sicurezza sono tipicamente usati per condurre la successiva caratterizzazione del sito, i cui risultati sono usati in ulteriori raffinamenti dei progetti e aggiornamenti della valutazione di sicurezza. La programmazione precisa e la cadenza delle iterazioni dipenderanno da un ampio numero di fattori, compresi la disponibilità di apparecchiature e personale, requisiti regolatori, applicazioni di pianificazione e influenze politiche. Pianificare ed eseguire una caratterizzazione del sito presenta pertanto molte difficoltà, non meno della decisione (e giustificazione) di aver raccolto sufficienti informazioni di un particolare tipo.

I tipi di dati che devono essere ottenuti nella caratterizzazione di un sito sono tipicamente diversi, e comprendono:

- dati geologici (informazioni di base circa le distribuzioni spaziali di diverse litologie, e caratteristiche e distribuzioni delle strutture geologiche);
- dati caratteristici delle rocce, compresi informazioni mineralogiche, porosità delle rocce;
- dati idrogeologici, compresi conduttività idrauliche, porosità delle rocce e mappa delle acque sotterranee;
- dati geochemici, compresi le analisi delle acque sotterranee, analisi dei gas naturalmente presenti, analisi minerali e analisi dell’intera matrice rocciosa;
- dati geofisici basati sulla superficie, compresi dati sismici, elettromagnetici e gravimetrici;
- dati geofisici sui pozzi, compresi dati sismici tomografici, dati di temperatura e conduttività elettrica.

Il programma di caratterizzazione del sito dovrebbe essere progettato così che attività differenti siano svolte nella maniera più efficiente possibile significando che idealmente il programma di caratterizzazione del sito dovrebbe produrre solo dati che sono utili ai suoi vari stakeholders e in particolare ai team di progettazione e di valutazione di sicurezza del deposito.

Le applicazioni di informazioni che sono ottenute dalla caratterizzazione del sito saranno diverse a seconda del ruolo che la geosfera gioca nel *SAFETY CASE*. Chiaramente, se il *SAFETY CASE* si basa sulla barriera di geosfera allora la caratterizzazione del sito richiederà di acquisire dati che consentano che questa funzione di barriera sia dimostrata.

Alternativamente, nel caso estremo in cui il *SAFETY CASE* si basa in larga misura sulle prestazioni del sistema EBS (caso Svedese), la caratterizzazione del sito dovrà dimostrare che le condizioni di



geosfera siano appropriate per il funzionamento adeguato degli EBS. Se la principale funzione della geosfera è proteggere gli EBS e assicurare che funzioni come voluto, allora l'area di indagine potrebbe essere più ridotta che nel caso in cui la geosfera abbia un ruolo di barriera. Come per tutti gli aspetti di un deposito geologico profondo, le indagini richieste saranno specifiche per il concetto di deposito e per il particolare sito. Il progetto dell'indagine del sito (area coperta, tecniche usate, focus relativo sulla roccia ospite rispetto a sequenza di copertura e così via) varieranno in base all'ambiente geologico. Sebbene ci siano somiglianze tra i programmi per ambienti diversi, non esiste un progetto "one size fits all".

Per il programma di indagine del sito. Ad esempio, caratterizzare rocce ospiti ignee fratturate implicherà un maggior sforzo nella caratterizzazione della frattura che richiederà:

- test idraulici sulle fratture identificate nel nucleo roccioso e/o una misura continua delle proprietà della formazione;
- campionamento delle acque sotterranee dalle fratture identificate nel nucleo roccioso e/o una misura continua delle proprietà della perforazione;
- data petrografici e mineralogici dalle fratture singole.

Al contrario, la caratterizzazione di un'argilla plastica implicherà il conseguimento di dati sulle acque interstiziali che richiederanno:

- campionamento di rocce in modo da minimizzare le perturbazioni (ad esempio, rimozione dai carotieri in condizioni anaerobiche seguite da sigillatura immediata dall'atmosfera per prevenire l'ossidazione);
- compressione della roccia per rimuovere l'acqua interstiziale.

Per alcuni ambienti, un'ampia area geografica può necessitare di essere indagata per capire sufficientemente l'ambiente geologico e idrogeologico e ottenere i dati necessari per un safety case. In generale, più è permeabile la roccia ospite e le formazioni rocciose circostanti, maggiore è l'area da investigare.

Ottenere sufficienti informazioni per sostenere la considerazione di una particolare combinazione di forma di rifiuto/EBS/ambiente geologico, attraverso un processo regolatorio e di siting graduale potrebbe essere un fattore vincente nella scelta del sito. Sarà necessario identificare a uno stadio anticipato quelle osservazioni sulla caratterizzazione del sito che saranno richieste per discriminare tra i potenziali siti candidati o che dimostreranno chiaramente che un sito non è adatto per ulteriori indagini.

Alcuni ambienti saranno più difficili e richiederanno più tempo per essere investigate rispetto ad altri. In più, alcune combinazioni potrebbero non essere praticabili. Ad esempio, sarà difficile raccogliere sufficienti informazioni per affermare con sufficiente confidenza che graniti fratturati in superficie è una roccia ospite adatta per un deposito di grandi volumi di ILW con un EBS che non fornisce un sostanziale contenimento.

In generale, ambienti geologici che sono più facili da investigare sarebbero preferibili ad ambienti più complessi, a parità di tutti gli altri fattori. Ci sono probabilmente minori incertezze in ambienti più semplici. Quelle incertezze che si presentano possono probabilmente essere ridotte più velocemente. Questa preferenza per la semplicità si riferisce anche alla praticabilità di esecuzione del programma di indagine (ed è chiamata “esplorabilità” di un sito dal NAGRA).

Collegata alla caratterizzazione del sito è l’abilità di raccogliere dati che fornirebbero prove convincenti di aspetti e processi che raccomanderebbero il sito per lo sviluppo di un deposito. Tali aspetti includono stabilità meccanica, geochimica e idrogeologica, movimento lento delle acque sotterranee e adatte condizioni redox a lungo termine in profondità. La possibilità di ottenere tali informazioni varia significativamente tra diversi ambienti geologici.

Potrebbe essere difficile ottenere il livello richiesto di comprensione senza effettuare indagini in un URL, anche se le formazioni di roccia di interesse sono esposte alla superficie. In più, sarà necessario sviluppare una comprensione adeguata del sito in 3D, che può essere enormemente facilitata dal reperimento di dati da un URL. Molte masse rocciose e i relativi parametri idrogeologici sono specifici del sito e non possono essere semplicemente dedotti da siti apparentemente analoghi in altre parti, così il vantaggio di avere un URL di ricerca separato potrebbe essere limitato in termini di caratterizzazione del sito (sebbene distintamente vantaggioso per altre ragioni, quali lo sviluppo di metodi per l’acquisizione di dati e formazione del personale). L’esperienza punta alla necessità di un URL sul sito proposto per il deposito, possibilmente in aggiunta a un URL di ricerca separato. Il livello di dettaglio con cui la roccia ospite deve essere caratterizzata dipende dall’ambiente geologico e il progetto di EBS proposto. Se la roccia ospite mostra una significativa eterogeneità su una scala spaziale molto minore di quella di una cavità/modulo (quali zone di frattura, che sono idrogeologicamente o geotecnicamente significative) allora potrebbe essere necessario caratterizzare queste strutture in modo deterministico su una scala spaziale simile. Ciò potrebbe essere problematico per una roccia ospite fratturata con una spessa copertura sedimentaria che riduce l’efficacia di tecniche di *remote imaging*. D’altro canto, in litologie relativamente uniformi quali certe argille plastiche, potrebbe essere adeguato caratterizzare il sito a scale spaziali più grandi, possibilmente comparabili alle singole cavità (decine di metri). Una tematica aggiuntiva collegata alla caratterizzazione del sito è la disponibilità di appropriati monitoraggi prima dell’inizio della costruzione, durante la costruzione e l’esercizio e la successiva chiusura. Le difficoltà che si affrontano durante il programma di monitoraggio includono:

- definizione di appropriati indicatori di monitoraggio che possano essere interpretati in maniera non ambigua;
- specifica e installazione di strumentazione che opererà sotto le condizioni di deposito o in profondità nella geosfera per periodi di tempo molto lunghi (centinaia di anni o più);
- assicurazione che ciascun sistema di monitoraggio non possa fornire un percorso potenziale alla superficie durante il periodo post chiusura, che significa che non sarà possibile rimpiazzare o aggiornare i componenti quando si guastano o diventano obsoleti.

Inoltre, poiché non ha senso raccogliere dati di monitoraggio che indicano che una quantità misurata sta cambiando, occorre prevedere un'attività che definisca i valori di soglia che indicano che il sistema non sta evolvendo secondo il progetto e che qualche intervento è richiesto.

#### **4.8 Dimostrazione della stabilità del deposito a lungo termine**

Dimostrare la stabilità a lungo termine potrebbe essere un elemento importante sia dell'indagine di sito che dei programmi di ricerca. Potrebbe essere necessario dimostrare un ampio intervallo di diversi tipi di stabilità:

- geologica;
- sismica;
- geotecnica;
- idrogeologica;
- geochimica.

Il termine "stabilità" non è lo stesso di "predicibilità" e non necessariamente significa che il sito rimanga inalterato nel tempo. Il termine "stabilità" nel contesto della gestione dei rifiuti radioattivi significa che i cambiamenti avvengono con sufficiente lentezza da assicurare che non ci siano conseguenze negative per la sicurezza nel quadro temporale di una valutazione di sicurezza. NEA (2008) afferma che *"la stabilità di una roccia dura fratturata è stata ampiamente definita come la presenza di condizioni termiche, idrogeologiche e meccaniche considerate favorevoli per la sicurezza di un deposito di rifiuti nucleari"*.

Per lo smaltimento di rifiuti radioattivi, la stabilità non implica che esistano condizioni stazionarie; la geosfera è costantemente in evoluzione e tale evoluzione è perfettamente accettabile per un sicuro smaltimento geologico. Ciò che è importante è che questa evoluzione sia ben compresa e prevedibile con contenuti margini di incertezza. Così, i cambiamenti futuri devono essere "predicibili" affinché si dimostri che un sito è "sufficientemente stabile". Comunque, "predicibile" non significa che gli effetti di tutti gli aspetti del cambiamento possano essere stimati accuratamente, ma purtroppo che essi siano mostrati giacere entro limiti accettabili. Da queste definizioni segue che molti siti che sono inerentemente transitori possano essere adeguati come ospiti per un deposito geologico profondo.

#### **4.9 Impatto della risaturazione**

Quando il deposito è finalmente chiuso, esso tenderà a risaturarsi. La scala temporale per la risaturazione varia significativamente tra diversi ambienti geologici e progetti degli EBS, con previsioni che spaziano da pochi anni a molte migliaia o anche centinaia di migliaia di anni.

I controlli sulla durata del periodo di risaturazione includono:

- il flusso delle acque sotterranee attraverso la roccia;
- il volume vuoto da essere risaturato, che è una funzione del progetto e del layout;
- Il grado in cui il deposito in risaturazione è pressurizzato dai gas generati nel deposito;

- le proprietà degli EBS, compresi i liners e così via;
- Il grado in cui la roccia ospite è diventata desaturata durante la fase operativa, che è una funzione delle proprietà della roccia ospite, del progetto degli EBS e delle condizioni operative (ventilazione e così via);
- Il grado in cui la roccia è stata chimicamente e fisicamente alterata durante questa fase.

Gli ultimi due fattori dipendono probabilmente dalla lunghezza del periodo operativo, con effetti maggiori per periodi di esercizio più lunghi, mentre la relazione tra la generazione di gas e la risaturazione è più complessa. Nelle cavità dove c'è un potenziale significativo per la generazione di gas, ci potrebbe essere un accoppiamento complesso tra risaturazione e generazione di gas. L'acqua dalla risaturazione è un controllo preminente sui processi di generazione di gas, ma una crescita della pressione dei gas nella cavità potrebbe inibire la risaturazione. Comunque, è generalmente atteso che almeno alcuni gas saranno generati prima che avvenga una risaturazione, dovuta ad alcuni rifiuti e/o alla degradazione della barriera che è facilitata da:

- condizioni atmosferiche umide dentro il deposito;
- presenza di acqua residua dentro certi rifiuti e/o componenti di barriera (specialmente cemento).

Come conseguenza di questo processo, la generazione di gas che è indipendente dalla risaturazione potrebbe influenzare il rateo di risaturazione. Mentre avviene la risaturazione, i radionuclidi non possono lasciare il deposito per avvezione o diffusione. Comunque, una risaturazione relativamente rapida potrebbe essere necessaria per assicurare il funzionamento corretto degli EBS, poiché gli EBS sono probabilmente ottimizzati per condizioni a lungo termine (saturate e riducenti). Ciò ha potenziali implicazioni per le strategie che pianificano di tenere le cavità aperte per una lunghezza di tempo successiva al posizionamento dei rifiuti. In questo caso potrebbe essere necessario progettare un EBS che può funzionare sotto due diversi insiemi di condizioni ambientali. Una tale strategia è probabile però che aggiunga costi e incertezze.

La comprensione del rateo di risaturazione è particolarmente importante per predire l'evoluzione dei buffers di bentonite compatta. Una rapida risaturazione è favorevole poiché:

- consente alla bentonite di raggiungere la piena pressione di rigonfiamento, massimizzando in tal modo la sua capacità di funzionare come sigillante;
- migliora la conduttività termica della bentonite.

Se un buffer di bentonite si risatura più lentamente di quanto consentito da progetto, esso potrebbe non essere in grado di asportare adeguatamente il calore dai waste canister e potrebbe diventare "cotto". Questo surriscaldamento ridurrebbe la pressione di rigonfiamento, faciliterebbe la formazione di cricche e potrebbe condurre a redistribuzione di massa (specialmente di silice) causando scioglimento e precipitazione di minerali, e trasporto di massa (lungo il gradiente termico) dentro il buffer. Tutti questi processi possono pregiudicare la funzione del buffer.

Su più larga scala, comprendere la dipendenza delle proprietà dei materiali, in particolare della conduttività termica, dalla saturazione è importante per determinare il layout del deposito per i rifiuti che generano calore, specialmente quando il picco termico avverrà durante o prima della fine della risaturazione. La maggior parte dei modelli assumono una risaturazione uniforme ma questo è improbabile che sia il caso pratico. Ad esempio, gli esperimenti di risaturazione eseguiti da SKB hanno mostrato una larga variazione tra fori di deposizione adiacenti e le implicazioni di questa eterogeneità per il *SAFETY CASE* a lungo termine non sono ancora chiari.

#### **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 4.**

[1]S.Watson, T.McEwen, G.Thomson, *Technical issues associated with deep repositories for radioactive waste in different geological environments*, NWATQuintessa meeting, 3 Jan 2008.

## **5. STATO DELL'ARTE SULLA SOLUZIONE DELLE PROBLEMATICHE TECNICHE NELLO SMALTIMENTO DI RIFIUTI RADIOATTIVI IN DEPOSITI GEOLOGICI.**

### **5.1 Influenza delle diverse tipologie di rifiuti nella progettazione delle barriere ingegneristiche alla migrazione di radionuclidi.**

Le organizzazioni nazionali responsabili della gestione dei rifiuti radioattivi hanno sviluppato progetti di sistemi di barriere ingegneristiche o Engineering Barrier System (EBS) adattati a funzionare con determinati tipi di rifiuti radioattivi tenuto conto dei particolari ambienti geologici presenti nei rispettivi paesi.

Probabilmente, sia l'aspetto normativo sia il contesto ambientale, in cui il deposito deve essere situato, costruito e gestito influenza il progetto di un EBS almeno quanto le caratteristiche dei rifiuti stessi [1].

In generale, i programmi di gestione dei rifiuti radioattivi si affidano in misura diversa sull'EBS e sui sistemi delle barriere naturali. Inoltre, il periodo durante il quale l'EBS deve assicurare le sue funzioni protettive può variare tra i programmi stessi, come diretta conseguenza dei diversi ruoli della geosfera rispetto alla sicurezza globale del deposito e dei diversi regimi normativi; alcuni dei quali pongono un limite di tempo prefissato dove valutare il potenziale rilascio, mentre altri, per esempio, stabiliscono un criterio basato sulla verifica di un *SAFETY CASE* dove occorre dimostrare la capacità del sistema di non superare un valore massimo di dose o di rischio.

Nei diversi paesi, nella definizione di EBS sono inclusi diversi componenti. Per esempio, nelle valutazioni preliminari di sicurezza per il Waste Isolation Pilot Plant (Wipp) in New Mexico, USA, i contenitori dei rifiuti non sono considerati agire come barriere artificiali [2]. Al contrario, il generico (non situato specificatamente) sito giapponese descritto nel programma del Japan Nuclear Cycle Development Institute [3], definisce l'EBS includendo solo i componenti che agiscono come barriere al trasporto di radionuclidi, escludendo il riempimento e le guarnizioni.

Vi è una significativa variabilità tra i progetti di EBS per HLW e SF che sono stati proposti in diversi paesi [4]. Mentre molti paesi privilegiano un progetto che incorpora un buffer di bentonite, ONDRAF/NIRAS nel progetto per un deposito terziario di argilla plastica utilizza un buffer di cemento [5]. I progetti tedeschi per lo smaltimento di rifiuti in letti di sale prevedono un EBS, sufficiente solo per la sicurezza in fase di manipolazione [6].

Anche gli EBS suggeriti per lo smaltimento di ILW sono molto diversi da paese a paese [7]. Molti di questi sono a base di cemento, ma ci sono anche esempi in cui l'EBS è quasi assente, così come proposto dall'Ontario Power Generation (OPG) Canadese per lo smaltimento in depositi sottili di calcare [8], e queste variazioni sono una conseguenza sia della diversità delle rocce ospitanti che dalla quantità di rifiuti ILW considerati.

Ricerche approfondite sull'influenza della forma rifiuti nella progettazione dell'EBS sono state effettuate sia in programmi nazionali che in programmi internazionali di ricerca.

Tra il 2002 e il 2006, il gruppo di progetto NEA per l'identificazione di un *SAFETY CASE* ha cercato di contribuire a una maggiore definizione delle strategie per l'integrazione ottimale di progetto,

costruzione, collaudo, modellazione e valutazione delle prestazioni (Performance Assessment) di un EBS[1,9-10].

Il progetto NF-PRO (Near Field Project, 2003-2007), sviluppato all'interno del VI programma quadro, ha indagato i processi chiave attivi nella zona circostante e prossima al deposito (near field) e che influenzano il rendimento a lungo termine del sistema di smaltimento di un HLW/SF. L'obiettivo principale del progetto era di migliorare la comprensione dei processi chiave all'interno del campo vicino (volume fisico che circonda i rifiuti smaltiti), concentrandosi sull'identificazione delle funzioni richieste delle diverse componenti di un EBS.

Non essendoci grandi incertezze sull'influenza della forma dei rifiuti sull'EBS, le principali componenti di un EBS e le relative funzioni sono:

- *matrice dei rifiuti*, che assicura una forma stabile ai rifiuti, resistente alla lisciviazione e che fornisce tassi di rilascio di radionuclidi lenti nel lungo periodo;
- *contenitore/imballaggio*, che facilita la gestione dei rifiuti, la loro collocazione all'interno del deposito e la recuperabilità, e assicura il contenimento dei rifiuti per un periodo adatto alla particolare tipologia di rifiuto;
- *buffer/riempimento*, che stabilizza gli scavi e le condizioni termiche idrauliche e meccaniche (THMC), dotato di bassa permeabilità, diffusività e/o caratteristiche di ritardo del rilascio a lungo termine;
- altri componenti (ad es. strutture e guarnizioni di chiusura), realizzate per prevenire le emissioni attraverso gallerie, passaggi e fori e per impedire l'accesso al deposito dell'esterno.

I processi che controllano le funzioni di ogni componente di un EBS sono sufficientemente chiarite e comprese al fine di progettare un adeguato EBS per qualsiasi tipo di HLW/SF ed in qualsiasi ambiente geologico. Inoltre, la fattibilità della produzione e la corretta sistemazione dei componenti ingegnerizzati che sono stati proposti per sistemi di smaltimento ad oggi è stata confermata da esperimenti su larga scala [9].

Pertanto, gli obiettivi principali della ricerca in corso sono:

- dimostrare la fattibilità complessiva della progettazione, cioè dimostrare la fattibilità della collocazione di un gran numero di contenitori di rifiuti all'interno di un vero e proprio deposito e di attuare le disposizioni generali per la sicurezza a lungo termine;
- costruire un elevato grado di fiducia nella valutazione delle prestazioni e della sicurezza del progetto;
- ottimizzare la progettazione dell'EBS, in modo da ridurre gli elevati impatti ambientali come, ad esempio quelli derivati dalle escavazioni, senza compromettere la sicurezza.

Una serie di programmi internazionali hanno superato la fase in cui è dimostrata la generale fattibilità della costruzione di un EBS[11,12,13].Recentemente,sono in fase di progettazione i layout dettagliati di EBS per depositi che tengono conto delle esigenze del contesto locale e quelle specifiche dei rifiuti.

Nel Regno Unito, la direzione per la gestione dei rifiuti radioattivi dell'autorità per il decommissioning di impianti nucleari (NDA RWMD) si è, fino ad oggi, necessariamente concentrata



sugli aspetti generici del progetto di deposito, impostando la propria attività sulla valutazione di diverse proposte d'imballaggio basate essenzialmente su un concetto illustrativo per ILW/LLW [14,15] e su di una versione leggermente modificata del concetto KBS-3V-SKB per HLW/SF [16]. L'indicazione emersa da queste ricerche è stata inizialmente l'assunzione di un unico progetto di EBS per tutti i rifiuti all'interno di una determinata categoria (ILW o HLW / SF), senza varianti per soddisfare esigenze dei singoli tipi di rifiuti o di diverse tipologie di ambienti geologici. Solo ultimamente, NDA RWMD ha iniziato a indagare su di una gamma di concetti per l'EBS che potrebbero essere applicabili per diversi tipi di rifiuti e di ambienti geologici [4,7,17]. La NDA RWMD è attualmente impegnata nello studio e nello sviluppo di una strategia per ottimizzare la progettazione di EBS per condizioni geologiche locali e specifici tipi di rifiuti [18], e per la valutazione delle prestazioni dell'imballaggio proposto si è considerato come riferimento un ambiente geologico che comprende granito fratturato ricoperto da rocce sedimentarie. Una complicazione ulteriore nel Regno Unito, è che la forma dei rifiuti rimane ancora non completamente determinata per la presenza di elementi chiave come la grafite. Sono allo studio possibili modifiche della forma dei rifiuti per adattarli al meglio nei sistemi di smaltimento da utilizzare in Inghilterra e/o nel Galles. Molti degli imballaggi di ILW approvati da NIREX/NDA come idonei per lo smaltimento, sono di tipo ventilato per ridurre la potenziale sovra pressurizzazione all'interno dell'imballaggio. Queste prese d'aria comportano che gli imballaggi non possono assicurare il contenimento completo dei radionuclidi nel periodo di post-chiusura del deposito e costituiscono, inoltre, un facile percorso attraverso il quale le sostanze rilasciate da altri imballaggi possono entrare in contatto e questa possibilità dovrà essere presa in considerazione nel progetto finale di deposito.

## **5.2 Interazioni tra i diversi componenti del progetto.**

Di particolare importanza è la completa caratterizzazione dei parametri dei materiali reali che sono utilizzati in un EBS. Per esempio, le bentoniti hanno proprietà fisico-chimiche diverse e i risultati ottenuti per una determinata composizione di bentonite, non sono direttamente trasferibili ad un'altra [19].

Tra i diversi materiali della barriera di difesa in profondità che sono giustapposti gli uni agli altri, sono possibili interazioni che sono oggetto di ricerche, tra questi si ricordano:

- rame e bentonite;
- ferro / acciaio al carbonio e bentonite;
- leghe di metalli diversi e con differenti potenziali di riposo, dove il risultato è una corrosione galvanica di contatto;
- cemento e bentonite;
- cemento e acciaio inox.

Nel progetto europeo NF-PRO [20] è fornita una buona sintesi dei lavori sulle interazioni tra diversi materiali nel campo vicino di un deposito per HLW/SF, dove sono state identificate e studiate le interazioni più importanti in modo generale e singolarmente, ma si è dimostrato l'estrema

difficoltà o l'impossibilità di simulare le interazioni nelle reali condizioni di contenimento. Notevoli incertezze restano quindi nell'estrapolazione di dati sperimentali rispetto alle condizioni reali del deposito dopo la chiusura.

Le interazioni tra rame e bentonite non sono ben chiare, ma sono state identificate come una problematica importante nell'indagine in [21].

Le interazioni tra ferro/acciaio al carbonio e bentonite [22-26], sono state sufficientemente studiate. I risultati hanno indicato che, mentre si possono formare Fe-fillosilicati molto vicino l'interfaccia bentonite/ferro, riducendo così la capacità di rigonfiamento della bentonite, l'effetto complessivo è probabile che sia troppo localizzato per influenzare le prestazioni del buffer. Inoltre, gli spessi strati di prodotti di corrosione del ferro formati a livello di interfaccia tra il metallo e bentonite non sembrano essere presenti nei sistemi in cui la bentonite compattata è a diretto contatto con l'acciaio, dove si forma solo un sottile strato di prodotti di corrosione e il processo di corrosione (velocità) sembra essere controllato dal trasporto diffusivo delle specie in ferro.

Probabilmente le interazioni tra i componenti della barriera più studiate dalla maggior parte dei programmi di gestione dei rifiuti radioattivi nazionali sono quelle che possono aver luogo tra cemento e argilla [19]. In particolare nei programmi europei Ecoclay-I e II (Effetti del cemento sulle prestazioni barriera argillosa- Commissione europea, 2000-2005) sono stati valutati l'effetto di un plume alcalino sulla chimica e sulle proprietà mineralogiche del terreno e sulla migrazione dei radionuclidi rilasciati da un sistema di contenimento cementizio in argilla.

Le interazioni tra cemento e bentonite sono state comprese con un buon grado di prevedibilità. Il cemento agisce sulla bentonite principalmente tamponando il pH del liquido all'interno dei canali porosi a valori elevati (inizialmente >12,5). Gli effetti mineralogici reali dipendono dalla concentrazione di ioni OH<sup>-</sup> e il flusso di questi ioni nella bentonite. Tuttavia, i flussi dei cationi nel buffer (soprattutto Ca<sup>2+</sup>, Na<sup>+</sup>), almeno in parte regolano sia le caratteristiche delle alterazioni, che le proprietà fisiche del buffer.

Le funzioni di un buffer di bentonite altamente compattato possono essere influenzate da due importanti effetti inter-correlati dovuti all'elevato pH del pennacchio di minerali accessori:

- alterazione mineralogica dei componenti della bentonite, che comporta un'alterazione della sua capacità di contenimento e influenza la chimica dell'acqua interstiziale;
- effetti osmotici (diverse attività ioniche nella soluzione esterna e nell'acqua interstiziale) che dipendono dal pH esterno e influenzano la sequenza temporale di dissoluzione e precipitazione dei minerali.

Cementi a basso pH sono stati recentemente sviluppati per l'utilizzo in zone, dove ci sono preoccupazioni circa la possibilità di interazioni dannose con la bentonite. Si tratta di un'area di ricerca relativamente nuova, ma la modellazione iniziale indica che la quantità prevista di degrado è significativamente ridotta rispetto al cemento convenzionale [27-28].

Variazioni temporali della porosità, permeabilità e proprietà meccaniche della bentonite possono essere causate dalla interazione di fenomeni come la dissoluzione, precipitazione e reazioni di alterazione dei minerali e una maggiore e più globale compressione di questi cambiamenti è necessaria per valutare le implicazioni sulla sicurezza del deposito nel suo complesso.

Le maggiori incertezze si hanno sui seguenti fenomeni e aspetti:

- tassi di dissoluzione in ambiente alcalino;
- effetti del grado di compattazione della bentonite sulle reazioni mineralogiche, il che significa che i risultati di esperienze di laboratorio su bentoniti non compattate sono in qualche misura rappresentazioni inesatte dei processi in un buffer reale;
- effetti di alterazione sulle proprietà meccaniche della bentonite;
- effetti della chimica del pennacchio alcalino sui tassi di diffusione attraverso bentonite compattata;
- effetti del gas sulle interazioni.

In molti paesi l'attività di ricerca si sta concentrando sullo sviluppo di modelli previsionali ed interpretativi integrati con i dati disponibili, con particolare riferimento ai modelli accoppiati per la stima dell'alterazione delle caratteristiche protettive della bentonite.

Le interazioni tra cementi e gli acciai sono relativamente modeste e ben comprese. La velocità di corrosione di un acciaio è notevolmente ridotta nelle condizioni alcaline che sono attese nel campo vicino di un deposito cementizio e, in generale, la corrosione anaerobica degli acciai è un processo ben compreso e caratterizzato. Di contro, la corrosione degli acciai inossidabili è un fenomeno più complesso e questi processi verranno considerati nel paragrafo 5.5.

Una buona comprensione delle potenziali interazioni tra riempimenti cementizi e contenitori dei rifiuti in acciaio inox sono stati ottenuti da studi specifici [29-30]. In generale, queste interazioni sono da considerarsi positive in termini di sicurezza. Cioè, i tassi di corrosione dei contenitori per rifiuti metallici sono diminuiti dalle condizioni alcaline dell'acqua interstiziale all'interno del cemento, e anzi, questo è il motivo principale per l'utilizzo di cemento. Tuttavia, sono le interazioni tra i prodotti di degradazione dei rifiuti e il cemento che risultano essere ancora poco chiare.

A seguito di specifiche ricerche di laboratorio [31], la carbonatazione del cementizio di riempimento è stato invocato come un meccanismo per cui il  $^{14}\text{C}$  nella  $\text{CO}_2$  emessa da determinati rifiuti potrebbe essere bloccato con conseguente impedimento ad entrare nella geosfera. Tuttavia, vi è notevole incertezza nell'efficacia di questo processo. Anche se la ricerca è tuttora in corso, non è ancora stato dimostrato che il processo agisca nelle reali condizioni di confinamento. In particolare, si prevede che la  $\text{CO}_2$  migri preferenzialmente attraverso le fratture del riempimento cementizio e che reagisca solo con il cemento a esse adiacenti, per produrre calcite. Tuttavia, questo processo potrebbe effettivamente costituire una progressiva protezione del cemento da ulteriori reazioni, diminuendo la sua prevista efficacia come barriera alla migrazione di  $\text{CO}_2$ .

### **5.3 Interazioni tra EBS e roccia ospitante.**

Le attività di ricerca internazionali sulle interazioni tra EBS e roccia ospitante hanno riguardato principalmente l'evoluzione e le caratteristiche della *Excavation Damaged Zone* (EDZ) [32].

La EDZ potrebbe essere, dopo le sigillature, la più importante via di trasporto per i radionuclidi e tale comportamento sarebbe un problema potenzialmente maggiore nei graniti fratturati che in litologie meno fratturate e/o più plastiche. I risultati delle ricerche condotte in tal senso sembrano mostrare che la EDZ formi un percorso continuo ad alta permeabilità in rocce fratturate, anche se SKB ha concluso le sue attività con l'indicazione che un tale percorso appare improbabile [11].

D'altra parte, esperienze condotte nell'URL canadese a White Shell in Manitoba hanno mostrato chiaramente che la EDZ costituisce un percorso preferenziale di trasporto continuo [33]. Pur se questi risultati sono *site-specific* riflettono le caratteristiche di fratture naturali o dipendono dal locale campo di stress, il problema del comportamento nella EDZ deve essere risolto confrontando i risultati provenienti da siti diversi e utilizzando un approccio integrato. Fino a quando questa questione non sarà stata risolta, i casi di sicurezza devono essere condotti presumendo che la EDZ costituisca un percorso a maggiore permeabilità fino a 30 volte superiore a quella della roccia ospitante [11].

Vi è ampio consenso scientifico che un EDZ con una permeabilità maggiore si può sviluppare nelle zone contigue gli scavi nella roccia ospitante d'argilla indurita, ma che l'importanza dell'EDZ può essere limitata attraverso l'installazione immediata di un adeguato supporto. Ricerche condotte da ANDRA e Nagra, in particolare, indicano che con il tempo, lo scorrimento sembra richiudere le fratture con conseguente progressiva riduzione della permeabilità dell'EDZ[32,34-35]. Utilizzando le prove dall'URL di Monte Terri, Nagra è giunta alla conclusione che in argilla opalina l'EDZ è probabile sia ad auto-tenuta con una permeabilità che si riduce al di sotto di  $10^{-10}$  m/s in pochi decenni dopo il riempimento del tunnel[36].

Durante la prima parte del periodo post-chiusura, la presenza di una EDZ trasmissiva può essere un vantaggio in quanto offre un percorso di migrazione preferenziale per i gas, riducendo il rischio di dannose sovra pressioni. Tuttavia, è probabile che l'impatto negativo dell'EDZ sulla sicurezza post-chiusura del deposito diminuisca con il tempo[13,37].

In argille plastiche, il recupero è probabile che sia più rapido e l'EDZ non fornisce un percorso di trasporto preferenziale per i radionuclidi. In [35] sono riassunte le analisi che accompagnano i risultati di diversi esperimenti effettuati presso l'URL belga di Mol per indagare sulla formazione e il recupero dell'EDZ. Anche in questo caso, i risultati indicano la formazione certa di una EDZ, ma che la sua estensione e gravità può essere minimizzata attraverso opportune e attente tecniche di scavo. Significativi recuperi dell'EDZ sembrano avvenire su scale temporali che possono essere osservati in esperimenti a lungo termine (anni), ma gli impatti dei cambiamenti geochimici dovuti ad operazioni molto estese unitamente al calore sviluppato dai rifiuti smaltiti sul processo di recupero è ancora poco compreso, comunque l'attività continua attualmente a Mol, anche per sostenere il programma tedesco sul confinamento dei rifiuti radioattivi. Ricerche condotte presso la miniera di sale di Asse hanno dimostrato che la conducibilità idraulica dell'EDZ in salgemma si riduce a circa  $10^{-11}$  m/s in 100 anni (la permeabilità del sale inalterato è di circa  $10^{-14}$  m/s).

La seconda area d'interesse nelle ricerche relative allo studio delle interazioni tra EBS e roccia ospitante che ha ricevuto un'attenzione significativa nei laboratori di ricerca internazionali è l'impatto potenziale dei cementi sulle proprietà della roccia ospitante. Nonostante il ben noto e deleterio impatto dei fluidi nei cementi porosi sulle argille, sembra esserci un generale consenso che i cementi utilizzati nell'EBS di depositi di rifiuti radioattivi non hanno un impatto significativo sulle prestazioni della roccia ospitante. I sistemi di confinamento progettati da ANDRA prevedono un ampio uso di rivestimenti in calcestruzzo e il concetto di smaltimento di ILW ipotizza l'accatastamento di moduli di cemento in tunnel rivestiti in calcestruzzo. ONDRAF / NIRAS hanno

recentemente adottato un buffer di cemento per il loro concetto di smaltimento dei HLW/SF[4] e analogamente per gli ILW in letti di argilla [7].

Una maggiore attenzione è stata rivolta allo studio delle conseguenze di un possibile sviluppo di un pennacchio alcalino a valle di un deposito cementizio. Le due organizzazioni che sono state più interessate a queste interazioni sono SKB e NIREX Ltd. che hanno preso seriamente in considerazione le conseguenze dello sviluppo di un pennacchio alcalino dal loro deposito per ILW [38-39].

Probabilmente il corpo più significativo del lavoro in questo settore è stata effettuata da NIREX a sostegno della loro proposta di sviluppo di un deposito cementizio in rocce prevalentemente vulcano clastiche a Sellafield, caratteristico e rappresentativo dei concetti di smaltimento sviluppati in Gran Bretagna per un ILW e LLW [14,16,29-31,40].

Per analizzare le principali interazioni tra il pennacchio alcalino che ha origine nel riempimento cementizio e le rocce ospitanti, durante gli anni 90 NIREX ha condotto una ricerca approfondita sulle caratteristiche di questa zona disturbata, sviluppando modelli sperimentali e teorici anche a seguito di indagini di analoghi naturali a Maqarin nel nord della Giordania [30]. Tuttavia, questa ricerca si è concentrata sulle litologie tipiche di Sellafield (Nord West England) mentre ulteriori ricerche dovrebbero essere sviluppate prima di impiegare una barriera di cemento in rocce ospitanti diverse.

#### **5.4 Interazioni tra EBS e acque sotterranee, acqua interstiziale e impatti con soluzioni saline.**

Le interazioni tra acque sotterranee o acqua interstiziale e i materiali dell'EBS sono stati ampiamente studiate a livello internazionale e utilizzate nella *performance assessment* di diversi progetti di depositi [1-3,9,11-12,31,37,41-44].

I risultati di queste ricerche hanno consolidato una buona conoscenza dei principali fenomeni coinvolti e dell'entità degli impatti di acque sotterranee fresche o moderatamente saline sui materiali EBS, nonché i processi di degrado sui principali componenti (acciaio al carbonio, ferro, rame, bentonite, cemento / calcestruzzo e pietrisco)

Quando ci si riferisce ad acqua di salinità relativamente bassa (forza ionica più o meno confrontabile con l'acqua di mare), le interazioni tra i componenti EBS e l'acqua può essere modellato con ragionevole affidabilità, e molti studi hanno dimostrato che i cambiamenti chimici che si verificano in questo contesto possono essere previsti o riprodotti [19,45].

Intense e complete attività di ricerca sono state condotte, a livello internazionale sul fenomeno della corrosione dei componenti metallici con riferimento agli scenari tipici dei sistemi di smaltimento in profondità [17,46-47], e a seconda del concetto di smaltimento, i metalli che sono stati proposti per l'uso in un EBS sono ferro / acciaio e/o rame. In generale, sono stati considerati diversi metalli a base di Fe (soprattutto acciai al carbonio passivati e non passivati, acciai zincati o acciai INOX), ciascuno dei quali potrebbe presentare, nelle condizioni di riferimento, caratteristiche leggermente diverse per quanto riguarda il fenomeno della corrosione.

In ambienti con presenza di ossigeno, il ferro sarà ossidato in ossidi /idrossidi misti, con una composizione che dipenderà dalla composizione dell'acqua, e la struttura solida dell'idrossido può essere in grado di ospitare alcune specie disciolte nelle acque sotterranee, come il  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$  e  $\text{CO}_3^{2-}$ . In condizioni di assenza di ossigeno, il ferro è inizialmente corrosivo ad una fase di idrossido di ferro con la riduzione contemporanea di acqua e la liberazione di gas idrogeno e, successivamente, l'idrossido di ferro tenderà a trasformarsi in magnetite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) e a produrre più gas idrogeno.

Le caratteristiche precise della corrosione, in particolare il suo tasso e se il suo sviluppo è uniforme o localizzato (pitting), dipende dalla composizione della fase metallo e le acque sotterranee o interstiziali con cui viene a trovarsi in contatto. Nel complesso, i tassi di corrosione sono fortemente dipendenti dalla velocità con cui vengono trasportate le specie acquose da e lungo la superficie metallica, la disponibilità di  $\text{O}_2$  (se e quando presente), e la velocità con cui gli ioni  $\text{Cl}^-$  sono riforniti nelle acque sotterranee (gli acciai tenderanno a corrodersi più rapidamente se la concentrazione di  $\text{Cl}^-$  è alta).

Il tasso di corrosione del rame è influenzato da processi simili a quelli che influenzano il tasso di corrosione del ferro e il tasso al quale gli ioni solfuro sono forniti sulla superficie di rame è il parametro principale per il controllo della velocità di corrosione e sulle sue caratteristiche. In presenza di ossigeno il rame può ossidarsi, a seconda della composizione dell'acqua, a  $\text{Cu}_2\text{O}$ , idrossido di rame e/o idrossidi di rame contenenti altri anioni, per esempio, malachite ( $\text{Cu}_2\text{CO}_3(\text{OH})_2$ ) o atacamite ( $\text{CuCl}_2 \cdot 3\text{Cu}(\text{OH})_2$ ) e gli ioni cloruro stabilizzano il rame disciolto, sotto forma di anioni complessi, quali  $\text{CuCl}_2^{2-}$  e  $\text{CuCl}_3^{2-}$ .

Con soluzioni a pH sufficientemente basso in  $\text{Cl}^-$ , la corrosione del rame si verifica con  $\text{H}_2$ . Il campo di stabilità di  $\text{CuCl}_2 \cdot 3\text{Cu}(\text{OH})_2$  aumenta l'ampiezza dei rispettivi campi di stabilità di  $\text{Cu}_2\text{O}$  e  $\text{CuO}$ .

In condizioni di mancanza di ossigeno, la corrosione di rame sarà accompagnata da riduzione di acqua per produrre gas idrogeno, e le strutture solide nelle fasi idrossido conterranno cloruri al loro interno in concentrazioni dipendenti dalla concentrazione di  $\text{Cl}^-$  in fase acquosa.

Inoltre, se in acqua sono presenti solfuri, è possibile la corrosione del rame in  $\text{Cu}_2\text{S}$  e  $\text{CuS}$ , quindi, se ci sono alte concentrazioni di  $\text{SO}_4^-$  e in condizioni di riduzione potrebbe configurarsi uno scenario d'impatto negativo sulla longevità del rame.

Per quanto riguarda i componenti cementizi, questi sono sottoposti a lisciviazione e idrolisi in presenza di acque sotterranee [19,38,48]. Potenzialmente importante in materia di sicurezza saranno interazioni con  $\text{SO}_4$  disciolto nelle acque sotterranee, che possono influenzare la capacità chimica di buffering del cemento e le sue proprietà fisiche [19]. In particolare, la formazione di *ettringite* ( $3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3(\text{CaSO}_4) \cdot 32 \text{H}_2\text{O}$ ), *gesso da ettringite* ( $\text{CaSO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) e *mono-sulfoalluminato* ( $3\text{CaO} \cdot \text{Al}_2\text{O}_3 \cdot (\text{CaSO}_4) \cdot 12 \text{H}_2\text{O}$ ), può comportare la fessurazione del cemento.

Come per i precedenti aspetti, anche le interazioni tra bentonite e acqua interstiziale nella roccia circostante sono state notevolmente ricercate e studiate [3,19,49,50-52]. Lo scambio ionico ha luogo nella *smectite*, in particolare scambi di ioni  $\text{Na}^+$  con ioni  $\text{Ca}^{2+}$  dalle acque sotterranee con dissoluzione di *calcite* in *bentonite* e sono state riscontrate anche alterazioni di *smectite* in *illite*. In condizioni di elevata salinità, il funzionamento delle barriere di bentonite può essere

compromesso a causa della diminuzione della pressione di rigonfiamento della *smectite* rispetto a condizioni ambiente di acqua pura.

Rispetto agli impatti di acque moderatamente saline, gli impatti di acque altamente saline sulla maggior parte dei materiali dell'EBS sono più incerte. Ad esempio, anche se condizioni di acque sotterranee altamente saline sono riscontrate in depositi evaporitici, in questi casi viene dato un peso relativamente minore alle prestazioni dell'EBS in quanto è la geosfera che costituisce il principale ostacolo al trasporto e alla migrazione dei radionuclidi. L'EBS in barriere di evaporitici per HLW/SF è generalmente progettato per fornire elevati gradi di sicurezza solo nella fase di preparazione e di disposizione e non in quella post-chiusura. Al contrario, nel caso della WIPP in New Mexico, l'unico, rilevante e longevo componente dell'EBS è il MgO che viene utilizzato come riempimento. Per stabilire che questa barriera si comporta effettivamente così come previsto e richiesto è stata utilizzata (vd. [2]) una combinazione di studi sperimentali e modelli teorici basati sul cosiddetto 'approccio Pitzer' [53]. Per il deposito di rifiuti di Morsleben, i riempimenti e le guarnizioni per la stabilizzazione degli scavi, saranno realizzate da miscele cemento-sale [54].

Condizioni di acque altamente saline in roccia ospitante non-evaporitica sono state considerate in Canada sia nel programma di smaltimento per HLW/SF [14,55], che per LLW/ILW in strati geologici profondi nel programma intrapreso dal OPG a Bruce in Ontario [8]. Tuttavia, in questi casi le rocce ospitanti hanno permeabilità molto bassa e di conseguenza, le interazioni tra acqua salata e componenti dell'EBS sarà contenuto.

Per quanto riguarda studi e ricerche sul comportamento dell'EBS in presenza di alti flussi di acque in sotterranee altamente saline, le informazioni risultano relativamente sparse e disaggregate.

Una delle maggiori difficoltà causate dalla presenza di acqua salina (forza ionica maggiore dell'acqua di mare) è prevedere con precisione le reazioni che si possono verificare, in quanto:

- sono state condotte relativamente poche indagini sperimentali sulle potenziali reazioni dei materiali proposti per l'EBS in condizioni di smaltimento geologico profondo;
- i tradizionali approcci di modellazione termodinamica, come quello di Debye-Hückel [56] e le sue varianti, compresi i cosiddetti *B-DOT extension methods* [57], sono imprecisi a questi livelli di salinità;
- i dati termodinamici fondamentali e necessarie per svolgere previsioni teoriche sono carenti o di qualità scarsa e incerta.

Per questi livelli di salinità sono necessari altri approcci, come quello Pitzer, che come l'approccio Debye-Hückel, è rigorosamente valido solo se il sistema è in equilibrio. Un altro requisito è che i dati termodinamici utilizzati devono essere ottenuti in condizioni simili a quelle del modello, mentre per i casi di minerali dei confinamenti in formazioni geologiche profonde, pochi sono i dati disponibili per le barriere cementizie e metalliche e per specie sensibili ai fenomeni redox.

Il database Pitzer più completo a disposizione è quello sviluppato per il progetto Yucca Mountain [58]. Tuttavia, questo database non è ancora considerato internamente coerente dalla comunità scientifica.

Occorre considerare, tuttavia, che la presenza di acqua altamente salina, implica spesso bassi tassi di flusso delle acque sotterranee che risulta generalmente vantaggioso in materia di sicurezza, e

questi vantaggi dovrebbero essere integrati nei modelli assieme alle incertezze derivate dalla difficoltà di prevedere con sufficiente esattezza le reazioni chimiche dominanti.

Qualunque sia la salinità delle acque sotterranee e interstiziali, permangono incertezze nella cinetica di reazione. A basse temperature (in genere fino a qualche decina di gradi), come quelle che si misurano all'interno di una roccia ospitante, il sistema acqua-solido non è in equilibrio termodinamico (anche se alcuni minerali possono equilibrare con la coesistente fase liquida), e queste condizioni di squilibrio devono essere adeguatamente tenute in conto nei modelli chimici di riferimento.

Un'estensiva conoscenza della durata di acciaio inox e delle barriere di cemento in presenza di acqua salina è stata accumulata in UK [15,29]. Tuttavia, le salinità sotterranee massime indagate sono simili a quelle dell'acqua di mare (a Sellafield, il massimo di salinità delle acque freatiche della zona potenzialmente scelta per il confinamento è circa 0,8 volte quello dell'acqua di mare, pur rilevando che la vera origine di tale salinità non è marina). Per dimostrare la possibile realizzazione di un deposito per HLW nell'ambito Regno Unito, NIREX e RWMD NDA hanno studiato l'applicabilità del concetto KBS-3 disposizione SKB [16]. Semplici, semi-qualitative argomentazioni sono state fatte per dimostrare che le diverse composizioni delle acque sotterranee trovate nei potenziali percorsi che interessano le zone selezionate per il sito non influiscono negativamente sulle prestazioni di un deposito tipo KBS-3. Tuttavia, questi studi generici non hanno ancora considerato l'elevata salinità di acque sotterranee in alcune zone dell'Inghilterra e del Galles, in particolare all'interno di bacini Mesozoici in profondità che presentano livelli di solfati relativamente alti e che potrebbe diventare un problema se un sistema EBS utilizzasse contenitori di smaltimento di rame.

## **5.5 Durabilità dei materiali dell'EBS**

Questa conoscenza è stata riassunta in una vasta gamma di documentazioni di Performance Assessment di depositi geologici profondi [1-3,9,11-12,31,37,41-44].

L'ampia varietà di materiali utilizzati da diverse organizzazioni internazionali di gestione dei rifiuti significa che l'informazione è disponibile, per la maggior parte dei materiali d'interesse, in condizioni di laboratorio, mentre l'evoluzione di questi materiali nelle reali condizioni di smaltimento non è completamente compresa, anche se questo non è necessariamente un problema per la sicurezza perché le incertezze possono essere considerate e compensate, all'interno di una PA, con ipotesi prudenti e conservative.

Per esempio, è spesso scontato che acciai al carbonio si corrodono con relativa rapidità nelle condizioni di smaltimento geologico profondo con la produzione di uno spesso strato di prodotti della corrosione. Tuttavia, alcuni lavori sperimentali e teorici [25-26] hanno evidenziato che nessuno strato di prodotti della corrosione si forma quando, in condizioni simili a quelle di smaltimento geologico, acciai al carbonio sono in contatto con bentonite compattata e così, le incertezze di questo tipo possono essere trattate all'interno di una PA specificando un conservativo tasso di corrosione per i contenitori. In tal senso, le incertezze sembrano essere più



un problema per l'ottimizzazione dei progetti di deposito che per la dimostrazione che lo smaltimento è sicuro per tutto il tempo necessario.

Nell'analizzare il tema generale della durabilità di un EBS, gli argomenti e le problematiche rilevanti che emergono sono:

- la possibilità di cambiamenti sulle funzioni di barriera protettiva di particolari materiali per la durata di un progetto (nel concetto SKB KBS-3, solo nel 2006 è stata assegnata al buffer di bentonite anche la funzione di protezione da attacco microbico [11]);
- la possibilità di modifiche nei materiali da utilizzare per uno scopo particolare a seguito degli sviluppi tecnologici durante il progetto [11];
- l'eterogeneità delle barriere artificiali, per esempio, la distribuzione spaziale della densità e le proprietà idrauliche di argille, le caratteristiche e l'evoluzione delle fratture in cemento;
- le lacune nelle conoscenze sulla durata dei cementi in talune condizioni ambientali che potrebbero essere considerati per un deposito profondo (come i cosiddetti cementi 'lowpH' in condizioni altamente saline [28]);
- il gap sulla conoscenza nel modo in cui tali cementi interagiscono con altri materiali, per esempio, bentonite [28];
- i possibili utilizzi di materiali alternativi, oltre a quelli che sono stati tradizionalmente proposti per l'EBS, come i polimeri vedi discussione in [19];
- l'incompatibilità di alcuni tipi di rifiuti con alcuni EBS, per esempio, la possibile incompatibilità di bentonite con alcuni rifiuti produttori di gas;
- se la durata del sistema è basata sul concetto di *corrosione ammessa* (tipicamente contenitori in acciaio al carbonio per HLW/SF) o su quello di *resistenza alla corrosione* (tipicamente contenitori di rame con inserti in ghisa per HLW/SF).

In particolare per l'ultimo punto, le ricerche più recenti indicano che possono essere assicurate vite medie del contenitore dell'ordine di  $10^5$  anni utilizzando entrambi i concetti di corrosione.

Nel concetto di corrosione ammessa, i materiali del contenitore generalmente hanno una relativamente bassa resistenza alla corrosione. Tuttavia, questi materiali sono sufficientemente economici per essere usati con spessori adeguati per prevenire il fenomeno durante la vita desiderata e presentano anche una prevedibile velocità di corrosione. Nessuna corrosione localizzata come *pitting o crevice corrosion* è prevista e la loro produzione è assicurata da produzioni di tipo standard. Specifiche ricerche (come il NF-PRO progetto) indicano, per estrapolazione, velocità di corrosione a lungo termine talmente lente, che vite dell'ordine di  $10^5$  anni per i contenitori dei rifiuti sono plausibili.

Nel concetto di contenitore *resistente alla corrosione* i materiali hanno una elevata resistenza nell'ambiente a disposizione. Questi materiali si corrodono passivamente a una molto bassa e uniforme velocità di corrosione. Pertanto, uno spessore relativamente piccolo di tale metallo può essere utilizzato per ottenere la durata desiderata. La quantità relativamente piccola di materiale richiesto, almeno in parte compensa il costo tipicamente maggiore. Tuttavia, per questi materiali il rischio di corrosione localizzata, come la *pitting o crevice corrosion*, deve essere preso in

considerazione, perché la pellicola protettiva che conferisce a loro un basso tasso globale di corrosione può difettarsi localmente.

Se è prevista la recuperabilità dei rifiuti, questi diversi comportamenti avranno delle implicazioni per la durabilità di EBS materiali. Durante le fasi di pre e post-chiusura l'EBS è esposto a condizioni ambientali molto diverse tra loro. Può pertanto essere necessario dimostrare che i materiali sono durevoli con un numero di condizioni diverse.

Importanti lacune conoscitive emergono sugli impatti di un deposito che deve essere tenuto aperto per un lungo periodo, e quindi sulla nostra comprensione della durata dei materiali ingegnerizzati a cielo aperto e l'effetto sulla successiva fase di post-chiusura. L'impatto sulla durata della EBS in un deposito aperto per un lungo periodo viene considerato da ANDRA nel contesto del concetto di smaltimento francese [13].

Rispetto a molti programmi in altri paesi, la conoscenza delle prestazioni e la durata dei materiali in reali condizioni di confinamento in UK è relativamente poco sviluppata [15,30-31]. Una ragione di questo problema è che le esatte condizioni (come la chimica delle acque sotterranee, portate, temperature) dello scenario reale sono attualmente sconosciute. Sarà importante per caratterizzare questi parametri la programmazione di attività di ricerca su specifici materiali selezionati poiché, ad esempio, bentoniti differenti hanno differenti proprietà, così che i risultati ottenuti per una bentonite non sono direttamente trasferibili ad un'altra.

Un particolare problema affrontato dal programma di Regno Unito è la potenziale e relativamente rapida degradazione degli elementi che contengono metalli reattivi (principalmente trucioli di Magnox). Metalli reattivi incapsulati in cemento si corrodono e si gonfiano, con conseguente rottura e rapida degradazione dell'incapsulante di cemento. Questo processo è riconosciuto da tempo come un potenziale problema e i packages sono stati originariamente progettati per rimanere intatti per periodi di decine di anni per permettere un sicuro posizionamento all'interno del deposito previsto da NIREX [30]. Le prestazioni degli incapsulanti cementizi come barriera generalmente diminuiscono col tempo. Per promuovere la mobilità del cemento e garantire il riempimento dei vuoti prodotti può essere richiesto, alla produzione, l'utilizzo di cementi con super-plastificanti. Questi super-plastificanti possono anche essere richiesti nei riempimenti se previsti. L'utilizzo della tecnologia dei superfluidificanti è emersa significativamente dalle indagini di Sellafield, ma l'impatto di superfluidificanti attualmente in produzione sulla durata molto a lungo termine e sulla mobilità e il trasporto dei radionuclidi non sono ancora ben compresi.

## **5.6 Interazioni tra gas e acque sotterranee**

La ricerca internazionale sul comportamento del gas nei sistemi di confinamenti geologici profondi è meno maturo rispetto a quello sulle soluzioni acquose. La ragione principale è che non tutte le forme di rifiuti sono considerati essere potenzialmente in grado di causare problemi di produzione di gas. Per questo motivo, questo tipo di ricerca è stata intrapresa solo da quelle agenzie che intendono smaltire LLW/ILW, in particolare NIREX - UK, ANDRA - FR, NAGRA - CH, e USDoE per WIPP, hanno indagato [2,13,15,37] sulle interazioni tra gas e acque sotterranee o interstiziali all'interno e nei dintorni della EBS, e nella geosfera. Nel caso di HLW/SF, le interazioni che coinvolgono il gas e l'acqua interstiziale all'interno della EBS sono di importanza relativamente

maggior rispetto a quelle tra gas e acque sotterranee o interstiziali nella geosfera. In questi confinamenti, il gas  $H_2$  è generato principalmente dalla corrosione del metallo dei contenitori e, in misura minore dalla radiolisi dell'acqua. Di grande preoccupazione è il potenziale effetto di questo gas per l'integrità del buffer a bassa permeabilità e il riempimento di bentonite. Una considerevole mole di lavoro è stato fatto per dimostrare che il gas è in grado di migrare attraverso il buffer senza causare danni significativi [59-60].

I principali risultati evidenziati in queste ricerche sono:

- il gas può migrare attraverso i buffer di bentonite inizialmente saturi d'acqua;
- durante la migrazione del gas viene espulsa dal buffer una quantità non significativa di acqua;
- dopo la migrazione del gas, il buffer tende a risaturarsi;
- la proprietà di trasporto del buffer restano sostanzialmente inalterate.

Rispetto ai depositi per HLW/SF, quelli per ILW generalmente contengono grandi volumi di materiali potenzialmente in grado di generare gas. Questi materiali non includeranno solo metalli, sia come barriere che negli stessi rifiuti, ma anche grandi quantità di materiali isolanti. Così, uno degli obiettivi principali della ricerca sulla generazione di gas nei confinamenti profondi di rifiuti radioattivi è stato quello di garantire che le pressioni gas che si sviluppa non siano sufficienti a compromettere la integrità della EBS e delle rocce circostanti, in genere attraverso le seguenti azioni di progetto:

- assicurare che il confinamento (compresi eventuali buffer e riempimento) presenti un volume totale degli interstizi porosi sufficiente ad agire come un serbatoio di gas di grandi dimensioni;
- assicurare che il gas può lasciare il confinamento abbastanza facilmente;
- assicurare che il gas possa essere bloccato da reazioni con componenti cementizie dell'EBS;
- garantire che il gas non si accumuli in prossimità della superficie dell'ambiente, attraverso l'ubicazione del deposito dove ci sono barriere naturali alla migrazione di gas negli strati geologici sovrastanti la roccia ospitante, oppure in rocce che hanno proprietà idrogeologiche che favoriscono la dissoluzione del gas;
- assicurare che il gas non può lasciare il confinamento, ma che ciò non comporti una dannosa sovra pressurizzazione tenuto conto dei citati accorgimenti.

Diversi progetti internazionali hanno analizzato le interazioni tra gas e acque sotterranee:

- Rodwellin [61] ha riassunto le opinioni di GASNET, una rete di ricercatori che si occupano dei problemi del gas nelle valutazioni di sicurezza e nel PA di impianti e depositi estrattivi;
- NEA in [62], con una serie di workshop internazionali sulle questioni di sicurezza relative alla produzione di gas e la migrazione nello smaltimento dei rifiuti radioattivi;
- Rodwellin [63], ha prodotto una revisione della comprensione di flussi migratori gassosi e bifase attraverso barriere artificiali e geologiche in depositi in profondità per i rifiuti radioattivi;
- Horsemanin [64], hanno prodotto e riassunto una revisione dei processi fondamentali che regolano la migrazione di acqua, gas e soluti attraverso i media argillosa;

Ciascuno dei documenti di cui sopra considera produzione di gas nei depositi per tutte i principali tipi di rifiuti radioattivi (LLW, ILW e HLW/SF) e la migrazione del gas dai depositi stessi;

Ulteriori pubblicazioni scientifiche indagano sul possibile impatto della migrazione di gas sulla sicurezza e sulla PA di un deposito, fornendo raccomandazioni per ulteriori ricerche sulla generazione e migrazione di gas e sui problemi di inquinamento in biosfera e dove, pur concentrandosi sui temi della migrazione del gas, vengono indicati i principali modelli di generazione [61].

Al contrario, la relazione riportata in [64] si occupa dei fondamentali processi fisico-chimici che controllano la migrazione di gas attraverso sistemi di barriera argillosi, compresi quelli basati su bentonite e mudrocks naturale. La conclusione principale di questo lavoro indica che ulteriori ricerche dovrebbero essere intraprese per comprendere il meccanismo con il quale il gas si muove attraverso le argille. Questa raccomandazione si ripete nella relazione di Rodwellin [61].

NEA in [62] ha prodotto una panoramica generale e documenti separati su una serie di questioni relative alla produzione di gas e la migrazione in una varietà di litologie di roccia ospitante, compresi: argille non indurite, argille indurite, rocce cristalline e sale.

Aree chiave di interesse e affette da incertezza, risultano essere:

- la definizione di ipotesi veramente conservative sulle interazioni di gas e acque sotterranee, in considerazione della natura altamente accoppiata tra portate e interazioni chimiche;
- valutazione del grado di conservatività associato alla parametrizzazione delle caratteristiche specifiche e dei processi, per evitare valutazioni sulle future prestazioni del deposito non realistiche;
- il significato di eterogeneità nella generazione di gas all'interno del sistema di confinamento;
- l'accoppiamento tra flussi di generazione di gas, flussi delle acque sotterranee e possibile degrado per corrosione dei sistemi di contenimento dei rifiuti;
- l'accoppiamento del fenomeno del crollo dei vuoti di miniera nella roccia ospitante con i processi precedentemente elencati (in particolare per i sistemi di confinamento in sale);
- l'influenza della salinità sulla solubilità del gas (e quindi sul trasporto);
- la potenziale importanza di qualsiasi spazio tra il riempimento e la EDZ;
- la potenziale importanza della EDZ come percorso preferenziale per la migrazione del gas;
- dimostrazione dell'influenza del regime bifase del flusso nelle rocce cristalline fratturate rispetto ai processi rilevanti per la migrazione di gas nel contesto di un deposito di rifiuti radioattivi;
- la possibilità di futuri cambiamenti temporali nelle proprietà delle rocce.

Un vasto programma di ricerca sulle interazioni gas/acqua è stato sviluppato in UK per depositi ILW in rocce cristalline fratturate[14-15]. Tuttavia, il Regno Unito ha partecipato a vari programmi internazionali come GASNET [61] e Gambit [60] che hanno considerato nel dettaglio queste specifiche problematiche. Recentemente, in una recente revisione Quintessa per NWAT, è fornita una panoramica della situazione attuale nel Regno Unito [65] dove, in relazione alle problematiche del rilascio di gas da rifiuti ILW, è stata posta particolare attenzione sul rilascio di  $^{14}\text{C}$  dai rifiuti metallici e grafite. L'enfasi di questi lavori sembra essere il risultato di una combinazione d'ipotesi relativamente pessimistiche sulla generazione di gas e il fatto che la roccia fratturata in geosfera

considerata da NIREX nei suoi modelli offre un contenimento relativamente basso. Poiché la migrazione di gas nella geosfera è fortemente influenzata dalla struttura dettagliata del sito stesso, l'assenza di un sito specifico nel Regno Unito questo settore ha avuto scarsi progressi negli ultimi anni. Recenti lavori di NIREX e NDA hanno continuato a utilizzare il set di dati di Sellafield [66] perché non c'è altro sito che ha il necessario livello di dati dettagliati e questo lascia inalterato il problema di come applicare ed utilizzare i risultati dello studio ad altri siti.

## 5.7 Caratterizzazione del sito

Gli attuali metodi e le moderne tecnologie sono in grado di caratterizzare un luogo in modo sufficiente per costruire e licenziare un deposito in profondità per diverse varietà di rocce ospitanti diversi[2,11-12,67]

Un programma di successo nella caratterizzazione dei siti granitici è stato sviluppato da SKB in Svezia per il deposito LLW/ILW. SKB ha anche completato la caratterizzazione di due siti potenziali per un deposito HLW/SF, entrambi i siti hanno graniti fratturati come rocce ospitanti.

Allo stesso modo, in Finlandia, il caratterizzazione di un sito di deposito potenziale di HLW/SF è in fase avanzata e non ha riscontrato problemi significativi.

Anche se i programmi di realizzazione di depositi in argille indurite e plastiche sono meno avanzati, in diversi paesi si è comunque dimostrato che è possibile caratterizzare queste litologie in modo sufficientemente adeguato per la progettazione e il PA del deposito stesso.

Per esempio, ANDRA in Francia ha chiaramente dimostrato con le attività svolte nel URL a Bure, [65,68]che è possibile caratterizzare un ambiente di argilla indurita al livello richiesto per sviluppare significative strutture sotterranee.

Allo stesso modo, approfondite indagini sono state intraprese in Svizzera, in particolare nel URL nel Traforo del Monte Terri [69] e aWellenberg [70]. Queste indagini hanno portato allo sviluppo e alla sperimentazione di una vasta gamma di tecnologie e procedure di caratterizzazione tecnica, come per le strutture porose di profondità. I metodi che sono particolarmente adatti per le argille plastiche sono stati sviluppati dal Centre d'Etude de l'Energie Nucléaire (SCK / CEN) in Belgio, in particolare presso l'URL a Mol [71].

Molto meno sviluppata è l'esperienza sulle indagini per la caratterizzazione di calcare come rocce ospitanti. Tuttavia, OPG ha da qualche anno iniziato le operazioni di caratterizzazione di una formazione rocciosa calcarea in un sito proposto per LLW/ILW a Bruce in Ontario [8].

Indagini nelle miniere di Konrad in Germania hanno, invece, già portato a licenziare con successo i relativi progetti di confinamento [67].

In molti paesi, al fine di migliorare la comprensione sul comportamento e sulla caratterizzazione delle rocce ospitanti è stato fatto largo uso di Underground Research Laboratory URL, e in linea generale sono stati seguiti due diversi approcci:

- realizzazione di uno o più URL situati non sul luogo dove si ipotizza sarà costruito il deposito e con l'obiettivo di:

- sviluppare metodi di indagine su rocce che sono simili a quelle potenzialmente identificate come rocce ospitanti il deposito;
- migliorare la comprensione delle proprietà generali delle rocce ospitanti potenziali (come la variabilità tridimensionale nelle caratteristiche delle fratture su differenti scale spaziali);
- sviluppo di un URL sul sito previsto per il deposito, o immediatamente adiacente a questo sito, con le stesse finalità di cui sopra, ma con l'ulteriore scopo di fornire informazioni specifiche ed estremamente caratterizzanti .

Esempi del primo tipo di URL sono:

- ASPO, Svezia, situato in rocce cristalline (principalmente granitiche), nei pressi di uno dei siti considerati come un possibile centro di smaltimento di HLW/SF, ma sviluppato molto prima che questo sito fosse suggerito;
- WhiteShell, Manitoba, in Canada, situato in rocce cristalline (granitiche);
- Tono, Giappone centrale, che si trova all'interno di rocce cristalline (granito) e situato sotto una roccia sedimentaria di copertura;
- Grimsel, in Svizzera, , situato in rocce cristalline (granitiche);
- Tunnel Mont Terri, in Svizzera, che si trova in gran parte in fango indurito;
- Mol, in Belgio, che si trova in argilla plastica;
- Horonobe, nel nord del Giappone, che si trova in gran parte in diatomee indurite e fango indurito;
- Asse Mine, Germania centrale, che si trova prevalentemente in salgemma.

Esempi del secondo tipo di URL sono:

- ONKALO, Finlandia, situato in rocce cristalline (granitiche) e adiacente al proposto deposito HLW/SF di Olkiluoto;
- Bure, in Francia, che si trova in fango indurito, adiacente al proposto deposito HLW/SF di Bure (anche se il deposito finale dovrebbe potenzialmente essere situato più lontano, in un'area di circa 250 km<sup>2</sup>, che circonda l'URL Bure);
- Yucca Mountain, che si trova nelle rocce vulcano clastiche all'interno di un volume di roccia che entrerà a far parte del deposito HLW/SF proposto a Yucca Mountain;
- Rokkasho, nord-est del Giappone, che si trova in strati argillosi e arenacei e rocce sedimentarie e adiacente a un proposto deposito LLW di lunga durata;
- Gorleben, in Germania, che si trova prevalentemente in salgemma.

Due aree in cui la maggior parte dei programmi di ricerca svolti nei URL di cui sopra riguardano:

- il modo più appropriato per caratterizzare l'eterogeneità e l'incertezza e come determinare criteri condivisi per definire se i dati sono stati raccolti siano o meno sufficienti;
- lo sviluppo di sistemi di monitoraggio a lungo termine che devono assicurare un corretto e adeguato funzionamento durante un lungo periodo di monitoraggio necessario dopo la sigillatura del deposito.

## 5.8 Stabilità geologica a lungo termine

La presenza di condizioni geologicamente stabili ad elevate profondità è un elemento importante per assicurare che i rifiuti radioattivi possono essere smaltiti in modo sicuro. La geosfera è in continua evoluzione, anche se in molti casi piuttosto lentamente, soprattutto in profondità, e tale evoluzione è perfettamente compatibile con un sicuro smaltimento geologico dei rifiuti radioattivi. Il concetto di stabilità geologica implica che i cambiamenti nel sistema geologico avvengano in una misura e a un tasso che i loro effetti sono difficilmente tali da compromettere la sicurezza a breve o a lungo termine del sistema di confinamento. Quello che forse è di grande importanza a questo riguardo è capire se la conoscenza attuale sull'evoluzione dei sistemi geologici stia trascurando dei fenomeni che potrebbero avere effetti negativi sulla sicurezza di un deposito profondo.

La stabilità del sistema idrogeologico e idrogeochimico è più difficile da studiare, ma vi è un notevole consenso di tutto il mondo scientifico che tale stabilità è possibile dimostrare. Nel recente passato, sono stati organizzati due seminari NEA sulla stabilità, il primo su rocce argillose [72] e il secondo su rocce cristalline [73].

Le dimostrazioni sulla stabilità a lungo termine del sistema geosfera in cui il deposito è ospitato ha ricevuto notevole attenzione negli ultimi anni. Questi sforzi si sono indirizzati specialmente agli ambienti nord-europei che sono stati in ere precedenti dei ghiacciai, ma anche nelle aree con rocce a bassa permeabilità, dove i carichi in profondità sono probabilmente in disequilibrio con le attuali condizioni superficiali poiché l'orizzonte temporale lungo cui le forze motrici (carico di ghiaccio e altri) variano è più breve rispetto al periodo in cui la roccia può rispondere. Questo si applica a ogni roccia che ha una conduttività idraulica minore di circa  $10^{-10}$  m/s che è improbabile avere recuperato dall'ultima glaciazione. Pertanto, nel processo di dimostrazione della stabilità a lungo termine è spesso il caso di stabilire il grado di squilibrio rispetto alle condizioni attuali di superficie e poi dimostrare il grado con cui il sistema si è evoluto dall'ultima glaciazione, ma tutto questo è, tuttavia, complicato per molte rocce poiché lo stesso squilibrio rispecchia i precedenti eventi.

Le conoscenze scientifiche sulla stabilità a lungo termine variano da paese a paese, secondo la tipologia di ambiente considerato, e i potenziali impatti ambientali delle eventuali variazioni sul *SAFETY CASE*. Ad esempio, la previsione dei tempi e la natura delle future glaciazioni è di fondamentale importanza nelle valutazioni di sicurezza per un deposito ospitato in un ambiente di roccia cristallina nel nord Europa (Svezia), dove il cambiamento delle condizioni della superficie potrebbero avere un impatto diretto sulle condizioni del EBS [74]. Mentre, questi cambiamenti possono essere di minore importanza per un deposito che si trova in una formazione di fango indurito, come a Bure in Francia [75], o in argilla plastica, come l'argilla della regione di Boom in Belgio [44]. La ragione principale è che le argille plastiche tendono ad avere una permeabilità molto bassa e ciò impedirebbe la penetrazione delle acque di ricarica in prossimità dei rifiuti, inoltre fango indurito e soprattutto argilla plastica tendono a non subire deformazioni fragili durante il carico e lo scarico dei ghiacciai. Di conseguenza, è improbabile che l'alternarsi delle fasi di glaciazione e de-glaciazione generi nuovi futuri percorsi per il fluido attraverso una roccia ospite

di fango indurito o argilla plastica. E' anche probabile che questa bassissima permeabilità delle argille in profondità le renda meno sensibili ai cambiamenti esogeni. In definitiva, considerazioni sulla stabilità geologica indicano una maggiore prestazione di conservazione a lungo periodo in argille rispetto a rocce dure fratturate.

A livello internazionale, è stata condotta un'ampia ricerca sulle argille come rocce ospitanti di un deposito profondo. Questa ricerca ha coperto un ampio spettro di supporti argillosi, tra cui argille plastiche, morbide, argille poco indurite, peliti dure e scisti e le proprietà di tali litologie sono riassunte nel rapporto NEA [76].

Esempi di studi specifici sono:

- indagini su anghi induriti in Svizzera durante la Nagra Mont Terri Project [69] e al Wellenberg [70,77];
- indagini su fanghi induriti in Francia a Bure, da ANDRA in [13];
- indagini su argille plastiche a Mol, in Belgio dalla SCK/CEN [71];
- indagini su fanghi ricchi in silice (diatomee) da JAEA a Horonobe, Giappone [78-79];

Come risultato di questi e altri studi si è ottenuta, nell'ambito degli esperti di valutazioni sulle performance di depositi geologici profondi di rifiuti radioattivi, una vasta esperienza sulla stabilità meccanica e chimica delle argille in profondità.

Per questo tipo di roccia ospitante, ci sono prove considerevoli della loro stabilità desunte da:

- profilo chimico delle argille;
- prove di pressione attraverso argille;
- prove di auto-riparazione;
- mancanza di fratture in profondità.

Vi è inoltre la fiducia che condizioni sufficientemente stabili si trovano in profondità anche nel meno adeguato ambiente di rocce fratturate, se il sito è stato selezionato con cura. Ci sono diversi esempi di casi di sicurezza per un deposito in roccia fratturata dove sono riportati resoconti positivi globale sui problemi di stabilità in geosfera [3,11,41-43,80]. Queste valutazioni hanno dimostrato che può essere raggiunto il rispetto dei criteri normativi e che la comprensione scientifica delle problematiche di stabilità geologica è a un livello sufficiente e non pregiudizievole per la sicurezza a lungo termine del deposito.

Formazioni rocciose dure e fratturate che non si trovano vicino ai margini delle placche tettoniche sono generalmente considerate geologicamente stabili. Le rocce dello scudo canadese hanno età nell'ordine di miliardi di anni [81], così come le rocce dello scudo scandinavo [82]. Questi scudi rocciosi mostrano poca evidenza a subire modifiche strutturali importanti su scale temporali di molte decine o addirittura centinaia di milioni di anni. Tuttavia, rocce dure fratturate più giovani dimostrano una notevole stabilità, anche se localizzate vicino ai margini delle placche tettoniche. Per esempio, in [83] sono state comparate le frequenze di fratturazione dei plutoni granitici giapponese di età compresa tra circa 1,8 e 11,7 milioni di anni senza evidenziare significanti differenze. La conclusione è che una volta formatasi subito dopo l'intrusione, la struttura della fratturazione è relativamente insensibile a successive modifiche e, in generale, i cambiamenti nello campo di stress sembrano risultare in movimenti delle fratture esistenti, piuttosto che nella



generazione di nuove fratture. Così, la geometria complessiva di una rete di fratture può subire cambiamenti relativamente modesti anche in una fascia tettonica attiva.

Fenomeni in geosfera (processi ed eventi) che potrebbero turbare la stabilità di rocce dure fratturate sono ben noti e nessun fenomeno fondamentalmente nuovo è stato identificato negli ultimi anni, così che si può affermare che la comprensione di questi fenomeni geoscientifici è relativamente a buon punto. Processi della tettonica a placche sono stati studiati estesamente, in particolare in Giappone che si trova in una cintura di tettonica attiva [3,78] e negli Stati Uniti, per esempio nel programma di Yucca Mountain [84]. Altrove, il focus è stato sul potenziale impatto del cambiamento del livello del mare e o il cambiamento climatico (in particolare glaciazioni) sull'ambiente [71,85-87].

Qualsiasi valutazione della sicurezza a lungo termine di un deposito in roccia dura fratturata deve tenere conto delle incertezze relative alla stabilità della geosfera. Per supportare queste valutazioni di sicurezza, le agenzie per la gestione di rifiuti radioattivi hanno sviluppato e applicato strumenti di valutazione (deterministici e probabilistici) per affrontare queste incertezze nei *SAFETY CASE*.

Anche la stabilità delle evaporiti è stata studiata nelle indagini connesse ai siti di Gorleben e alle cupole saline di Asse in Germania [88-89]. Questi programmi hanno dimostrato che, così come per le argille, le evaporiti hanno molte caratteristiche che favoriscono la loro intrinseca stabilità.

Nel Regno Unito la stabilità tettonica non è un problema importante, poiché sono attesi cambiamenti relativamente piccoli nella tensione della crosta terrestre a lungo termine [30]. Il livello di sismicità è basso e probabilmente rimarrà tale. Durante le sue indagini nella zona di Sellafield, NIREX ha effettuato ricerche per comprendere l'impatto delle variazioni climatiche sulla geosfera in profondità. Questa ricerca ha sviluppato un modello per determinare la storia climatica della zona durante il periodo Quaternario e poi valutare se la falda profonda mostrasse l'evidenza di queste fluttuazioni [90]. Mentre il lavoro è stato site-specific, i metodi fondamentali sviluppati e/o dimostrati nella zona di Sellafield potrebbero essere utilizzati altrove, purché in analogia geologica. Inoltre, NIREX ha indagato anche scenari climatici futuri e le loro implicazioni nella fase di post-chiusura del deposito a Sellafield.

Anche se la comprensione del cambiamento climatico futuro si è notevolmente evoluta da allora, soprattutto sulla stima della probabilità nei tempi della prossima glaciazione, gran parte del lavoro realizzato, sarebbe ancora rilevante, soprattutto per un sito in una zona che ci si aspetterebbe ricoperta da ghiacciai a lungo termine. NIREX anche partecipato a diversi progetti internazionali per sviluppare metodi per valutare se le variazioni climatiche e le glaciazioni in particolare, avevano colpito la geosfera in profondità. Una produzione importante di questi studi è stata il riconoscimento che le caratteristiche mineralogiche potrebbero essere correlate con i movimenti delle acque sotterranee nel passato, in particolare:

- la distribuzione spaziale di Fe-minerali (Fe-ossidi e Fe-idrossidi, solfuri, principalmente pirite);
- variazioni spaziali nelle morfologie di cristalli di minerali carbonati, che hanno dimostrato essere correlati con le variazioni di salinità delle acque sotterranee;

- variazioni spaziali nella chimica dei minerali di carbonato, che sono state interpretate in termini di passate variazioni della composizione delle acque sotterranee.

La conclusione generale da questi studi è che il sistema delle acque sotterranee a Sellafield è probabilmente poco variato a profondità di deposito durante il periodo quaternario. Anche se le glaciazioni avevano introdotto nuovi flussi delle acque sotterranee al sistema di falde acquifere, e pur rimanendo il sistema di acque sotterranee in uno stato transitorio e mai in equilibrio vero e proprio con il mutare delle condizioni al contorno, i tassi di variazione nei modelli di circolazione delle acque sotterranee profonde sono stati troppo lenti per risentire in modo significativo dal cambiamento delle condizioni climatiche esterne.

### **5.9 Impatto della risaturazione.**

I processi fondamentali che controllano il fenomeno della ri-saturazione e le sue conseguenze sono state ampiamente indagate dai programmi di gestione dei rifiuti radioattivi nazionali in tutto il mondo e sono attualmente ben compresi [91-94]. Tuttavia, questi processi e gli impatti che ne derivano sono fortemente accoppiati, fatto che li rende difficili da modellare e predire.

Un problema particolare è l'ottenimento di un adeguato concetto e progetto di sito con specifici dati per permettere di sviluppare accurati modelli predittivi. Tipicamente, le grandi incertezze in questi dati si riflettono in grandi incertezze sui tempi di risaturazione e sulla previsione dell'effettiva entità degli impatti associati. Tuttavia, conoscenze, acquisizione dei dati e modellazioni sono stati utilizzati con successo da molti programmi per dimostrare che anche il peggior impatto dovuto a fenomeni di risaturazione può considerarsi accettabile.

Di contro, occorre ricordare che, a causa della natura molto complessa del fenomeno della risaturazione e le sue conseguenze, la maggior parte dei programmi fino ad oggi hanno fatto solo ipotesi generiche circa la tempistica e l'omogeneità della risaturazione e, il lavoro sperimentale non ha sempre confermato l'esattezza di tali ipotesi [94].

### **5.10 Le incertezze nelle diverse fasi del processo di autorizzazione**

Nel corso del processo di autorizzazione alla costruzione di un deposito geologico profondo di rifiuti radioattivi la conoscenza sulle questioni tecniche sul sito indagato dovrebbe generalmente migliorare con il tempo e anche l'impatto sulla sicurezza delle incertezze nelle questioni tecniche dovrebbe essere maggiormente compreso nel tempo. Tuttavia, problemi tecnici inaspettati possono sorgere in qualsiasi momento nell'ambito delle indagini un sito attuale e nella progettazione di un concetto di smaltimento proposto.

Le incertezze non necessariamente diminuiscono con l'aumentare delle informazioni raccolte. C'è una tendenza per le organizzazioni scientifiche che interpretano i dati a dare maggior peso a *incognite conosciute* piuttosto che a *sconosciute incognite*. Cioè, c'è una tendenza generale a interpretare le incertezze sui dati acquisiti, mentre la mancanza d'informazioni è semplicemente ignorata.

Le incertezze associate con i problemi tecnici di qualsiasi programma per la realizzazione di un deposito dipenderanno dall'ambiente geologico, dal concetto di smaltimento e dal progetto del deposito.

Le attività per individuare i tipi di incertezze che potrebbero essere plausibilmente risolte in ogni fase di un processo di caratterizzazione del sito e che possono essere intraprese per risolvere queste incertezze sono:

- attività preliminari, tra cui:
  - definizione del concetto generale di smaltimento e delle specifiche del *safety case*;
  - pianificazione d'indagini sitologiche;
  - pianificazione e sostegno di programmi di ricerca e di progettazione;
  - sviluppo di uno o più concetti di smaltimento come varianti al progetto principale;
- indagini sul sito a livello di superficie, tra cui:
  - caratterizzazione dei siti sufficiente per consentire la pianificazione e la costruzione di strutture interrato;
  - sufficiente fiducia in casi di sicurezza in fase di sviluppo per giustificare l'adeguatezza delle operazioni sotterranee;
  - la creazione di reti di monitoraggio;
- indagini da condurre nei laboratori sotterranei (URL) sul sito, tra cui:
  - verifica delle indagini di superficie;
  - studi ulteriori che richiedono operazioni su larga scala di roccia in profondità, in particolare la risoluzione di incertezze sulle interazioni tra scavi e geosfera (EDZ, risaturazione);
  - sviluppo e miglioramento dei concetti, delle tecniche e delle strategie di costruzione e di disposizione;
  - acquisizione dei dati di monitoraggio per confermare la comprensione dell'impatto del deposito sul sistema geosfera nel suo complesso a partire dai dati delle indagini di superficie;
  - costruzione di una sufficiente fiducia nei casi in sicurezza.

## BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 5

- [1] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2003a. *Engineered barrier systems and the safety of deep geological repositories: state-of-the-art report*. Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris. ISBN 92-64-18498-8. 72pp.
- [2] UNITED STATES DEPARTMENT OF ENERGY WASTE ISOLATION PILOT PLANT(USDoe-WIPP), 2004. *Title 40 CFR Part 191 Subparts B and C Compliance Recertification Application for the Waste Isolation Pilot Plant*. United States Department of Energy Waste Isolation Pilot Plant, Carlsbad Field Office Carlsbad, New Mexico.
- [3] JAPAN NUCLEAR CYCLE DEVELOPMENT INSTITUTE (JNC), 2000. *H12: Project to establish the technical and scientific basis for HLW disposal in Japan*. JNC Technical Report TN1410 2000-001, Japan Nuclear Cycle Development Institute, Tokai-mura Japan (five volumes).
- [4] BALDWIN, T., CHAPMAN, N. AND NEALL, F. 2008. *Geological disposal options for high level waste and spent fuel*. Galson Sciences Report to NDA RWMD. 118pp.
- [5] BEL, J.J.P., WICKHAM, S.M. AND GENS R.M.F., 2006. *Development of the supercontainer design for deep geological disposal of high-level heat-emitting radioactive waste in Belgium*. Proceedings Materials Research Society, Scientific Basis for Nuclear Waste Management XXIX, 932, 23.
- [6] BOLLINGERFERR, W., FILBERT, W., WEHRMANN, J. AND BOSGIRAUD, J-M. 2008. *New transport and emplacement technologies for vitrified waste and spent fuel canister*. Proceedings of Euradwaste '08, 20-23 October 2008, Luxembourg.
- [7] HICKS, T.W., BALDWIN, T.D., HOOKER, P.J., RICHARDSON, P.J., CHAPMAN, N.A., MCKINLEY, I.G. AND NEALL, F.B., 2008. *Concepts for the disposal of intermediate level radioactive waste*. Galson Sciences Report to NDA RWMD 0736-1.
- [8] HATCH LIMITED, 2008. *OPG's deep geologic repository for low and intermediate level waste: conceptual design report*. Ontario Power Generation Technical Report OPG00216-REP-03902-00004-R01. 321pp.
- [9] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2006a. *Engineered barrier systems (EBS) in the safety case: Design confirmation and demonstration workshop proceedings, Tokyo, Japan, 12-15 September 2006*. Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris. ISBN: 978-92-64-03995-7. 150pp.

- [10] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2003b. *Engineered barrier systems (EBS):Design requirements and constraints. Workshop Proceedings, Turku, Finland 26-29August 2003.* Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris.ISBN 92-64-02068-3. 145pp.
- [11] SVENSK KÄRNBRÄNSLEHANTERING AB (SKB), 2006. *Long-term safety for KBS-3repositories at Forsmark and Laxemar – A first evaluation: Main report of the SR-CanProject.* SvenskKärnbränslehantering AB (SKB) Technical Report TR-06-09. 620pp.
- [12] SMITH, P., NEALL, F., SNELLMAN, M., PASTINA, B., NORDMAN, H., JOHNSON, L.AND HJERPE, T. 2007. *Safety assessment for a KBS-3H spent nuclear fuel repository at Olkiluoto summary report.* Posiva Report 2007-06, Finland. 199pp.
- [13] AGENCE NATIONALE POUR LA GESTION DES DECHÉTS RADIOACTIFS(ANDRA), 2005. *Dossier 2005: Synthesis Report, Evaluation of the Feasibility of a Geological Repository, Meuse/Haute-Marne Site (English translation of “Dossier 2005Argile”).* ANDRA Report Series, Dossier 2005 Argile, Andra, Paris, 241pp.
- [14] NIREX, 2003b. *The Nirex phased disposal concept.* Nirex Report N/074. 66pp.
- [15] NIREX, 2005a. *The viability of a phased geological repository concept for the long term management of the UK’s radioactive waste.* Nirex Report N/122. 127pp.
- [16] NIREX, 2005b. *Outline design for a reference repository concept for UK high level waste/spent fuel.* Nirex Technical Note 502644. 67pp.
- [17] WATSON, S., METCALFE, R., PAULLEY, A. AND McEWEN, T., 2007a. *International precedents for HLW/SF iron canister concepts: review and consideration of applicability in UK context.* Quintessa Report to the Radioactive Waste Management Directorate,Nuclear Decommissioning Authority.QRS-1376A-1. 115pp.
- [18] NUCLEAR DECOMMISSIONING AUTHORITY (NDA), 2008. *NDA Radioactive Waste Management Directorate Proposed Research and Development Strategy.* NuclearDecommissioning Authority Report, 85pp.
- [19] METCALFE, R. AND WALKER, C., 2004. *Proceedings of the international workshop pon bentonite-cement interaction in repository environments.* Nuclear WasteManagement Organisation of Japan (NUMO) report NUMO-TR-04-05 (also publishedby POSIVA as Working Report 2004-25). 190pp.

- [20] DE LA CRUZ, B., VILLAR, M.V., TURRERO, M.J., PENA, J., FERNANDEZ, A.M., CARLSSON, T., HERBERT, H.J., MEYER, T., VOKAL, A. AND ARCOS, D., 2005. *NFPRO Component 2 State of the art report WP-2.1: Critical review and incorporation of EC, National and International Programmes in RTD Component 2*.
- [21] CARLSSON, T. AND MUURINEN, A., 2007. *Copper corrosion in bentonite: studying of parameters (pH, Eh/O<sub>2</sub>) of importance for Cu corrosion*. Posiva Working Report 2007-62. 38pp.
- [22] CHARPENTIERA, D., DEVINEAU, K., MOSSER-RUCK, R., CATHELIENEAU, M. AND VILLIÉRAS, F., 2006. Bentonite-iron interactions under alkaline condition: An experimental approach. *Applied Clay Science*, 32, 1-13.
- [23] WILSON, J., SAVAGE, D., CUADROS, J., SHIBATA, M. AND RAGNARSDOTTIR, K.V., 2006a. The effect of iron on montmorillonite stability.(I) Background and thermodynamic considerations. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, 306-322.
- [24] WILSON, J., CRESSEY, G., GRESSEY, B., CUADROS, J., RAGNARSDOTTIR, K.V, SAVAGE, D. AND SHIBATA, M., 2006b. The effect of iron on montmorillonite stability.(II) Experimental investigation. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 70, 323-336.
- [25] SMART, N.R., RANCE, A.P., CARLSON, L. AND WERME, L.O., 2006. *Further studies of the anaerobic corrosion of steel in bentonite*. Proceedings of MRS 12-16 September 2005, Ghent, Belgium. Materials Research Society Proceedings, 932, 813-820.
- [26] VOKAL, A., LUKIN, D. and VOPALKA, D., 2006. *Carbon steel performance assessment: Iron transfer study*. Proceedings of MRS 2005, 12-16 September 2005, Ghent, Belgium. Materials Research Society Proceedings, 932, 877-884.
- [27] BENBOW, S.J., WALKER, C. AND SAVAGE, D., 2007. *Intercomparison of cement solid solution models. Issues affecting the geochemical evolution of radioactive waste repositories*. Statens Kärnkraftinspektion (SKI) report 2007:29. 38pp
- [28] WATSON, C.E., BENBOW, S.J. AND SAVAGE, S.J., 2007b. *Modelling the interaction of low-pH cements and bentonite. Issues affecting the geochemical evolution of repositories for radioactive waste*. Statens Kärnkraftinspektion (SKI) Report 2007:30.
- [29] NIREX, 2001a. *Why a cementitious repository?* Nirex Report N/034. 19pp.
- [30] NIREX, 2001b. *The scientific foundations of deep geological disposal*. Nirex Report N/016. 118pp.

[31] NIREX, 1997a. Nirex 97. *An assessment of the post-closure performance of a deep waste repository at Sellafield*. Nirex Report S/97/012 (six volumes).

[32] ALHEID, H.J., ARANYOSSY, J.F., BLUMLING, P., HOTEIT, N. AND VAN GEET, M., 2005. *EDZ development and evolution – State of the art report for Component 4 of NFPRO project*.

[33] FAIRHURST, C., 1999. Rock mechanics and nuclear waste repositories. In: Saeb, S. and Francke, C. (editors), *Proceedings of the international workshop on the rock mechanics of nuclear waste repositories*, Vail, Colorado, 5-6 June 1999.

[34] BOSSART, P., MEIER, P., MÖRI, A., TRICK, Th. AND MAYOR, J-C. 2002. Geological and hydraulic characterisation of the excavation disturbed zone in the Opalinus Clay of the Mont Terri Rock Laboratory. *Engineering Geology* 66, 19-38.

[35] BAUER, C., PÉPIN, G. AND LEBON P., 2004. *EDZ in the performance assessment of the Meuse/Haute-Marne site: Conceptual model used and questions addressed to the research program*. Proceedings of the European Commission CLUSTER EDZ Conference and Workshop on Impact of the Excavation Disturbed or Damaged Zone (EDZ) on the Performance of Radioactive Waste Geological Repositories, Luxembourg, 3-5 November 2003, European Commission Report EUR 21028 EN.

[36] BLÜMLING, P., BERNIER, F., LEBON, F. AND MARTIN, C.D., 2007. The excavation damaged zone in clay formations time-dependent behaviour and influence on performance assessment. *Physics and Chemistry of the Earth, Parts A/B/C*, 32, 588-599

[37] NATIONALE GENOSSENSCHAFT FÜR DIE LAGERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLER (NAGRA), 2002. *Project Opalinus Clay: Safety Report. Demonstration of disposal feasibility (Entsorgungsnachweis) for spent fuel, vitrified high-level waste and long-lived intermediate-level waste*. Nagra Technical Report NTB 02-05. 472pp.

[38] KARLSSON, F., LINDGREN, M., SKAGIUS, K., WIGBORGH, M. AND ENKQVIST, I. 1999. *Evolution of geochemical conditions in SFL 3-5*. Svensk Kärnbränslehantering AB (SKB) Report R-99-15. 109pp.

[39] BENBOW, S.J., WATSON, S.P., SAVAGE, D. AND ROBINSON, P. 2004. *Vault-scale modelling of pH-buffering capacity in crushed granite backfills*. Statens Kärnkraftinspektion (SKI) Report, 2004:17. 102pp.

[40] NIREX, 1997b. *Development of the Nirex reference vault backfill; report on current status in 1994*. Nirex Science Report S/97/014. 59pp.

- [41] ATOMIC ENERGY OF CANADA LIMITED (AECL), 1994. *Environmental impact statement on the concept for the disposal of Canada's nuclear fuel waste*. AtomicEnergy of Canada Limited Report, AECL-10711, COG-93-1.
- [42] NATIONALE GENOSSENSCHAFT FÜR DIE LAGERUNG RADIOAKTIVERABFÄLLER (NAGRA), 1994. *Kristallin-1 Safety Assessment Report*. Nagra TechnicalReport 93-22. 430pp.
- [43] VIENO, T. AND NORDMAN, H., 1999. *Safety assessment of spent fuel disposal in Hästholmen, Kivetty, Olkiluotto and Romuvaara: TILA-99*. Posiva Report 99-07.253pp.
- [44] ONDRAF/NIRAS, 2001. *SAFIR 2: Safety Assessment and Feasibility Interim Report 2*. Belgian agency for radioactive waste and enriched fissile materials. ONDRAF/NIRASReport NIROND 2001-06 E. 278pp.
- [45] VUORINEN, U., LEHIKONEN, J., LUUKKONEN, A. AND ERVANNE, H. 2006. *Effect of salinity and high pH on crushed rock and bentonite – experimental work and modelling*. Posiva Report 2006-01. 123pp.
- [46] KING, F., AHONEN, L., TAXÉN, C., VUORINEN, U. AND WERME, L. 2001. *Copper corrosion under expected conditions in a deep geologic repository*. SvenskKärnbränslehantering AB (SKB) Technical Report TR-01-23. 176pp.
- [47] KURSTEN, B., SMAILOS, E., AZKARATE, I., WERME, L., SMART, N.R., MARX, G., CUNADO, M.A. AND SANTARINI, G., 2004b. *Corrosion evaluation of metallic materials for long-lived HLW/spent fuel disposal containers: review of 15-20 years of research*. Proceedings of Euradwaste '04 : Sixth EC Conference on the Management and Disposal of Radioactive Waste, 29 Mar-1 Apr 2004, Luxembourg, Abstract p.21
- [48] BERNER, U.R., 1992. Evolution of pore water chemistry during degradation of cement in a radioactive waste repository environment. *Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle*, 12, 201-219.
- [49] PUSCH, R. AND KASBOHM, J. 2002. *Alteration of MX-80 by hydrothermal treatment under high salt content conditions*. SvenskKärnbränslehantering AB (SKB) TechnicalReport TR-02-06. 44pp.
- [50] ARTHUR, R., APTED, M.J. AND STENHOUSE, M.J. 2005. Comment on the long-termochemical and mineralogical stability of the buffer. StatensKärnkraftinspektion (SKI)Report 2005:09. 29pp



- [51] SAVAGE, D. 2005. *The effects of high salinity groundwater on the performance of clay barriers*. StatensKärnkraftinspektion (SKI) Report 2005:54. 37pp.
- [52] KARNLAND, O. AND BIRGESSION, M. 2006. *Montmorillonite stability with respect toKBS-3 conditions*. SvenskKärnbränslehantering AB (SKB) Technical Report TR0611.
- [53] PITZER, K.S., 1991. Ion interaction approach: theory and data correlation. In PITZER,K.S. (editor) *Activity coefficients in electrolyte solutions. Second edition*. Boca Raton,Florida: CRC Press. TIC: 251799. 75-15.
- [54] PREUSS, J., EILERS, G., MAUKE, R., MÜLLER-HOEPPE, N., ENGELHARDT, H-J.,KREIENMEYER, M., LERCH, C. AND SCHRIMPF, C., 2002. Post-closure safety ofthe Morsleben Repository.Proceedings of WM'03, 24-28 February, Tuscon, Arizona.
- [55] GASCOYNE, M., 2004. Hydrogeochemistry, groundwater ages and sources of salts ina granitic batholith on the Canadian Shield, southeastern Manitoba.*AppliedGeochemistry*, 19, 519-560.
- [56] DEBYE, P. AND HÜCKEL, E. 1923. The theory of electrolytes. I. Lowering of freezing point and related phenomena. *PhysikalischeZeitschrift*, 24, 185-206.
- [57] HELGESON, H.C. 1969. Thermodynamics of hydrothermal systems at elevated temperatures and pressures. *American Journal of Science*, 267, 729-804.
- [58] UNITED STATES DEPARTMENT OF ENERGY (US DoE), 2007. *In-Drift Precipitates/Salts Model*. United States Department of Energy Report ANL-EBS-MD-000045 REV 03. 358pp.
- [59] HARRINGTON, J.F. AND HORSEMAN, S.T., 2003. *Gas migration in KBS-3 buffer bentonite: sensitivity of test parameters to experimental boundary conditions*. Svenskkärnbränslehantering AB (SKB) Technical Report TR-03-02. 53pp
- [60] HOCH, A.R., CLIFFE, K.A., SWIFT, B.T. AND RODWELL, W.R., 2004. *Modelling gas migration in compacted bentonite: GAMBIT Club Phase 3 Final Report*. Posiva WorkingReport 2004-02. 156pp.
- [61] RODWELL, W.R., NORRIS, S., MÄNTYNEN, M. AND VIENO, T., 2003. *A thematic network on gas issues in safety assessment of deep repositories for radioactive waste(GASNET)*. European Commission Report, EUR 20620 ISBN 92-894-6401-1.European Commission, Luxembourg. 48pp.
- [62] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2001. *Gas generation and migration in radioactive waste disposal – safety-relevant issues. Proceedings of a Workshop held in Reims, France, 26-28 June*

2000. Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD), Paris. ISBN 9264186727 188pp.

[63] RODWELL, W.R., HARRIS, A.W., HORSEMAN, S.T., LALIEUX, P., MÜLLER, W., AMAYA, L.O. AND PRUESS, K., 1999. *Gas migration and two-phase flow through engineered and geological barriers for a deep repository for radioactive waste: a joint EC/NEA Status Report*. Nuclear Energy Agency and European Commission Nuclear Science and Technology Report EUR 19122 EN ISBN 92-828-8132-6. . European Commission, Luxembourg. 429pp

[64] HORSEMAN, S.T., HIGGO, J.J.W., ALEXANDER, J. AND HARRINGTON, J.E., 1996. *Water, gas and solute movement through argillaceous media. NEA working group on measurement and physical understanding of groundwater flow through argillaceous media ("Clay Club")*. Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Nuclear Energy Agency (NEA) Report CC-96/1. Paris 292pp

[65] METCALFE, R., WATSON, S.P., REES, J.H., HUMPHREYS, P. AND KING, F., 2008. *Nirex work on gas from a deep geological repository: A review undertaken on behalf of the Nuclear Waste Assessment Team*. Quintessa Report QRS-1223A-4. 140pp.

[66] BATE, F., HOCH, A.R. AND JACKSON, C.P., 2006. *Gas migration calculations: report to Nirex*. Serco Assurance Report, SA/ENV-0850.61pp.

[67] BIURRUN, E. AND HJARTE, B., 2003. License for the Konrad deep geological repository. *Proceedings of Waste Management 2003 (WM'03)*, Tuscon, Arizona.

[68] AGENCE NATIONALE POUR LA GESTION DES DECHÉTS RADIOACTIFS (ANDRA), 2007. The Meuse/Heute-Marne research underground laboratory. ANDRA Essential Series, 182VA, Andra, Paris, 8pp.

[69] PEARSON, F.J., ARCOS, D., BATH, A.H., BOISSON, J-Y, FERNANDEZ, A.M., GOBLER, H.E., GAUCHER, E., GAUTSCHI, A., GRIFFAULT, L., HERNÁN, P. AND WABER, H.N., 2003. *Mont Terri Project – Geochemistry of water in the Opalinus Clay Formation at the Mont Terri Rock Laboratory*. Reports of the Federal Office for Water and Geology (FOWG). Geology Series No. 5.319 pp.

[70] MAZUREK, M., 2000. Evolution of gas and aqueous fluid in low-permeability argillaceous rocks during uplift and exhumation of the central Swiss Alps. *Applied Geochemistry*, 15, 211-234.

[71] MARIVOET, J., VAN KEER, I., WEMAERE, I., HARDY, L., PITSCH, H., BEUCAIRE, C., MICHELOT, J-L, MARTIN, C., PHILIPPOT, A.C., HASSANIZADEH, M. AND VANWEERT, F., 2000. A

*palaeohydrogeological study of the Mol site (PHYMOL project).* European Commission Report EUR 19146. European Commission, Brussels.

[72] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2005a. *Stability and buffering capacity of the geosphere for long-term isolation of radioactive waste: application to argillaceous media - "Clay Club" Workshop Proceedings, Braunschweig, Germany, 9-11 December 2003.* Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris., ISBN: 92-64-00908-6. 244 pp.

[73] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2007. *Linkage of geoscientific arguments and evidence supporting the safety case. Proceedings of the Second AMIGO Workshop, Toronto, Canada, 20-22 September 2005.* Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris. ISBN 9789264021747. 180 pp.

[74] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2008b. *Stability and buffering capacity of the geosphere for long-term isolation of radioactive waste: application to crystalline rock – Intergration Group for the Safety Case Workshop, 13-15 November 2007 Manchester, UK.* Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris. In Press.

[75] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2006b. *Radioactive waste management programmes in OECD/NEA member countries.* Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Issy-les-Moulineaux. ISBN 9264012109.

[76] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2005b. *Clay Club Catalogue of Characteristic of Argillaceous Rocks.* Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris. ISBN 92-64-01067-X. 72pp.

[77] NATIONALE GENOSSENSCHAFT FÜR DIE LAGERUNG RADIOAKTIVER ABFÄLLER (NAGRA), 1997. *Geosynthese Wellenberg, 1996.* Nagra Technical Report NTB 96-01. NAGRA, Switzerland. 210pp

[78] JAPAN NUCLEAR CYCLE DEVELOPMENT INSTITUTE (JNC), 2005. *Development of a knowledge base in connection with the geological disposal of high level radioactive waste: H17 Progress Report.* JNC Technical Report JNC TN1400 2005-014, Japan Nuclear Cycle Development Institute, Tokai-mura, Japan (four volumes, in Japanese).

[79] HAMA, K., KUNIMARU, T., METCALFE, R. AND MARTIN, A.J., 2007. The hydrochemistry of argillaceous rock formations at the Horonobe URL site, Japan. *Physics and Chemistry of the Earth*, 32, 170-180.

[80] SAFETY ASSESSMENT MANAGEMENT (SAM), 1996. *An international comparison of disposal concepts and post-closure assessments for nuclear fuel waste disposal: A report prepared by Safety*

*Assessment Management for AECL Whiteshell Laboratories, Canada.* Atomic Energy Canada Limited Report TR-M-43. 254pp.

[81] BERMAN, R.G., EASTON, R.M. AND NADAEU, L., 2000. A new tecton metamorphic map of the Canadian Shield: Introduction. *The Canadian Mineralogist*, 38, 277-285.

[82] MILNES, A.J., 2002. *Swedish deep repository siting programme: guide to the documentation of 25 years of geoscientific research (1976-2000)*. SvenskKärnbränslehantering AB (SKB) Technical Report TR-02-0-18. 191pp.

[83] YOSHIDA, H., TAKEUCHI, M. AND METCALFE, R., 2005. Long-term stability of flowpathstructure in crystalline rocks distributed in an orogenic belt, Japan. *EngineeringGeology*, 78, 275-284

[84] O'LEARY, D.W., 2007. Tectonic models for Yucca Mountain, Nevada. In: STUCKLESS, J.S. AND LEVICH, R.A. (editors) *The geology and climatology of Yucca Mountain and vicinity, southern Nevada and California*. Geological Society of America, Memoir 199, 105-154

[85] BATH, A.H., MILODOWSKI, A., RUOTSALAINEN, P., TULLBORG, E-T., CORTÉZRUIZ, A. AND ARANYOSSY, J.F., 2000. *Evidence from mineralogy and geochemistry for the evolution of groundwater system during the Quaternary for use in radioactive waste repository safety assessment (EQUIP project)*. Directorate-General for Research, Report EUR 19613, European Commission, Brussels. 157pp.

[86] BOULTON, G., GUSTAFSON, G., SCHELKES, K., CASANOVA, J. AND MORÉN, L., 2001. *Palaeohydrogeology and geoforecasting for performance assessment in geosphere repositories for radioactive waste disposal (PAGEPA)*. Directorate-General for Research, Report EUR 19784, European Commission, Brussels. 147 pp.

[87] DEGNAN, R., BATH, A.H., CORTÉS, H., DELGADO, J., HASZELDINE, R.S., MILODOWSKI, A.E., PUIGDOMENECH, I., RECREO, F., ŠILAR, J., TORRES, T. AND TULLBORG, E-L., 2005. *Palaeohydrogeological Data Analysis and Model Testing (PADAMOT): Project Overview Report*. PADAMOT Project Technical Report. EU FP5 Contract No FIKW-CT2001-20129. 105pp.

[88] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2006c. *Disposal of radioactive waste: forming a new approach in Germany: FSC Workshop Proceedings Hitzacker and Hamburg, Germany, 5-8 October 2004*. Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris. ISBN: 9789264024397. 116pp.

[89] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2008a. *Safety cases for deep geological disposal of radioactive waste: where do we stand?* Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) report NEA No. 6319, OECD, Paris. 422pp.

[90] HEATHCOTE, J. AND MICHIE, U. McL. 2004. Estimating hydrogeological conditions over the last 120 ka: an example from the Sellafield area, UK. *Journal of the Geological Society*, London, 161, 995-1008.

[91] LEDESMA, A. AND CHEN, G. 2003. T-H-M modelling of the prototype repository experiment at Äspö HRL, Sweden. Proceedings of the Geoprocesses Conference, KTH, Stockholm (Sweden), 370-375.

[92] NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2003a. *Engineered barrier systems and the safety of deep geological repositories: state-of-the-art report*. Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris. ISBN 92-64-18498-8. 72pp

[93] POPPEI, J., MAYER, G., CROISÉ, J. AND MARSCHALL, P. 2003. Modelling of resaturation, gas migration and thermal effects in a SF/ILW repository in low permeability over-consolidated clay-shale. Proceedings of the TOUGH2 Symposium, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, 12-14 May 2003.

[94] ALONSO, E.E., ALCOVERRO, J., COSTER F., MA, L., MERRIEN-SOUKATCHOFF, V., KADIRI, I., NOWAK, T., SHAO, H., NGUYEN, T.S., SELVADURAI, A.P.S., ARMAND, G., SOBOLIK, S.R., ITAMURA, M., STONE, C.M., WEBB, S.W., REJEB, A., TIJANI, M., MAOUCHE, Z., KOBAYASHI, A., KURIKAMI, H., ITO, A., SUGITA, Y., CHIJIMATSU, M., BÖRGESSON, L., HERNELIND, J., RUTQVIST, J., TSANG, C-F. AND JUSSILA, P., 2005. The FEBEX benchmark test: case definition and comparison of modelling approaches. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 42, 611-638.

#### **Ulterioritesti consultati:**

- Geochemical analysis of saline injection of concentrates and saline aquifers in El Paso, Texas - Project number: W-06-05 A. Ellis, M. Carney, J. Langman University of Texas
- ANDERSSON, J., STROM, A., SVEMAR, C., ALMEN, K.E. AND ERICSSON, L.O., 2000. *What requirements does the KBS-3 repository make on the host rock? Geoscientific suitability indicators and criteria for siting and site evaluation*. SKB Report TR-00-12. 148pp.
- COMMITTEE ON RADIOACTIVE WASTE MANAGEMENT (CoRWM), 2006. *Managing our radioactive waste safely: CoRWM's Recommendations to Government*. CoWRM Doc 700. 192pp.

- DEPARTMENT FOR ENVIRONMENT FISHERIES AND RURAL AFFAIRS (DEFRA), 2008. *Managing Radioactive Waste Safely: A framework for implementing geological disposal. A White Paper by Defra, BERR and the devolved administrations for Wales and Northern Ireland.* Defra, London. 94pp.
- DEPARTMENT FOR ENVIRONMENT FISHERIES AND RURAL AFFAIRS (DEFRA), 2007. *Managing Radioactive Waste Safely: A framework for implementing geological disposal.* Defra, London. 69pp.
- ENVIRONMENT AGENCY, 2008. *Deep geological disposal facilities on land for solid radioactive wastes: guidance on requirements for authorisation.* Draft for Consultation, 15 May 2008. 103pp.
- ENVIRONMENT AGENCY, 2007. *Specification for review of technical issues associated with deep repositories in different geological environments (SC060054).* Environment Agency, September 2007.
- EUROPEAN COMMISSION, 2005. *ECOCLAY II: Effects of cement on clay barrier performance – Phase II, Final Report.* Directorate-General for Research 2005 Euratom Report EUR 21921. 378pp.
- EUROPEAN COMMISSION, 2000. *Ecoclay project: Effects of cement on clay barrier performance: Final report.* Directorate-General for Research 2005 Euratom Report EUR-19609-EN. 140pp.
- HICKS, T.W., 2006. *Comparison of gas generation and gas transfer analyses for the Nirex PGRC and the Nagra and Andra ILW/HLW/SF Concepts.* Galson Sciences Ltd Report for UK Nirex 0573-1. 284pp.
- INTERGOVERNMENTAL PANEL ON CLIMATE CHANGE (IPCC), 2005. *IPCC Special Report on CO2 capture and storage.* Cambridge University Press, Cambridge. 431pp.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA), 2003. *Radioactive Waste Management Glossary: 2003 Edition.* International Atomic Energy Agency, Vienna.
- KURSTEN, B., SMAILOS, E., AZKARATE, I., WERME, L., SMART, N. R. AND SANTARINI, G., 2004a. *COBECOMA State-of-the-art document on the Corrosion Behaviour of Container Materials.* European Commission CONTRACT N° FIKW-CT- 20014-20138, Final Report. 299pp.

- LITTLEBOY, A.K. AND DEGNAN, P., 2003. *Site selection and investigations for a deep geological repository: preliminary technical planning in support of the stepwise process*. Nirex Technical Note 393559. 38pp.
- MATTHEWS, M.L. AND ERIKSSON, L.G. 2003. The waste isolation pilot plant - an international centre of excellence for training in and demonstration of waste disposal technologies. Proceedings of WM'03, 23-27 February 2003, Tuscon, Arizona.
- McINERNEY, P.T., 1988. *Description of sites*. UK Nirex Report. NC/88/40. 27pp.
- NIREX, 2003a. *Identification and description of UK radioactive wastes and materials potentially requiring long-term management*. Nirex Report N/085. 57pp.
- NIREX, 1994. *The geology and hydrogeology of Dounreay: executive summary*. Nirex Science Report 653. 15pp.
- NUCLEAR ENERGY AGENCY (NEA), 2004. *Geological disposal: building confidence using multiple lines of evidence. First AMIGO workshop proceedings Yverdon-les-Bains, Switzerland 3-5 June 2003*. Organisation for Economic Cooperation and Development (OECD) Paris. ISBN 92-64-18498-8.
- SILLEN, X. AND MARIVOET, J., 2007. *Thermal impact of a HLW repository in clay. Deep disposal of vitrified high-level waste and spent fuel*. External Report of the Belgian Nuclear Research Centre (SCK/CEN), SCK•CEN-ER-38, 59pp.
- UNITED STATES DEPARTMENT OF ENERGY WASTE ISOLATION PILOT PLANT (USDōE-WIPP), 2004. *Title 40 CFR Part 191 Subparts B and C Compliance Recertification Application for the Waste Isolation Pilot Plant*. United States Department of Energy Waste Isolation Pilot Plant, Carlsbad Field Office Carlsbad, New Mexico.

## **6. STATO DELL'ARTE SULLE RICERCHE DELLE PROPRIETA' GEOCHIMICHE DEI PRINCIPALI RADIONUCLIDI DEI RIFIUTI RADIOATTIVI**

Il comportamento dei radionuclidi nella geosfera è stato identificato, dalla comunità scientifica, come fattore centrale per valutare la capacità di barriera delle formazioni geologiche prese in considerazione per lo smaltimento dei rifiuti radioattivi. Il problema è stato affrontato preliminarmente sulla base della chimica e della geochimica teoriche, e in seguito, sono state verificate e ricercate conferme alle previsioni dei modelli con lo studio degli analoghi. Trattazioni teoriche dell'argomento sono state sviluppate in vari ambiti scientifici e istituzionali, ma una delle tappe più significative è rappresentata dalle conoscenze acquisite con i programmi di ricerca della UE, e nei paragrafi successivi vengono riportate le conclusioni più significative. Nel capitolo successivo sono invece riportati i risultati conseguiti con lo studio degli analoghi.

### **6.1 I fenomeni di migrazione dei radionuclide nelle geosfera**

Mentre negli anni 80 era ben nota la geochimica dell'uranio sviluppata nell'ambito della giacimentologia di questo elemento, più scarsi erano gli studi dedicati alle reazioni chimiche dei radionuclidi con le diverse componenti dell'ambiente geologico. Il rapporto [1] costituisce ancora un valido riferimento per le trattazioni dei principi dei fenomeni di migrazione. La geochimica dei radionuclidi, vista come barriera definitiva al loro trasferimento alla biosfera, funzionerà in ogni momento nel futuro, ma più che bloccare i radionuclidi impedirà la loro migrazione in modo tanto più efficace quanto l'ambiente geochimico è scelto con cura.

Il rapporto è suddiviso in quattro parti che, singolarmente, trattano dei seguenti argomenti:

- lo stato chimico dei radioelementi nelle acque sotterranee,
- la composizione di queste ultime in rapporto agli equilibri assunti con i minerali delle rocce,
- gli aspetti quantitativi dei processi di assorbimento,
- le conseguenze delle interferenze d'insieme di questi fattori.

La prima parte discute le reazioni chimiche dei radionuclidi con le componenti presenti nelle acque sotterranee, in modo particolare le reazioni formanti complessi (complessazione) contrastanti i processi di assorbimento e che di conseguenza favoriscono la velocità di migrazione, dove si riassumono le seguenti indicazioni:

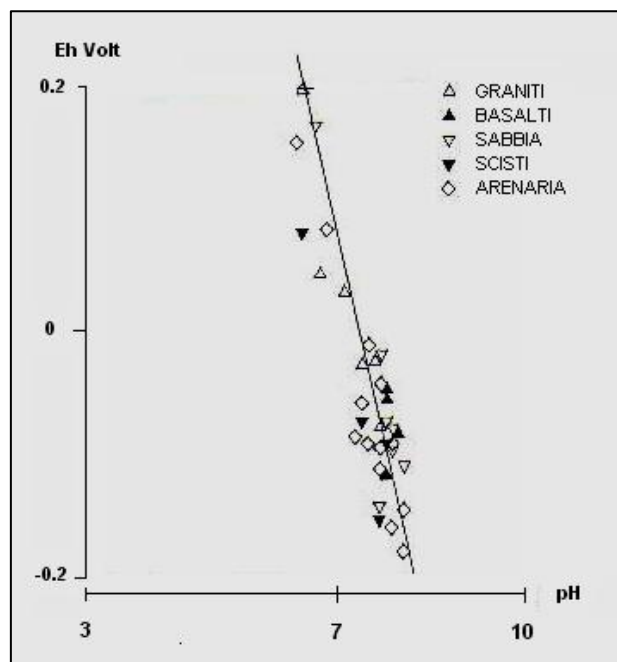
- la composizione media della coppia carbonato/bicarbonato nelle acque sotterranee è stata identificata come il solo agente rilevante per la formazione di complessi. Risulta pertanto trascurabile l'effetto di fluoruri, cloruri e solfati, tranne che nel caso in cui questi ultimi assumano livelli decisamente anomali. La presenza di concentrazioni minori di acidi organici solubili può attivare la migrazione dei radionuclidi che formano con essi complessi forti;
- i diagrammi di stabilità, riportanti le curve di speciazione e di isoconcentrazione degli elementi transuranici, rivelano che la solubilità di questi ultimi è estremamente ridotta nelle condizioni dominanti nelle formazioni geologiche profonde;



- riguardo la possibile formazione di colloidi, si conclude che solo l'assorbimento su colloidi naturali preesistenti, quali minerali argillosi o acidi umici, dovrebbe costituire un problema. L'efficacia della filtrazione delle formazioni geologiche compresse sta a dindicare che la migrazione dei colloidi è probabilmente di importanza trascurabile.

La chimica delle acque sotterranee, trattata nella seconda parte, è derivata dai dati di formazioni geologiche ampiamente diverse. Andamenti e correlazioni riflettono pertanto situazioni generali e non relative a siti particolari. La composizione delle acque sarebbe principalmente determinata da reazioni coinvolgenti prodotti intermedi e metastabili di alterazione piuttosto che dai minerali di base delle formazioni geologiche.

Il grado di assorbimento di radionuclide sulla superficie dei minerali costituenti le rocce è determinata dalla presenza di altri componenti nelle acque sotterranee. Gli ioni carbonatici presenti in queste ultime formano complessi con molti radionuclidi nei rifiuti impedendone l'assorbimento sulle superfici dei minerali. La componente cationica dei macrocomponenti disciolti nelle acque tende ad essere assorbita sulle superfici caricate negativamente dei minerali, entrando così in competizione con i radionuclidi per i siti attivi di assorbimento disponibili. Fattore decisamente importante per il comportamento dei radionuclide nell'ambiente geologico sono le condizioni redox. Ad esempio la migrazione degli elementi transuranici è fortemente ritardata in condizioni ambientali riducenti, ma è aumentata in presenza di grandi quantità di anidride carbonica. In termini generali le condizioni riducenti aumentano con la profondità. Il diagramma Eh-ph [13], riprodotto in figura 6.1 riporta le condizioni chimico-fisiche delle acque associate a diversi ambienti litologici.



**Fig. 6.1**

Le acque in equilibrio con le argille e isolate dall'atmosfera presentano valori negativi di Eh e valori di pH compresi tra 7.5-8 e sono pertanto acque riducenti e leggermente alcaline. Tali condizioni favoriscono la precipitazione dell'uranio e dei transuranici. Il contrario avviene per condizioni di Eh decisamente positive e di pH di minor valore. Nonostante la dissimilarità delle formazioni dalle quali sono state ottenute le acque, emerge una notevole somiglianza di queste ultime relativamente alla concentrazione degli elementi maggiori. Con questo emergerebbe il ruolo di sorgente di un comune insieme di reazioni chimiche. Gli effetti della temperatura sui diagrammi di stabilità dei minerali fondamentali delle formazioni ne rivelano cambiamenti piuttosto pronunciati. La causa è da ascrivere da un aumento piuttosto rapido della solubilità dei silicati con la temperatura, assieme ad un concomitante cambiamento della composizione delle acque sotterranee.

La terza parte riguarda la descrizione quantitativa dei processi di assorbimento che svolgono un ruolo importantissimo di ritardo della migrazione dei radionuclidi. L'assorbimento degli ioni può verificarsi attraverso il loro inglobamento all'interno dei reticoli dei minerali ospiti e in tal caso diviene irreversibile, ma il processo più generale è l'assorbimento sulle superfici esterne. Al diminuire delle dimensioni dei granuli passando da sabbie a limi ad argille l'area superficiale disponibile per l'assorbimento aumenta di diversi ordini di grandezza (fig. 6.2). Per una quantità di un grammo, la superficie espressa da un sedimento di granulometria di  $100\ \mu$  è di  $0.1\ m^2$ , quella espressa da un sedimento di granulometria di  $0.1\ \mu$  è di  $100\ m^2$ . La maggior parte dei sedimenti fini è costituita da minerali argillosi (caolini, illite, montmorillonite, e altri), che sono complessi allumino e/o silicati di magnesio e che danno usualmente luogo a strutture stratificate. Raramente tali minerali, ricorrenti sotto forma di fiocchi e aghi, superano la dimensione di  $2\ \mu$ , ma la loro sottigliezza è appunto alla base dell'enorme capacità superficiale sopra indicata.

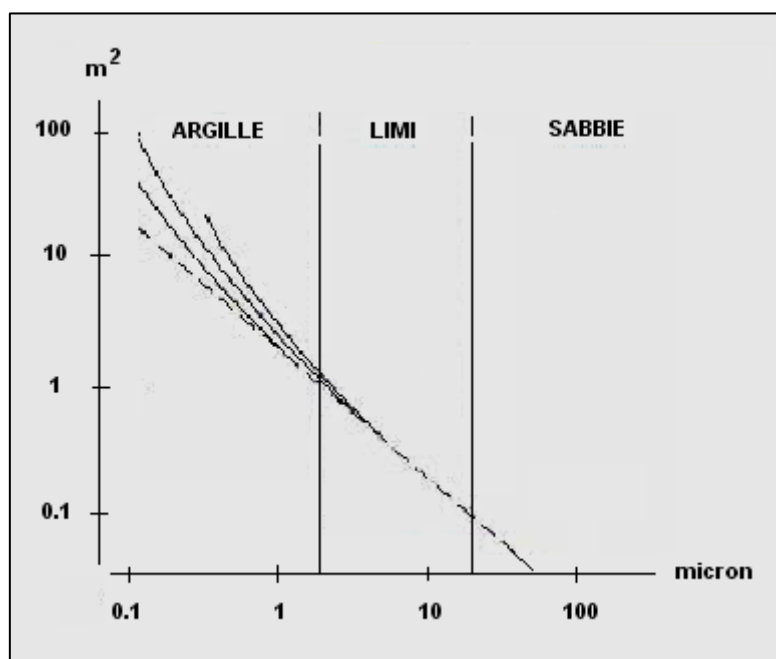


Fig. 6.2

Nella maggior parte dei casi l'assorbimento dei radionuclidi può essere appropriatamente descritto come una reazione di scambio ionico. Una spiegazione ovvia è che i materiali naturali, ad esempio argilla e simili, non sono mai *pure* nel senso chimico. Equazioni descriventi il comportamento anomalo dell'assorbimento da parte di mescolanze di minerali hanno ormai riprova sperimentale. Nella realtà i prodotti di alterazione ricoprono le superfici dei minerali svolgono un ruolo importante nei processi di assorbimento e la loro natura rientra nel dominio d'indagini più propriamente chimiche. Lo sviluppo di una teoria descrivente l'assorbimento su superfici scambiatrici ioniche molto deboli, come gli ossidi idrati, si basa su una disponibilità di dati assai ridotta e non può suffragare le ipotesi che la sostengono. L'assorbimento di atomi estranei nel reticolo ospite di un minerale ricorre ampiamente in natura. Tale fissazione praticamente irreversibile dei radionuclidi si ritiene si verifichi con maggiore facilità a profondità crescenti e può dar luogo a reazioni importanti in condizioni di campo prossimo, e questo processo, noto come sostituzione isomorfa, o diadochia, appare piuttosto trascurato nel caso dello smaltimento dei rifiuti.

La quarta e ultima sezione analizzata in [1], riguarda meccanismi quali dispersione, diffusione, convezione e le loro interazioni con le reazioni chimiche come la formazione di complessi e l'assorbimento. Sono dimostrati gli effetti di dispersione delle disomogeneità e quelli delle reazioni lente di assorbimento sono forniti e descritti da curve calcolate. Tale concetto nuovo di dispersione cinetica può essere molto importante nel descrivere la diluizione di limitate quantità di contaminanti al di sotto di concentrazioni limite.

## 6.2 Fattori rilevanti per il comportamento dei radionuclidi

Alcuni tra i fattori principali di controllo dell'assorbimento e della precipitazione dei radionuclidi sono:

- mineralogia,
- pH,
- condizioni redox (Eh),
- complessazione idrica.

L'assorbimento si verifica essenzialmente in risposta all'attrazione elettrostatica. Il grado di assorbimento degli ioni è fortemente controllato dal pH delle soluzioni, in quanto entità e polarità della carica netta di superficie di un solido cambia con il pH e la superficie dei minerali diviene progressivamente caricata più negativamente all'aumentare del pH. Il valore di pH al quale il carico netto della superficie solida cambia da positivo a negativo è chiamato Punto di Carica Zero (PZC) o Punto Zero di Carica (ZPC). A valori di pH maggiori del (PZC) la de-protonazione dei gruppi idrossilici di superficie si risolve in una carica negativa netta. A valori inferiori la superficie diviene protonata con il risultato di una carica di superficie positiva. L'assorbimento dei radionuclidi presenti come anioni è pertanto atteso maggiore a pH basso e decresce a pH alto, e il contrario si verifica per i cationi. I radionuclidi formano essenzialmente una varietà di complessi idrati quando

sono disciolti in acqua. La composizione di questi complessi dipende dal pH e dalla composizione delle soluzioni acquose. Il processo dell'assorbimento dei complessi citati per un radionuclide particolare può differire in funzione essenzialmente della loro carica ionica. Per esempio in un sistema idrico di uranio diluito sotto condizioni ossidanti e privo di carbonato e fosfato in soluzione, le specie acquose dominanti per lo U sono  $\text{UO}_2^{2+}$  a valori di pH inferiori a 5,  $\text{UO}_2\text{OH}^+$  a valori di pH tra 5 e 7 e  $\text{UO}_2(\text{OH})^{3-}$  a pH maggiore di 7. La maggior parte delle acque naturali, incluse le acque interstiziali dei cementi, contengono tuttavia carbonio inorganico in forma di bicarbonato e carbonati in soluzione. In queste condizioni i complessi carbonatici di U, quali  $\text{UO}_2\text{CO}_3^0(\text{aq})$ ,  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  e  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  dominano se i valori del pH sono maggiori di 5. A causa della loro carica ionica i complessi anionici  $\text{UO}_2(\text{OH})^{3-}$ ,  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_2^{2-}$  e  $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$  presentano assorbimento minimo a valori maggiori di pH rispetto a specie quali  $\text{UO}_2^{2+}$  e  $\text{UO}_2\text{OH}^+$ [2].

Di seguito vengono riassunti in modo sintetico i principali aspetti geochimici che riguardano i radionuclidi dei rifiuti derivati dalle tecnologie nucleari.

### 6.3 Geochimica dell'Uranio

Riferendoci al ciclo esogeno dell'Uranio, questo compare come specie ossidata  $\text{U}^{6+}$ . In termini estremi, lo ione uranile ( $\text{UO}_2$ )<sup>2+</sup> è molto stabile e al contempo molto mobile in contrasto con lo ione tetravalente  $\text{U}^{4+}$ , relativamente immobile.

#### 6.3.1 L'uranio mobile

L'ione uranile assume importanza nelle condizioni tipiche dell'ambiente supergenico (quando in un deposito di minerali primari o ipogenici come i solfuri ad esempio, può avvenire che l'acqua che circola poco sotto la superficie ossidi il giacimento liberando ioni di metallo e creando dei livelli mineralizzati ad ossidi), tanto che il comportamento dell'uranio è quasi interamente determinato da questo ione. La grande mobilità dell'uranile è dovuta alla tendenza naturale a formare ioni complessi, solubili nell'acqua e molto stabili in dato intervallo di pH (fig. 6.3).

Per quanto riguarda i complessi, nella gamma di pH inferiore a 4 i principali complessi stabili sono i seguenti:  $(\text{UO}_2)\text{F}^+$ ,  $(\text{UO}_2)\text{SO}_4$ ,  $(\text{UO}_2)_2\text{F}_2$ ,  $(\text{UO}_2)\text{HPO}_4$  ai quali si aggiunge la stessa specie  $(\text{UO}_2)^{2+}$ . Tra pH 4 e pH 8 domina largamente il complesso  $[(\text{UO}_2)(\text{HPO}_4)_2]^{2-}$ , mentre a pH più elevato sono più stabili i complessi carbonatici  $[(\text{UO}_2)(\text{CO}_3)_2]^{2-}$  e  $[(\text{UO}_2)(\text{CO}_3)_3]^{4-}$  (fig. 6.4).

Per la formazione dei complessi menzionati le specie fluoruro, idrogeno fosfato e carbonato sono i responsabili principali della mobilità dell'uranio negli ambienti naturali. La maggior parte delle concentrazioni primarie di uraninite ( $\text{UO}_2$ ) risultano dalla riduzione di complessi di uranile assorbiti su una fase organica. Nell'ambiente naturale i complessi di uranile sono allo stesso tempo i vettori

dell'uranio mobile esavalente ( $U^{6+}$ ) ed i precursori delle concentrazioni primarie in minerali uraniferi insolubili ( $U^{4+}$ ) e, in proporzione minore, ( $U^{6+}$ ).

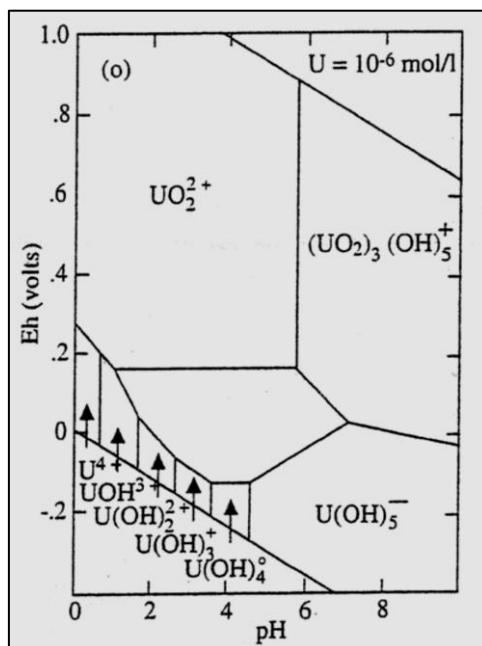


Fig. 6.3 – Gli ioni U nel campo Eh-Ph, [4].

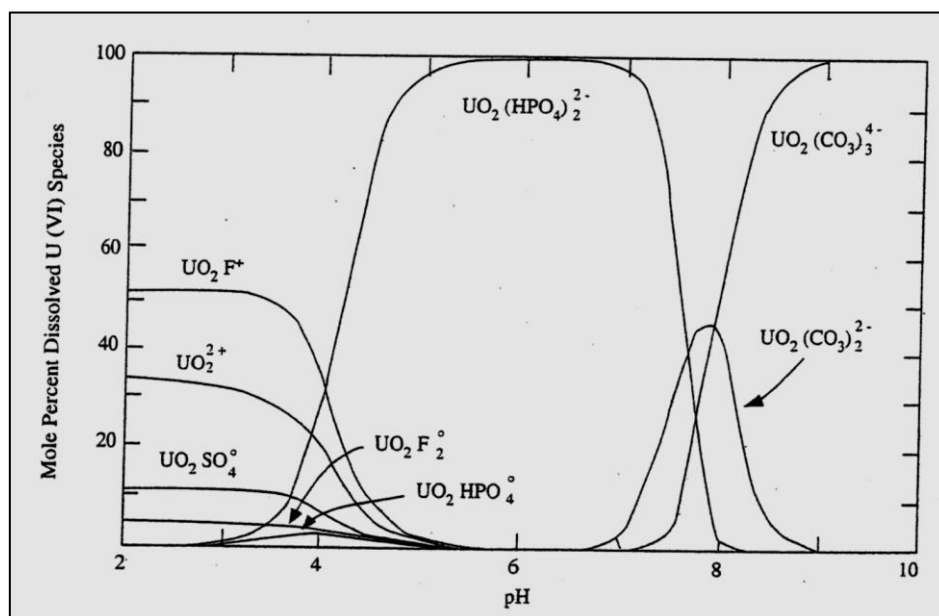
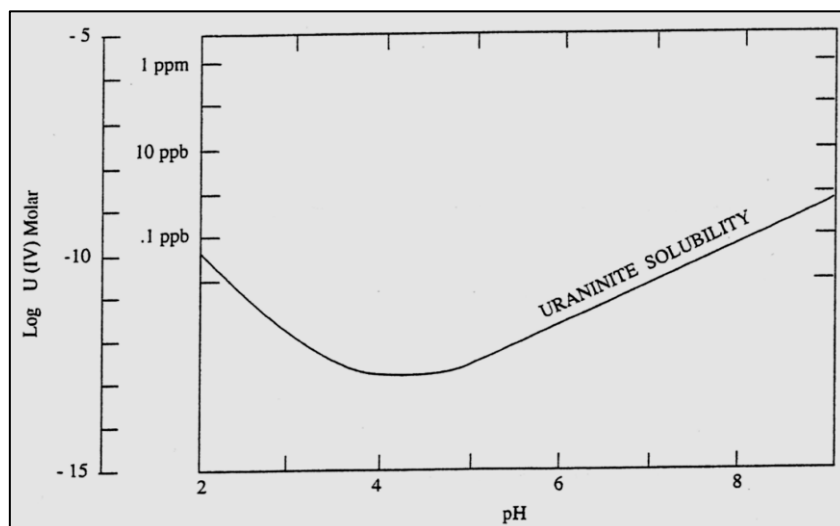


Fig. 6.4 – Distribuzione dei complessi di uranile in funzione del pH, [4].

### 6.3.2 L'uranio immobile

Lo ione  $U^{4+}$  si realizza per lo più nella forma delle specie mineralogiche uraninite e coffinite [ $USiO_4$ ]. L'uraninite ha una formula chimica complessa generalmente semplificata in  $UO_2$ ,

estremamente insolubile nelle condizioni di pH normali (fig. 6.5). La sua bassa solubilità è suscettibile di essere notevolmente aumentata specialmente in presenza di fosfati (fino a 100 volte) , di carbonato (fino a 10.000 volte), o quando l'uraninite si trova sotto una forma amorfa, non ancora cristallizzata ( $10^6$ - $10^9$  volte). Un innalzamento di temperatura da 25°C a 100 °C aumenta la solubilità dell'uraninite di un fattore 8.



**Figura 6.5 – Curva di solubilità dell'uraninite (UO<sub>2</sub>) in funzione del ph, [4].**

La coffinite, di formula complessa abbreviata in  $USiO_4$ , aumenta la propria stabilità in rapporto a quella dell'uraninite nelle condizioni di saturazione intermedia di silice (superiore a quella normale ma inferiore alla saturazione in silice amorfa). Esiste anche un gran numero di minerali stabili di uranio esavalente ( $U^{6+}$ ) che derivano in generale dall'ossidazione e dalla lisciviazione di mineralizzazioni primarie in uraninite e/o coffinite.

### 6.3.3 Fattori di immobilizzazione dell'uranio mobile

L'estrema insolubilità dell'uraninite e della coffinite nei ranges di pH tipici dei fluidi freatici (4-8) permette di considerare l'uranio un metallo intrinsecamente immobile negli ambienti riducenti. Non è così negli ambienti ossidanti nei quali la specie uranile, eminentemente mobile, predomina o dove si formano complessi solubili e molto stabili.

Poiché concentrazioni primarie di uraninite e coffinite derivano probabilmente dalla riduzione di complessi di uranile assorbiti sulla materia organica, quest'ultima appare come uno degli agenti responsabili dell'immobilizzazione dell'uranio esavalente mobile. Altri agenti che contribuiscono all'immobilizzazione delle specie solubili con efficienza variabile. L'efficacia di queste trappole per l'uranio può essere quantificata sotto la forma di un fattore di arricchimento (F.E.) della trappola in rapporto al fluido freatico definito come segue:

F.E. = peso di U assorbito/peso di U in soluzione.

IIF.E. di diverse sostanze naturali si attestano sui valori mostrati nella tabella seguente:

Tab. 6.2

SOSTANZE	F.E. (pH 5 -8.5)
Ossidrossidi di Fe (III) amorfi	$1.1 \cdot 10^6 - 2.7 \cdot 10^6$
Ti (OH) <sub>4</sub> amorfo	$8 \cdot 10^4 - 1 \cdot 10^6$
Torba	$1 \cdot 10^4 - 1 \cdot 10^6$
Goethite naturale finemente granulosa	$4 \cdot 10^3$
Fosforiti	15
Montmorillonite	6
Caolinite	2

In fig.6.6 è evidenziata la capacità, nettamente differenziata, di assorbimento dell'uranio in diverse argille. La similarità energetica (raggio ionico, carica, elettronegatività, ecc.) esistente tra l'uranio e diversi altri elementi della tavola periodica (Y, Zr, Th, Ca, Ba in particolare) determina una possibile sostituzione tra questi elementi e l'uranio all'interno del reticolo cristallino di numerosi minerali e tali sostituzioni contribuiscono ugualmente a immobilizzare efficacemente l'uranio. Così lo xenotimo (YPO<sub>4</sub>) può immobilizzare lo U al posto dello Y; l'uranio può ancora sostituirsi allo Zr nello zirconio (ZrSiO<sub>4</sub>), al Th nella torianite (ThO<sub>2</sub>), al Ce nella monazite [(Ce, La, Y, Th)PO<sub>4</sub>], al Ca nell'apatite [Ca<sub>5</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>3</sub>(F,Cl,OH)], al Ba nella baritina (BaSO<sub>4</sub>) e altri.. [3].

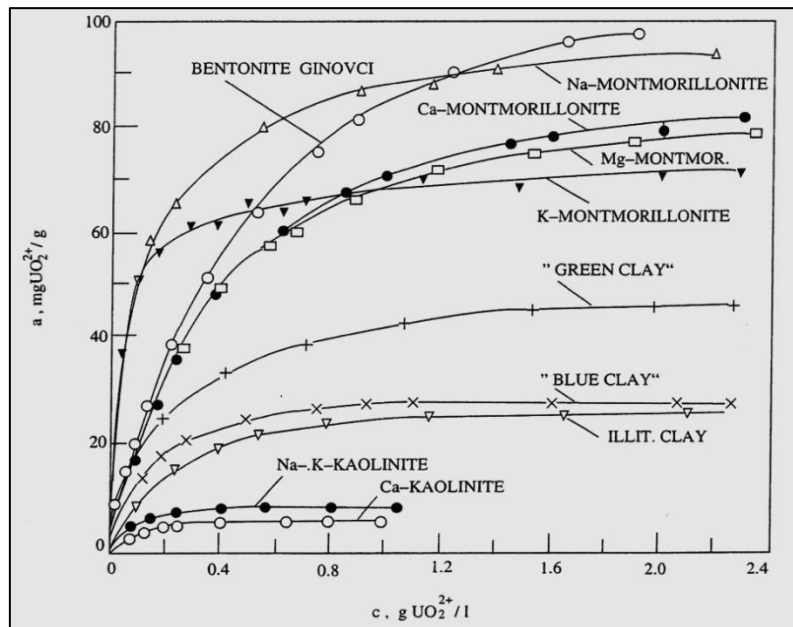
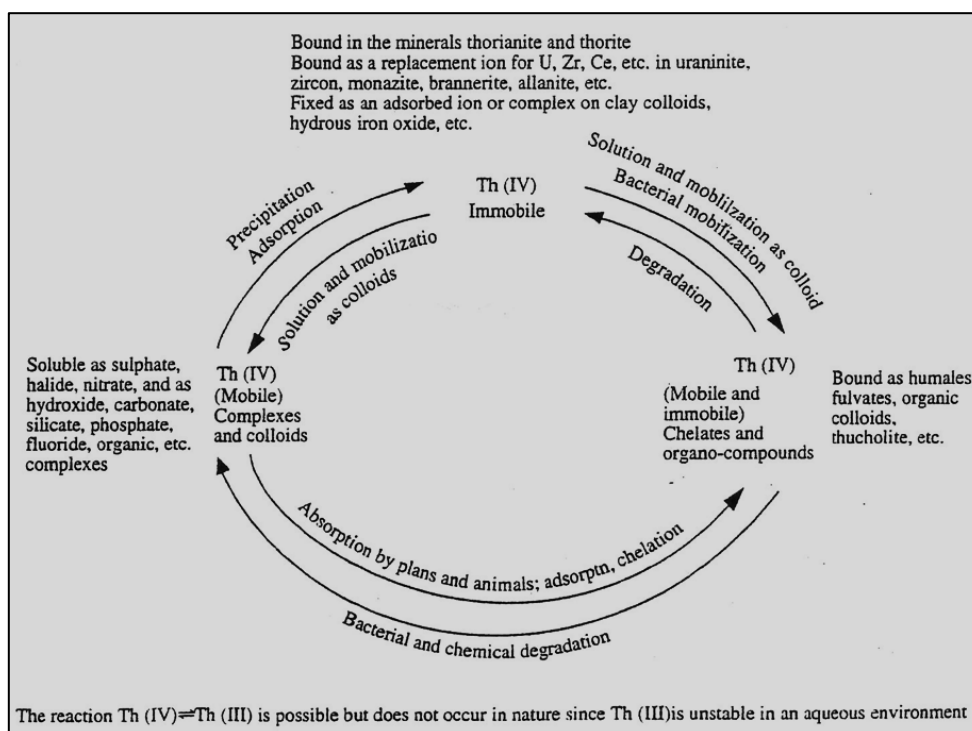


Figura 6.6 - Isotherme di assorbimento della specie ionica  $UO_2^{2+}$  sulle argille ( $T^\circ = 20^\circ C$ ,  $pH = 6$ ) [5].

## 6.4 Geochimica del Torio

Contrariamente all'uranio il torio presenta un solo stato di ossidazione importante dal punto di vista geochimico, quello del  $\text{Th}^{4+}$ . Questo elemento presenta, sul piano chimico, alcune similarità con lo zirconio, l'afnio e certe terre rare, e in particolare il cesio. Nei minerali occorrono frequenti sostituzioni dello Zr da parte del Th nello zirconio, dello Y, del Ce e di altri lantanidi da parte del Th nei minerali di terre rare e infine dell'U da parte del Th in certi minerali uraniferi (uranotorite,  $(\text{U,Th})\text{SiO}_4$ ), generalmente dovute a fattori di raggio ionico e/o di livelli energetici. La maggior parte dei minerali sono refrattari all'alterazione, fatto che spiega la reputazione del torio come elemento difficilmente solubile e immobile nell'ambiente naturale. A contatto di un'acqua di  $\text{pH} > 3$  il  $\text{Th}^{4+}$  subisce idrolisi e trasformandosi in complessi polimerici di tipo colloidale. Da questo punto di vista la geochimica del torio è comparabile con quella della silice, del titanio dello zirconio e dell'afnio. Al contrario dell'uranio, che presenta stati di ossidazione caratterizzantesi per gradi di mobilità molto diversi, nel caso del torio sono le differenti specie chimiche di uno stesso stato di ossidazione che si distinguono per la loro mobilità, così come mostrato in fig. 6.7. Il  $\text{Th}^{4+}$  immobile quando racchiuso in un reticolo minerale, è, come l'uranio, mobile allorché forma dei complessi.



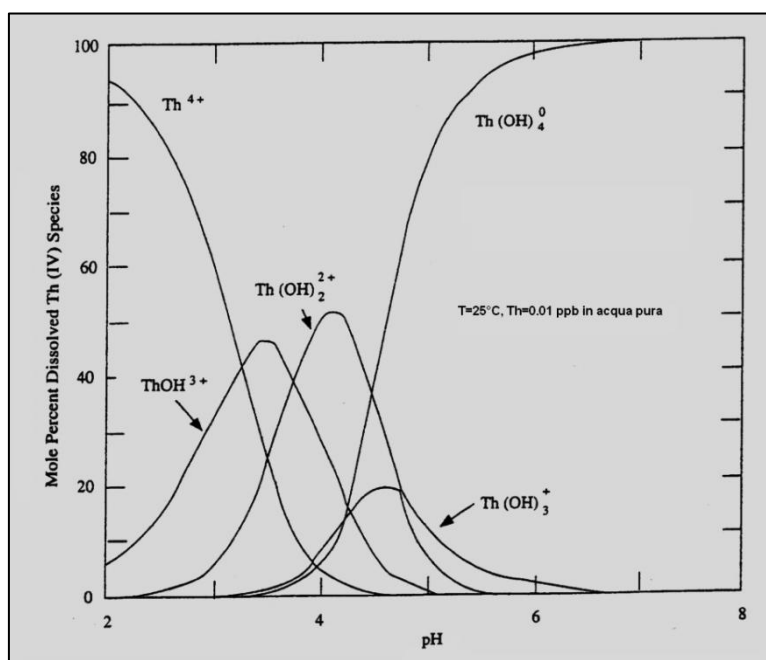
**Figura 6.7 – Ciclo del Th(IV) nella geosfera [6].**

Lo ione  $\text{Th}^{4+}$ , di grandi dimensioni e fortemente carico, presenta una forte tendenza alla formazione di complessi stabili, che differiscono secondo la gamma dei pH considerati, come nel caso dell'uranio. Questa caratteristica aumenta la sua mobilità di parecchi ordini di grandezza al di sotto del pH 7 nel caso dei complessi inorganici e al di sotto del pH 8 nel caso di complessi organici. I principali complessi toriferi stabili sono:  $\text{Th}(\text{SO}_4)_2$ ,  $(\text{ThF}_2)^{2+}$ ,  $\text{Th}(\text{HPO}_4)_2$ , al di sotto di pH



4.5;  $[\text{Th}(\text{HPO}_4)_3]^{2-}$  da pH 4.5 a pH 7.5 e  $\text{Th}(\text{OH})_4$  al di sopra di 7.5 (fig.6.8). In generale, inoltre, i complessi organici (citrati, ossalati ed EDTA (etilene-diamina- tetracetile) predominano sui complessi inorganici in tutti gli ambienti ricchi di materia organica, cioè acque di superficie, paludi, suoli, sedimenti recenti ecc. In più diversi agenti di complessazione (fosfati, leganti organici) aumentano fortemente la solubilità della torianite intorno al pH7.

L'assorbimento del torio sulle argille, gli ossidrossidi di ferro e la materia organica aumenta con il pH ed è praticamente completo intorno a pH 5.5-6.5 benché si stabilisca una competizione tra assorbimento e complessazione con alcuni leganti (citrati, fulvati e acido etilendiamminotetraacetico EDTA). Nei fluidi acidi l'assorbimento del torio è meno forte sulle argille che sulla materia organica; parallelamente, la formazione di complessi organo-toriferi porta a un desorbimento più completo del torio dalle argille che dalla materia organica. Il forte assorbimento del torio sulle argille e sulla materia organica spiega le anomalie naturali delle bauxite (50 ppm), delle bentoniti (25 ppm) e delle argille pelagiche (30 ppm).



**Figura 6.8 – Distribuzione dei complessi idrossilati del torio in funzione del pH, [7].**

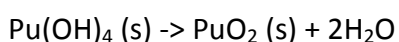
## 6.5 Geochimica dei transuranici(Plutonio e Nettunio)

Il plutonio può esistere in quattro stati di ossidazione (+3, +4, +5 e +6) e forma ioni complessi con leganti sia organici, che inorganici e può formare sospensioni colloidali [9]. Il Pu è un elemento mobile entro un ampio spettro di condizioni ambientali ed è pertanto capace di entrare nella catena alimentare degli oceani. Come conseguenza, pesci e altri tipi di alimenti marini possono essere contaminati con il Pu [8]. In [10] è riportato che la concentrazione di Pu ( $^{239}\text{Pu}$  e  $^{240}\text{Pu}$ ) nell'acqua delle lagune degli atolli di Bikini e di Eniwetock è compresa tra  $14 \cdot 10^{-15}$  e  $114 \cdot 10^{-15}$  Ci/l, mentre quella dell'oceano aperto oscilla fra  $0.3 \cdot 10^{-15}$  e  $0.5 \cdot 10^{-15}$  Ci/l, poiché il Pu nelle acque lagunari costituisce solo lo 0.08% del Pu nei primi 60 cm del sedimento delle lagune è stato

predetto che saranno necessari 400 e 500 anni perché tutto il plutonio del sedimento possa essere rilasciato nella laguna e quindi nell'oceano aperto. Non appena il Pu entra negli oceani viene catturato rapidamente per assorbimento sulle particelle biogeniche. Decantando le particelle si decompongono cedendo il Pu assorbito che passa in soluzione nelle acque profonde. Il Pu resta in soluzione fino a che è riassorbito su altre particelle che possono portarlo nel loro percorso verso il fondo dell'oceano. Il Pu può, inoltre, essere rapidamente trascinato verso il basso su particelle grandi per essere da loro rilasciato ancora in colonna d'acqua, all'interfaccia acqua-sedimento o dopo il seppellimento [11]. Alcuni ricercatori osservano che dopo il seppellimento il Pu potrebbe essere rilasciato solo nel livello superficiale ossidato dei sedimenti del fondo. Nei sottostanti livelli di sedimenti con carattere riducente il Pu verrebbe immobilizzato, tutto questo se il Pu venisse rilasciato dalle particelle che lo hanno in precedenza catturato [12]. La geochimica del Pu negli oceani comprende processi complessi che riflettono non solo le proprietà geochimiche ma anche la produttività biologica dell'acqua e l'apporto di particelle sedimentarie, entrambe variabili regionalmente nell'oceano.

## 6.6 Diagrammi Eh-pH per Nettunio e Plutonio

Anche le proprietà geochimiche degli elementi transuranici possono essere presentate in forma di diagrammi Eh-pH [13]. La mobilità di questi elementi, indicata dai diagrammi, dipende dalla condizione di assunzione di idrossido od ossido per essere fase stabile. Per esempio, il Np può formare  $\text{Np(OH)}_4$ ,  $\text{NpO(OH)}_2$ , o  $\text{NpO}_2$  ognuno dei quali contengono  $\text{Np}^{4+}$ . Similmente il Pu può esistere come  $\text{Pu(OH)}_4$  o  $\text{PuO}_2$ . Gli idrossidi solidi si trasformano spontaneamente in ossidi quando il rapporto acqua/roccia è ridotto dopo la precipitazione iniziale dell'idrossido. Nel caso del Pu la trasformazione è rappresentata dalla reazione:



Da qui il  $\text{PuO}_2$  risulta la fase stabile anche se quella metastabile  $\text{Pu(OH)}_4$  possa inizialmente precipitare da soluzione acquosa. In presenza di ioni carbonatici, gli elementi transuranici possono formare sia carbonati solidi che ioni carbonatici complessi.

La trasformazione di  $\text{Np(OH)}_4$  a  $\text{NpO(OH)}_2$  ed infine  $\text{NpO}_2$  è accompagnata da una decisiva decrescita della solubilità e quindi della mobilità di questo elemento a 25°C in condizioni che prevalgono alla superficie della terra o a debole profondità. Dai diagrammi Eh-pH dedotti da [13] si possono delineare alcuni comportamenti per Np e Pu, tra le quali:

- il Np non è previsto mobile nelle acque sotterranee sotto normali condizioni di pH ( $3 < \text{pH} < 7$ ),
- gli ioni  $\text{PuO}^{2+}$  e  $\text{Pu}^{4+}$  sono dominanti solo a  $\text{pH} < 2$  ed  $\text{Eh} > +1.0 \text{ V}$  e quindi assumono raramente importanza negli ambienti naturali,
- il Pu può essere mobile in acque sotterranee acide come anche in condizioni ossidanti,

- $\text{Pu}^{5+}$  e  $\text{Pu}^{6+}$  sono concentrati nella fase acquosa mentre  $\text{Pu}^{3+}$  e  $\text{Pu}^{4+}$  dominano nelle particelle sospese,

L'odierna discussione scientifica mette in evidenza la circostanza che i diagrammi Eh-pH sono rappresentazioni incomplete della geochimica del Pu nei sistemi acquosi naturali. Presumibilmente i fenomeni di scambio ionico influenzano le proprietà degli ioni del Pu in soluzione. In più gli studi di dissoluzione, trasporto e deposizione dei radionuclidi a vita lunga, come gli isotopi di Pu, Np e Am nei depositi sotterranei, devono essere accoppiati ad altri processi che avvengono contemporaneamente.

L'accoppiamento dei processi meccanici, chimici, termici e idrogeologici, nella previsione delle prestazioni a lungo termine dei depositi di rifiuti radioattivi, è stato un argomento di una conferenza internazionale del 1985 a Berkeley in California, e dove furono discusse le difficoltà di predire gli esiti dei processi geochimici nei depositi di rifiuti a causa della mancanza di sufficienti dati termodinamici e cinetici a elevata temperatura e pressione. Inoltre, fu evidenziata l'importanza di considerare la natura accoppiata dei processi geochimici. Per esempio il gradiente termico attorno ad un contenitore di HLW può determinare la rottura dei minerali silicatici presenti nel campo prossimo. Conseguenza ne è il rilascio di acido silicico nel fluido interstiziale con trasporto dello stesso lontano dal contenitore verso aree di temperatura più bassa, dove precipita come silice amorfa, riducendo pertanto la permeabilità delle rocce. In circostanze simili, sulle pareti esterne dei contenitori possono essere depositati carbonati e solfati, la cui solubilità decresce con l'aumento di temperatura, creando in tal modo una barriera addizionale al movimento dei radionuclidi. La fuga di radionuclidi da un contenitore di HLW è quindi controllata da processi geochimici che modificano la composizione chimica e le proprietà meccaniche delle rocce che circonda gli stessi contenitori. L'accoppiamento del processo, che può mutare col tempo l'ambiente geochimico attorno ad un deposito di HLW, rende più difficile predire il rilascio dei radionuclidi e valutare la sicurezza futura. Conseguentemente tali valutazioni non sono totalmente affidabili e necessitano di essere confermate dall'esame di depositi naturali di elementi radioattivi come le concentrazioni di U in forma di vene o come cemento minerale nelle arenarie o analizzando giacimenti uraniferi tipo *roll*, o il comportamento dello U presente nelle argille (3-5 ppm) in forma ridotta nelle zone di ossidazione dell'ambiente superficiale.

## 6.7 La problematica dei fronti redox

I fronti redox si formano all'interno del sistema roccia/acque sotterranee secondo la capacità d'infiltrazione e veicolazione delle acque superficiali ossidate all'interno delle formazioni rocciose. Lo sviluppo di fronti redox nei campi prossimi e remoti dei depositi di qualsiasi configurazione è normalmente inevitabile. La condizione normale di rocce e acque sotterranee in profondità è riducente (fig. 6.X). L'introduzione di aria e acque ossidanti in un deposito durante le fasi di escavazione e costruzione causa l'ossidazione delle superfici rocciose esposte e viene così a instaurarsi un fronte redox [14].

Se il deposito scavato è lasciato aperto per un periodo prolungato, il continuo rifornimento di ossidanti causa la migrazione del fronte redox dentro la roccia a partire dalle pareti di escavazione, e questa circostanza è necessariamente verificata, per ragioni di monitoraggio e recupero, prima che venga presa la decisione di chiudere e sigillare la struttura. Un esempio di questo processo è stato osservato e misurato in [15] dopo l'escavazione del Grimsel Test Site, dove ricche essudazioni di ferro ed uranio hanno rivestito le pareti del tunnel dopo che l'acqua interstiziale areata era migrata nella roccia causando ri-mobilizzazione e diffusione verso l'esterno dell'uranio contenuto nella matrice rocciosa. Dopo la chiusura finale del deposito, l'aria contenuta negli spazi dei pori verrà consumata nelle reazioni redox e, in qualche decade, il campo prossimo diverrà riducente e parallelamente il pH inizierà a salire. Altri fronti redox possono realizzarsi informazioni non argillose nel campo remoto un deposito dove acque di ricarica, ossidanti, si infiltrano verso il basso e creano un fronte redox all'interfaccia con le acque riducenti esistenti a maggiore profondità. Viceversa, nel caso delle argille le acque di ricarica restano al punto di partenza perché non possono venir drenate attraverso la massa rocciosa.

Tuttavia la causa più significativa di generazione dei fronti redox nei depositi HLW e del combustibile esaurito sarà la radiolisi indotta dai rifiuti. Le barriere ingegneristiche di molti depositi comprenderanno grandi volumi di acciaio che agirà come tampone redox, catturando le specie ossidanti per mantenere condizioni riducenti fino a che tutto il ferro sia stato ossidato. Nel caso, tuttavia, di un deposito senza molto acciaio nel campo prossimo, come nel caso di configurazioni di deposito con contenitori di rame, la capacità tampone redox può essere limitata dall'accessibilità del ferro nei materiali della barriera e nella roccia.

La presenza di bentonite garantisce, in ogni caso, una capacità tampone redox potenzialmente molto grande. Per esempio nel deposito svizzero HLW proposto sono previsti 50 m<sup>3</sup> di bentonite per contenitore. Secondo le analisi presentate in [16] il contenuto di ferro della bentonite MX-80, tenendo in considerazione la presenza di pirite nella bentonite é, di 2.4 mg/g di Fe<sup>2+</sup> e di 25 mg/g di Fe<sup>3+</sup>, tuttavia non tutto il Fe<sup>3+</sup> è disponibile per la reazione con i riducenti (principalmente idrogeno) prodotti per via radiolitica e solo una frazione di Fe<sup>2+</sup> è accessibile per reazioni con gli ossidanti radiolitici (principalmente perossido di idrogeno) [17].

Se l'accessibilità del ferro nel campo prossimo è limitata, lo stesso campo prossimo può divenire ossidante e viene a stabilirsi un fronte redox. In questo caso la distanza di migrazione del fronte redox nel campo remoto è controllata dal grado di produzione dell'ossidante e dal contenuto e dall'accessibilità del ferro nella roccia e nei materiali della barriera disponibili per la reazione redox. Tuttavia, è improbabile che un fronte redox possa muoversi su distanze grandi e, come linea guida è stato calcolato che, in una roccia con lo 0.2% di Fe<sup>2+</sup>, un fronte redox può muoversi approssimativamente di 50 m in 10<sup>6</sup> anni, e conseguentemente, la chiusura e la sigillatura del deposito a qualche decennio o secolo dal suo riempimento, con effetto di isolamento dall'ambiente ossidante esterno rende del tutto irrealistico questo scenario.

La solubilità e la speciazione di molti radionuclidi è fortemente influenzata dall'ambiente redox. Il loro potenziale di trasporto cambia pertanto significativamente attraverso il fronte redox. In pratica, se il campo prossimo di un deposito è debolmente ossidante a causa della radiolisi delle

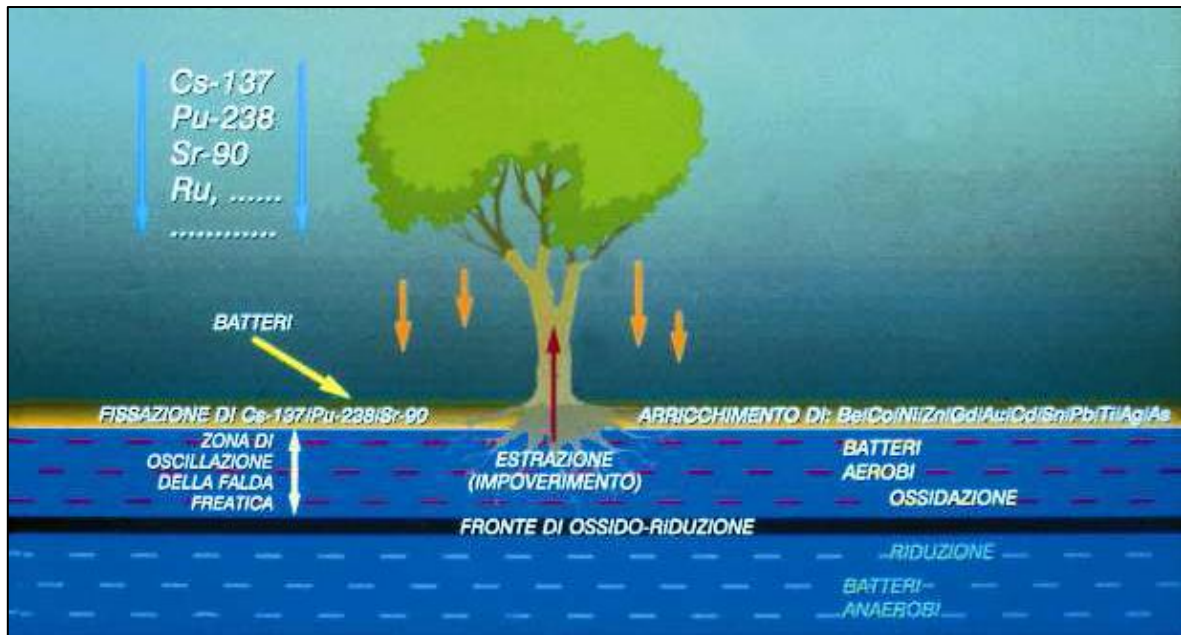
acque sotterranee, i radionuclidi migranti verso l'esterno precipitano e si accumulano una volta che raggiungano condizioni più riducenti al fronte redox. Tale condizione, favorevole per la ritenzione dei radionuclidi, potrebbe essere problematica se tali precipitati fossero in forma di colloidali mobili. Nel caso molto improbabile che un fronte redox comunichi con acque ossidanti in una zona di fratture profonde potrebbe verificarsi una grande immissione di alte concentrazioni di radionuclidi.

I fronti redox, e gli accumuli elementari associati, sono presenti naturalmente nelle formazioni rocciose ove costantemente l'acqua sotterranea passa da condizioni riducenti a ossidanti o viceversa. In queste situazioni si formano concentrazioni a livello di mineralizzazioni anche economiche o di semplici tracce quando fluidi ricchi di elementi minerali precipitano le specie disciolte nelle zone di cambiamento nell'ambiente chimico-fisico, ad esempio in corrispondenza di una discontinuità. Tale evenienza può verificarsi come nel caso di una discontinuità geochimica nella quale temperatura, pressione, pH od Eh cambiano significativamente.

Per quanto riguarda l'utilizzo di analoghi naturali a sostegno della comprensione dell'importanza del fronte redox si può osservare che alcuni depositi minerali sono formati ai fronti redox e pertanto possono, in prima approssimazione, essere considerati analoghi ai processi di accumulo dei radionuclidi ai fronti redox nel deposito. In molti casi, tuttavia, i giacimenti si formano per precipitazione da fluidi idrotermali o pneumatolitici, le cui temperature, superiori ai 500-600°C, sono significativamente al di sopra delle temperature attese nell'ambiente del deposito e, come tali, non sono direttamente rilevanti come analoghi naturali. Per di più, elevati livelli di materiali organici sono spesso partecipi dell'immobilizzazione dell'uranio dai fluidi, come nel caso delle mineralizzazioni di uranio di Oklo, e tale fatto limita ulteriormente il loro potenziale di analogo. Esistono tuttavia alcuni tipi di giacimento, che si sono formati a temperature simili a quelle attese in un deposito; un tipo in particolare, giacimento secondario di uranio o deposito *roll-front*, è stato proposto come analogo ed il fatto che questo tipo di mineralizzazione, si realizza a temperatura ambiente, è preferibile, al contrario di quelli sopra citati, per la descrizione del comportamento di U e Transuranici nelle condizioni esistenti al contorno di un deposito di rifiuti radioattivi. La loro azione come trappola redox e la loro natura uranifera significa che essi potrebbero essere potenzialmente utili come analoghi naturali di un fronte redox del deposito, indipendentemente dall'attività microbica e il materiale organico verificabili nei fronti *roll*.

Per quanto l'argomento del fronte redox e le implicazioni correlative sia stato affrontato in studi di laboratorio e di modellazione lo studio in campo è particolarmente adatto a chiarirne la potenzialità. L'orientamento dell'attenzione verso le comuni formazioni barriera circoscrive l'interesse a:

- formazione e comportamento del fronte redox nelle rocce cristalline,
- formazione e comportamento del fronte redox nelle rocce argillose,
- modellazione della migrazione dei radionuclidi al fronte redox.



**Figura 6.9 – Costituzione di un fronte redox al limite fra le zone insatura e saturata.**

### 6.7.1 Formazione e comportamento del fronte redox nelle rocce cristalline

Una delle indagini di maggior dettaglio di fronti redox è stata condotta nella miniera di uranio di Osamu Utsumi, in Brasile, come parte del progetto di analogo naturale di Poços de Calda, dove le rocce locali sono prevalentemente fonoliti [14]. Pur essendo le rocce fonolitiche di tipo vulcanico, e non sono quindi, in senso proprio, cristalline, il loro studio assume significatività di analogo anche per la barriera cristallina per i comuni caratteri idrogeologici. In questo sito il fronte redox tra i due tipi di roccia è generalmente molto netto, ma irregolare nel profilo per le variazioni delle proprietà della roccia e per l'influenza di faglie e fratture attive lungo le quali acque superficiali ossidanti sono penetrate in profondità (fig. 6.10).



**Fig. 6.10 Fronte redox esposto nel fronte di escavazione nella miniera di uranio di Osamu Utsumi (Brasile)**

Mineralizzazioni secondarie di uranio sono presenti allo stesso fronte e la miniera è stata perciò scavata fino a questo livello. Le indagini hanno riguardato i caratteri mineralogici, idrochimici, chimici ed isotopici dei fronti redox, con studi del disequilibrio della serie dell'uranio che hanno permesso di approssimare la velocità del movimento del fronte. I risultati dimostrano un flusso advettivo delle acque sotterranee, per un periodo di alcuni milioni di anni, lungo le fratture e parallele al fronte redox. Perpendicolarmente alle fratture si è sviluppato un trasporto diffusivo delle specie disciolte. Esiste chiara evidenza della precipitazione e dell'arricchimento dell'uranio dalla parte riducente dei fronti redox negli ultimi  $3 \cdot 10^5$  anni. A minor grado si è verificato arricchimento di uranio dal lato ossidante del fronte redox per oltre  $7 \cdot 10^5$  anni per assorbimento in associazione con ossidi di ferro. È stata tratta la conclusione che i fronti redox sono migrati alla velocità di 1-20 m in  $10^6$  anni, cioè alla stessa velocità di quella dell'erosione del sito. Con la migrazione del fronte i noduli uraniferi formati dal lato riducente vengono interessati dall'ossidazione e si dissolvono lentamente. Parte dell'uranio è trattenuto dagli ossidi di ferro sul lato ossidato fino ad un livello tale da determinare un arricchimento della roccia ossidata. Con la migrazione ulteriore del fronte redox l'uranio della roccia da questo attraversato va ad incrementare quello del lato ridotto.

In generale, tutti gli elementi soggetti a ridistribuzione ossidativa migrano e si accumulano con l'uranio, e molti elementi in traccia, insensibili al redox, sono risultati concentrati, in grado maggiore o minore, al fronte redox per processi di co-precipitazione, di soluzione solida o per processi di assorbimento comportanti la formazione di ossidi idrati al lato ossidato del fronte. Alcuni di tali elementi sono risultati presenti dal lato riducente per incorporazione possibile in minerali come lo  $UO_2$  secondario o lo  $FeS_2$ . La differenza primaria tra i fronti redox di Osamu Utsumi e quelli possibili in un campo prossimo di un deposito è che i primi sono connessi e trascinati dal sistema atmosferico e delle acque superficiali, gli altri no.

Esistono tuttavia esempi naturali di fronti redox profondi separati dalle acque superficiali e dall'atmosfera. Rientrano fra questi i *red beds*, originariamente depositi come sedimenti ricchi di ferro, in equilibrio redox con l'atmosfera. Alcuni di questi letti possono essere oggi sepolti molto in profondità sotto rocce sedimentarie ridotte e generare così un ambiente geochimico ossidante in profondità ed un fronte redox tra i *red beds* ed i soprastanti sedimenti riducenti. Tali sistemi offrirebbero l'opportunità di studiare processi di fronte redox in ambiente più strettamente correlabile ad una roccia ospite di un deposito rispetto a fronti redox superficiali.

Sistemi naturali molto più piccoli, ugualmente separati dall'ambiente atmosferico e dalle acque superficiali, sono i *reduction spots* (chiazze di riduzione), ossia piccole strutture (cm) presenti in alcune rocce corrispondenti ad accumuli grossolanamente sferici di elementi sensibili al redox, circondati da un alone di dissoluzione dell'ematite che possono formarsi in varietà di tipi rocciosi, sedimentari e cristallini. Esempi includono rocce ignee alterate, come le vulcaniti permiane nella fossa Saar-Nahe in Germania, lamprofiri, gneiss e graniti nella Svizzera settentrionale, le vulcaniti felsitiche ed i graniti della Foresta Nera. Il meccanismo reale della formazione delle chiazze di riduzione non è ancora chiaro, ma comporta una forte reazione iniziale di ossidazione che può essere controllata dai batteri. La zona redox migra dal centro verso l'esterno causando la

ridistribuzione di un certo numero di elementi nella roccia. Un certo numero di elementi implicati hanno rilevanza per l'eliminazione dei rifiuti radioattivi ed includono uranio, palladio ed elementi rari. Gradienti molto alti di concentrazione di uranio possono persistere in adiacenza al fronte redox nelle chiazze di riduzione fino a  $10^8$  anni, dimostrando l'immobilità degli elementi una volta che si siano stabilizzate le condizioni redox. E' possibile modellare la crescita delle chiazze di riduzione e quindi la velocità della migrazione del fronte redox, sebbene questo possa non presentare alcuna relazione con la velocità di migrazione del fronte redox in un deposito perché questo deve essere controllato, almeno parzialmente, dalla fornitura di riducenti.

### **6.7.2 Formazione e comportamento del fronte redox nelle rocce argillose**

I fronti redox costituiscono parte di un certo numero di sistemi che sono stati studiati come analoghi naturali del trasporto e ritardo dei radionuclidi nei sedimenti e nelle rocce sedimentarie. Il migliore esempio, studiato in argille, di fronte redox è forse quello del Madera Abyssal Plain. Tale fronte è migrato in basso con la penetrazione dell'acqua ossigenata marina nel sedimento, migrazione interrotta dalla deposizione di un nuovo strato di sedimento che ha interrotto la fornitura di acqua ossigenata al fronte rendendolo immobile [14]. Varrebbe la pena di studiare la migrazione dei radionuclidi a partire dal fronte reso inattivo dai sedimenti neo-deposti, mentre le chiazze di riduzione possono essere usate per esaminare il comportamento dei fronti di riduzione nelle rocce argillose nella stessa maniera indicata per le rocce cristalline. Il meccanismo della formazione delle chiazze di riduzione è indipendente dal tipo di roccia sebbene la cinetica del processo possa non esserlo.

Fronti di ossido/riduzione si sviluppano costantemente nelle fratture superficiali delle argille decomprese a seguito della penetrazione di acque superficiali e atmosferiche. Le fratture hanno andamento subverticale. L'ossidazione penetra nelle argille a partire dalle fratture per profondità di alcuni centimetri. Lo sviluppo delle fratture di circa 10 metri verso il basso è contestuale al progredire dell'erosione. Così è anche per l'ossidazione, che penetra nelle argille a partire dalle superfici delle fratture in senso normale alle fratture stesse. L'acqua delle argille, attirata verso l'esterno, ha un percorso inverso. Fra i vari elementi esaminati solo quelli molto sensibili alle variazioni redox, Fe, Mn, As, Au sono stati oggetti di una certa mobilità, comunque limitata a spostamenti di pochi centimetri. U e Th sono risultati perfettamente immobili, indicando che i valori di Eh dovevano essersi mantenuti inferiori a +0.2 e/o che la roccia ospite deve essere stata caratterizzata da un'alta capacità di assorbimento e cattura.

### **6.7.3 Modellazione della migrazione dei radionuclidi al fronte redox**

Attualmente, si rileva la difficoltà dell'individuazione di modelli idonei a rappresentare compiutamente i processi di migrazione di radionuclidi al fronte redox, per questo motivo si auspica il ricorso ad ulteriori analoghi da individuare [14].



La comprensione concettuale della formazione e del comportamento del fronte redox nelle rocce cristalline fratturate è progredita come risultato dello studio dell'analogo naturale di Poços de Caldas. Qui le ubicazioni dei fronti sono controllate da un sistema di fratture idraulicamente attive, ma il trasferimento elementare al fronte redox è prevalentemente diffusivo. Tale sarebbe anche il caso per i fronti indotti radioliticamente e migranti al di fuori del campo prossimo di depositi HLW, combustibile esaurito e ILW di alta attività.

Il fronte redox controlla fortemente la mobilità degli elementi sensibili allo stesso concentrazione progressivamente più elevate che si formano al margine attivo del fronte redox. Anche alcuni elementi in traccia insensibili al redox si concentrano al fronte per processi di co-precipitazione, soluzione solida o processi di assorbimento con minerali di ferro formati attorno al fronte. Nel breve termine i fronti redox possono inibire la migrazione dei radionuclidi agendo come "barriera" oltre la quale i radionuclidi non possono migrare. Se, tuttavia, nel termine più lungo un fronte redox continua a progredire nel campo remoto guidato da ossidanti radiolitici, allora esso potrebbe trasportare i radionuclidi in una zona nella quale essi potrebbero più facilmente essere mobilizzati dalle acque sotterranee determinando un rilascio pulsante. Sebbene questa scala di movimento di un fronte redox sembri altamente improbabile, data la scarsissima velocità di movimento nei siti con fornitura molto elevata di ossidanti, il concetto merita considerazione nel finalizzare i calcoli. Il sistema del fronte redox nelle rocce argillose è stato poco studiato, fatta eccezione per quelli effettuati sulle argille plioceniche italiane (v. studi di Benvegnù e al., 1988 e 1993). Alcune indagini sono state condotte in sedimenti marini e lacustri, per i quali l'obiettivo principale è stato l'esame della diffusione dei radionuclidi lontano dal fronte redox dopo che questo è diventato inattivo. Una modellazione di verifica delle prestazioni dovrebbe includere un modello simile e per il quale è stata determinata una velocità di movimento molto bassa. È possibile che l'esame dei fronti redox nei sedimenti al vertice di una pila di sedimenti possa dare utili informazioni addizionali in mancanza di altri utili sistemi redox nelle rocce sedimentarie. Nessuno dei codici verificati è stato in condizione di modellare accuratamente la mineralogia osservata al fronte redox e la velocità del movimento del fronte. Sono necessari più codici e sviluppo di basi di dati prima che questi codici possano essere usati con confidenza per modellare un fronte redox attivo guidato da radiolisi in un campo prossimo di un deposito.

## 6.8 Geochimica del Cesio

Il  $^{137}\text{Cs}$  è il radioelemento responsabile principale della radioattività prodotta dai rifiuti definiti ad alta attività e lunga vita (HLW). L'emivita di tale elemento è breve, 30 anni; 1000 anni sono pertanto sufficienti per un decadimento che ne riduca l'attività a livelli inferiori a quella del fondo radiometrico ambientale. Lo smaltimento geologico azzererebbe, con ridondanza, il potenziale rischio ambientale connesso alla presenza del  $^{137}\text{Cs}$ . Le barriere tecniche del sistema multibarriera darebbero quindi garanzia di isolamento dalla biosfera per i tempi in gioco. Analoghi archeologici di vetro e cemento testimoniano della lunga durata di questi materiali, ma la forte affinità del cesio per i minerali argillosi troverebbe un ostacolo insuperabile nella barriera tecnica bentonitica,

nella parte della formazione argillosa meccanicamente alterata della roccia ospite, rientrando nel campo prossimo, e infine nella barriera geologica. Il problema per il cesio si porrebbe nel caso di uno stoccaggio definitivo o interinale di lungo periodo o, peggio ancora, a tempo indefinito. In caso di gestione attenta, uno stoccaggio in un deposito sub-superficiale in formazione argillosa annullerebbe qualsiasi pericolo. Diverso è il caso di un deposito in superficie, più soggetto all'attacco degli agenti meteorici ed esposto ad azioni antropiche avverse. Proprio in considerazione della eventualità di adozione di quest'ultima opzione appare opportuno tratteggiare brevemente la geochimica di questo elemento.

### **6.8.1 Il cesio stabile**

Il cesio, forma una serie di composti simili, per proprietà, a quelli formati dagli altri metalli alcalini, per lo più molto solubili in acqua (cloruri e solfati). In tutti i suoi composti naturali il cesio si presenta come catione monovalente, con la configurazione elettronica stabile del gas nobile xenon. Il suo raggio ionico è 1,65 Å (angstrom). Presenta un solo isotopo naturale ( $^{133}\text{Cs}$ ), ma 18 sono gli isotopi prodotti da reazioni nucleari. Fra questi il  $^{137}\text{Cs}$ . Solo tre sono i minerali nei quali il cesio entra come componente essenziale, pollucite, rhodizite e avogadrite. Può essere ospitato nel reticolo di altri minerali, in particolare, come  $\text{CsO}_2$ , nella biotite (sopra il 3.1%), nel berillo (sopra il 7.5%), nella lepidolite (sopra lo 0.3%) e nel microclino (sopra lo 0.2%). Il rapporto K/Cs è molto alto nei K-feldspati (500-11400), mentre nelle miche varia fra 200 e 400. Con un rapporto uguale a 2000 la muscovite è la sola eccezione.). L'elevato contenuto nelle argille le quali, come tutti i colloidi con carica negativa, hanno un'alta capacità di assorbimento, è dovuto alla capacità di attrazione della superficie dei minerali argillosi e dei vuoti interstrato. Per la presenza di una elevata componente argillosa, il suolo ha una grande capacità di fissazione del Cs. Nei suoli francesi ed italiani il Cs presenta intervalli di concentrazione variabili da 0.3 a 25.7 ppm. Liberato nelle acque in forma ionica, il Cs è immediatamente adsorbito dalle particelle argillose e ne segue il destino sedimentario negli ambienti deposizionali. Tale processo rende conto della limitatissima presenza del cesio in forma ionica nei corpi idrici, il Cs ha una forte tendenza all'accumulo nella sfera biologica. Alcune analisi hanno rivelato contenuti medi di 22 ppm nelle piante, di 140 ppm in peso secco negli invertebrati e di 32 ppm in vertebrati (vd. studi di Fornaseri M., 1994).

### **6.8.2 Il cesio prodotto di fissione**

Il comportamento ambientale del radio cesio  $^{137}\text{Cs}$ , è già stato tracciato dal proprio omologo pervenuto a terra nel periodo postbellico di esplosioni nucleari in atmosfera come previsione di un ipotetico rilascio da un deposito superficiale, ma non profondo.

Di seguito viene fornita una descrizione essenziale del comportamento di tale radioelemento nei sistemi ambientali coinvolti. Premessa esplicativa delle differenze di concentrazione del radiocesio negli ambienti che verranno ora descritti è che tali variazioni sono determinate dalle variazioni dei

caratteri ambientali, specialmente di livello idrodinamico, e non dai caratteri chimico-fisico-mineralogici del nuclide:

- l'unicità del termine sorgente generalizzata, esplosioni in nucleari in atmosfera, e non puntuale, determina una distribuzione diffusa su territori vastissimi. Le uniche variazioni nella fornitura di radiocesio all'ambiente sono direttamente riferibili alle differenze di piovosità;
- l'associazione assolutamente precoce a particelle argillose fini determina una unicità di forma di trasferimento del radiocesio nella successione di ambienti;
- la monovalenza del cesio lo rende insensibile alle variazioni chimico fisiche, tipicamente pH-Eh, che possono differenziare i vari ambienti.
- i fattori di rimozione, trasporto e deposizione delle particelle sono quindi di carattere fisico, tipicamente idrodinamico e, sussidiariamente, eolico, biologico o antropico, e non di altro genere;
- il radiocesio segue in definitiva il destino sedimentario delle particelle cui è associato ed i processi di trasferimento e deposizione sono quindi sostanzialmente sedimentari;
- in uno stesso ambito territoriale le differenze di concentrazione del cesio sono principalmente, se non esclusivamente, riferibili alle variazioni dei caratteri dinamico-sedimentari tipici dei vari ambienti;
- le concentrazioni del  $^{137}\text{Cs}$  rilasciato nell'ambiente dagli scarichi autorizzati delle centrali nucleari è valutato in 1/100 rispetto a quelle dei fallout radioattivo.

## BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 6

- [1] Jensen B.S. -Migration Phenomena of Radionuclides into the Geosphere, Radioactive Waste Management, Vol. 5 - Harwood Academic Publ., Svizzera, 1982.
- [2] K. M. Krupka, R. J. Serne - Geochemical Factors Affecting the Behavior of Antimony, Cobalt, Europium, Technetium, and Uranium in Vadose Sediments, Pacific Northwest National Laboratory for DOE - December 2002.
- [3] De Putter Th., Charlet, J.M., Analogies naturelles en milieu argileux. Essai de synthèsebibliographique, NIROND 94-13, ONDRAF/NIRAS, 1994.
- [4] D. Langmuir, Uranium solution-mineral equilibria at low temperatures with applications to sedimentary ore deposits, *Geochim. Cosmochim. Acta* 42 (1978).
- [5] Borovec, Z. (1981) The adsorption of uranyl species by fine clay. *Chem. Geol.* 32, 45–58.
- [6] Boyle, R. W. 1982 Geochemical prospecting for thorium and uranium deposits - Elsevier Scientific Pub. Co.
- [7] Langmuir, D., and J.S. Herman. 1980. "Mobility of Thorium in Natural Waters at Low Temperatures." *Geochimicaet. CosmochimicaActa*, vol. 44.
- [8] Faure, G., 1998. "Principles and Applications of Geochemistry", 2nd ed., Prentice Hall.
- [9] Cleveland, J. M., 1979. The chemistry of plutonium: Prepared under the auspices of the Division of Technical Information, United States Atomic Energy Commission - American Nuclear Society (La Grange Park, IL).
- [10] Noshkik V.E., Wong K.M., Eagle R.J., Plutonium concentrations in fish and seawater from Kwajalein Atoll, *Health Physics.* 37. (1979).
- [11] E.R. Sholkovitz, 1983, The geochemistry of plutonium in fresh and marine water environments, *Earth-Science Reviews*, Volume 19, Issue 2, April 1983.
- [12] A.Brondi, 2006, Affidabilità del confinamento definitivo dei rifiuti radioattivi, SO.G.I.N. Società gestione impianti nucleari, Italia.
- [13] Brookins, Douglas G. , 1988, Eh-PH diagrams for geochemistry, Springer-Verlag.

[14] Miller W. M., Alexander W. R., Chapman N. A., McKinley I. G. & Smellie J. A. (2000). Geological Disposal of Radioactive Wastes and Natural Analogues. Waste Management Series, vol. 2, Pergamon, Amsterdam, The Netherlands.

[15] Baertschi P.; Alexander W.R.; Dollinger H. (1991): Grimsel Test Site: Uranium migration in crystalline rock: Capillary solution transport in the granite of the Grimsel Test Site, Switzerland. Nagra Technical Report NTB 90-15. Nagra, Wettingen.

[16] Müller-Vonmoos and G Kahr, Mineralogische Untersuchungen von Wyoming Bentonite MX-80 und Montigel, Nagra Tech. Ber. 83 (1983).

[17] T.E. Eriksen, P. Ndalamba, 1988, On the formation of a moving redox front by  $\alpha$ -radiolysis of compacted water saturated bentonite, The Royal Institute of Technology -Stockholm Department of Nuclear Chemistry – SKB Tech. Rep. 88-27.

## 7. TRASPORTO E RITARDO DELLA MIGRAZIONE DEI RADIONUCLIDI IN VARI MEZZI GEOLOGICI

Alcuni processi chimici e fisici sono assolutamente importanti per il trasporto ed il ritardo del flusso dei radionuclidi negli ambienti del campo prossimo e del campo remoto [1-2].

Rientrano fra questi:

- solubilità e speciazione elementare;
- processi di ritardo elementare;
- diffusione nella matrice;
- fronti redox;
- radiolisi;
- colloidj;
- attività microbica;
- generazione e migrazione di gas.

### 7.1 Solubilità e speciazione elementare

La conoscenza della composizione chimica principale delle acque nel campo prossimo permette la predizione della solubilità e della speciazione idrica degli elementi in tracce, inclusi i radionuclidi, utile base nel riconoscimento delle proprietà di trasporto. Con estensione al campo remoto può essere definita previsionalmente la chimica delle acque in equilibrio con la roccia ospite e con ogni minerale rivestente le fratture. Durante l'evoluzione di un deposito, la migrazione nella roccia ospite di contaminanti, tipo lisciviati a elevato pH del cemento, può determinare la costituzione di una zona chimicamente disturbata al contorno del deposito. Questa zona può estendersi nel campo remoto determinandone un'estesa alterazione. Modelli geochimici possono essere utilizzati per predire il movimento dei fronti geochimici che vengono a determinarsi e con essi le conseguenze a carico delle prestazioni del deposito. Una problematica emersa in [2] è la valutazione dell'effettiva entità dell'alterazione della zona disturbata, in quanto occorre rapportare tutto al volume allo spessore della barriera naturale complessiva cosicché un'alterazione parziale o molto limitata non inficia la capacità complessiva di barriera. Questo e altri tipi di alterazione sono ammessi purché la parte residua della barriera sia comunque in grado di assicurare l'isolamento del sistema dalla biosfera.

Numerosi sono gli approcci per la modellazione dei sistemi geochimici. I più comunemente usati assumono un rapido raggiungimento di equilibrio fra roccia e acqua sotterranea. Di conseguenza la distribuzione delle specie acquose e degli indici di saturazione dei solidi possono essere calcolati dalle libere energie di formazione (o costanti di equilibrio) attraverso la soluzione di un insieme di distribuzione di equilibrio e di bilancio di massa.

Le coppie redox possono tuttavia comportare trasferimenti multipli di elettroni (es.: solfato/solfuro, nitrato/ammoniaca, carbonato/metano) e trovarsi quindi in una condizione anche molto lontana dall'equilibrio.

E' importante distinguere tra applicazione di codici geochimici agli elementi maggiori presenti nelle acque e a elementi esotici in traccia d'interesse che ricorrono appunto in basse concentrazioni e essere inclusi in un'ampia serie di minerali per sostituzione elementare. Nel caso degli elementi maggiori esiste un'estesa disponibilità di dati di base termodinamicamente rilevanti e ben supportati da molti studi in campo e in laboratorio in un ampio spettro di ambienti geochimici.

La maggior parte degli studi delle prestazioni per depositi HLW e di molti L/ILW, ha identificato la bassa solubilità di alcuni elementi come fattori chiave contribuenti alla sicurezza. In tali analisi la solubilità è rappresentata piuttosto semplicisticamente come un limite di solubilità indipendente dal tempo.

La solubilità può essere definita come la concentrazione dell'equilibrio massimo ottenibile, in una soluzione di chimica definita, che può essere raggiunta da un elemento specifico. La definizione si riferisce a concentrazioni in soluzione reale e non considera l'assunzione di colloidali. Poiché la verifica delle prestazioni segue procedure soggettive che implicano l'integrazione d'informazioni di campo, di laboratorio e teoriche di selezione dei valori che possono essere definiti realistici o conservativi e la spiccata aleatorietà dei dati di base, delle procedure per il loro ottenimento e dei codici per la loro elaborazione, suggeriscono l'assegnazione di un particolare significatività al ruolo degli analoghi naturali nella verifica della applicabilità dei dati alle estese scale temporali ed alla intrinseca eterogeneità dell'ambiente geologico.

La validazione dei codici geochimici usati per predire solubilità e speciazione dei radionuclidi è uno dei successi, scientificamente riconosciuto, degli studi degli analoghi naturali. Sono raccomandate più rigorose verifiche di modelli predittivi in sistemi nei quali la saturazione di una serie di elementi in traccia rilevanti può essere attesa in acque di chimica appropriata, come quella di acque chimicamente riducenti a basso contenuto organico. Esiste peraltro anche la necessità di appropriati siti di analoghi, particolarmente di corpi minerali contenenti un ampio spettro di elementi rilevanti per le verifiche delle prestazioni (es. selenio, palladio, nichel, stagno) in contatto con acque riducenti in lento movimento, nelle quali si possa pensare che sia stata raggiunta la saturazione. Sono anche fortemente raccomandati sviluppo ed applicazione di tecniche di misura di speciazione in situ, dal momento che è stata riscontrata una discrepanza considerevole tra codici e dati di base. Per gli studi futuri è importante che si valuti la differenza tra le previsioni dei modelli ed il più comune approccio della simulazione del comportamento geochimico del sistema.

Una maggiore limitazione dei codici geochimici standard è la loro incapacità di trattare soluzioni solide nelle quali molti radionuclidi sono inclusi. L'omissione di soluzioni solide dai modelli di verifica delle prestazioni può risultare conservativa ma potrebbe comportare sovrastime della solubilità di vari ordini di grandezza. Sono necessari tentativi per migliorare la rispondenza dei codici al reale. Gli studi degli analoghi funzionano da battistrada in questo settore.

## 7.2 Processi di ritardo elementare

Abbiamo già descritto nei precedenti Capitoli che il movimento dei radionuclidi in soluzione attraverso i materiali del sistema delle barriere ingegneristiche del campo prossimo e lungo i percorsi di migrazione nelle rocce del campo remoto è controllato da processi di *advezione* e *diffusione* nelle acque interstiziali e nelle acque sotterranee. Un numero molto piccolo di radionuclidi come il  $^3\text{H}$  (trizio),  $^{36}\text{Cl}$  e  $^{129}\text{I}$ , interagisce così debolmente con i materiali solidi attraversati che possono essere considerati muoversi alla stessa velocità delle molecole individuali delle acque sotterranee e si pensa che migrino conservativamente rispetto all'acqua.

La maggioranza dei radionuclidi rilasciati dai rifiuti interagisce tuttavia con materiali del deposito e delle superfici della roccia sulla quale fluisce l'acqua o è soggetta a cambiamenti nel comportamento in soluzione nelle interazioni acqua-roccia lungo il percorso del flusso. Tali processi possono ritardare il loro movimento relativo rispetto a quello dell'acqua non solo rallentando la loro progressione attraverso il sistema ma anche riducendo la loro concentrazione in soluzione fino al punto in cui venga raggiunto l'equilibrio. Questi processi di ritardo sono quindi positivi per la sicurezza del deposito ed un grande sforzo è stato dedicato alla loro caratterizzazione e quantificazione.

Processi di ritardo in natura possono essere essenzialmente chimici e fisico-chimici. I meccanismi sinora identificati [3], presentati schematicamente nella fig.7.1, sono i seguenti:

Meccanismi di ritardo chimico:

- assorbimento;
- scambio ionico;
- precipitazione;
- mineralizzazione;

Meccanismi di ritardo fisico-chimico:

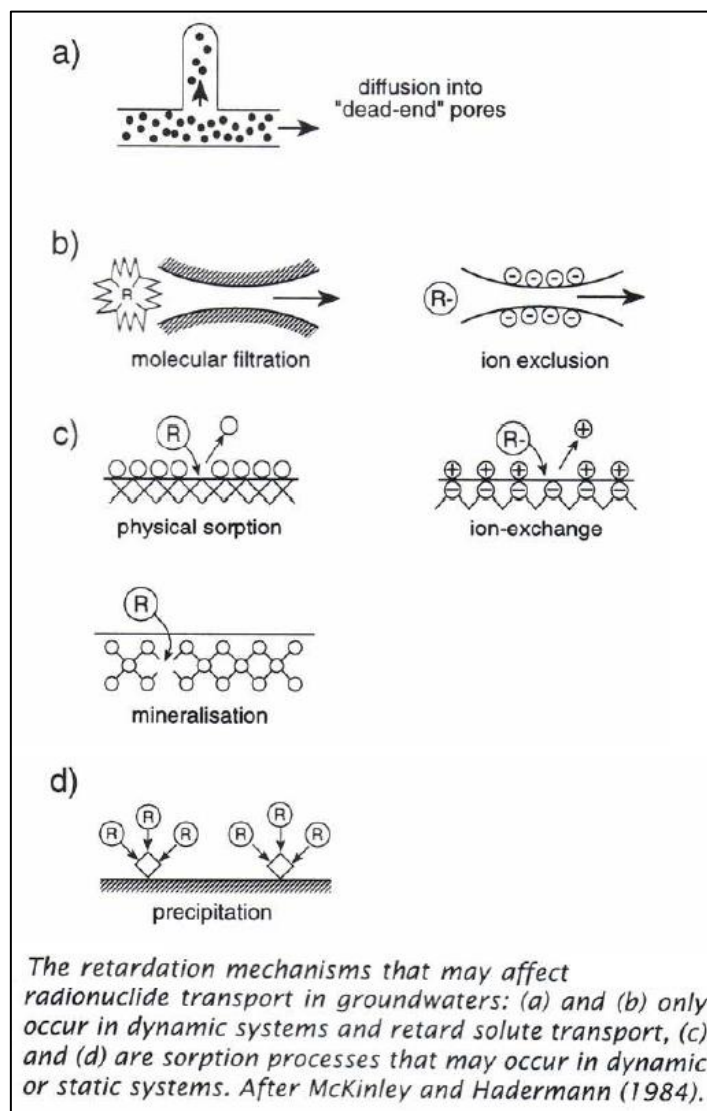
- diffusione nella porosità secondaria della "matrice delle rocce";
- filtrazione molecolare;
- esclusione ionica.

Assorbimento e scambio ionico sono spesso collettivamente definiti col termine di "assorbimento", che include le interazioni chimiche con i solidi che ritardano il trasporto. L'assorbimento è generalmente modellato come un processo reversibile per il quale i radionuclidi assorbiti possono essere rilasciati in soluzione al cambiare della concentrazione o della composizione della soluzione. Le cinetiche di desorbimento sono generalmente più lente delle cinetiche di assorbimento. Possono esistere casi nei quali l'assorbimento può essere considerato irreversibile.

In senso stretto, e in accordo con i principi della termodinamica, nessun processo chimico, come l'assorbimento dei radionuclidi da parte delle superfici minerali, può essere certamente irreversibile. Tutte le reazioni chimiche sono reversibili, ma la portata dell'irreversibilità dipende



dal tempo e dalle condizioni necessarie per la reversibilità della reazione. Nel caso dell'esame della verifica a sostegno delle valutazioni di sicurezza e delle prestazioni di un deposito geologico profondo, si accetta generalmente che le cinetiche di desorbimento siano lente a confronto del tempo considerato nelle verifiche, in condizioni però di costanza delle condizioni chimico-fisiche.



**Fig. 7.1 - Meccanismi di ritardo dei radionuclidi nelle acque sotterranee [3]**

La precipitazione non è un processo di assorbimento ma può essere difficile discriminare tra i due meccanismi negli studi sia in situ, sia in laboratorio. L'assorbimento dovrebbe in generale verificarsi come processo dominante a basse concentrazioni di radionuclidi nelle soluzioni. All'aumentare di tali concentrazioni, la precipitazione di fasi, nelle quali il radionuclide d'interesse sia una componente stechiometrica, ad esempio una componente essenziale della struttura minerale, può verificarsi se viene raggiunta la saturazione nelle acque sotterranee. Nei casi in cui l'ammontare totale dei solidi disciolti nelle acque di fondo sia alto, può costituirsi un ambiente chimico molto complesso nel quale i radionuclidi possono co-precipitare come soluzioni solide in una varietà di fasi mineralogiche od essere sequestrati da precipitati amorfi, come gli ossiidrossidi di ferro. La stabilità dei minerali neo-precipitati e delle fasi amorphe dipende dal mantenimento di

alte concentrazioni in soluzione. Se le concentrazioni scendono sotto la saturazione (ad esempio dopo che una piena di acque contaminate sia passata, o in un campo prossimo dilavato da acque di fondo dolci) questi minerali cominciano a disciogliersi ed i minerali in essi contenuti tornano in soluzione.

Le cinetiche dei processi di assorbimento e dissoluzione e di precipitazione sono ovviamente importanti nelle predizioni a lungo termine del comportamento dei radionuclidi. L'irreversibilità dell'assorbimento (lento desorbimento) e dei processi di precipitazione sono ovviamente molto comodi nelle verifiche delle prestazioni poiché immobilizzano i radionuclidi in maniera effettiva. Essi sono tuttavia difficili da dimostrare e tutti i modelli più robusti di verifica delle prestazioni assumono che tutti i processi chimici di ritardo siano istantaneamente reversibili. Una sfida per gli analoghi naturali dovrebbe fornire evidenza convincente dell'irreversibilità dei processi di assorbimento (lento desorbimento). Alcuni ricercatori osservano che l'assunzione della reversibilità istantanea è pericolosa e probabilmente irrealistica. Il fatto che le formazioni argillose abbiano il più alto contenuto di metalli pesanti nel dominio delle rocce sedimentarie attesta di per se stesso il processo di irreversibilità, forse non totale, ma certamente prevalente. Le argille hanno assunto il loro carico di metalli pesanti nei suoli, nelle acque continentali e nelle acquemarine andando soggette a tutte le occasioni di desorbimento nell'attraversamento dei vari ambienti. Il contenuto di metalli pesanti è mantenuto perfino nelle argille diagenizzate e in quelle sottoposte all'attacco meccanico dell'erosione e a quello chimico dell'ossidazione delle acque superficiali e dell'atmosfera [4].

In molti casi l'assorbimento irreversibile dovrebbe essere un processo conservativo. In casi nei quali l'assorbimento è irreversibile ma, tuttavia, la capacità di assorbimento della roccia è bassa, i siti di assorbimento potrebbero essere saturati fino ad uno stato nel quale non possono verificarsi ulteriori assorbimenti. Ulteriore obiettivo degli studi di analoghi potrebbe essere quello di verificare le capacità di assorbimento delle diverse superfici rocciose e delle cinetiche dei meccanismi di assorbimento. I processi di assorbimento si verificano generalmente in maniera sufficientemente rapida da permettere di ignorare la loro cinetica nei modelli di verifica delle prestazioni. In un ambiente di flusso effettivamente molto lento delle acque sotterranee, come nel campo prossimo di alcuni concetti di deposito, il sistema è spesso modellato come un contenitore chimico miscelante nel quale le superfici assorbenti, come i cementi e i prodotti della corrosione, rappresentano una componente chiave del modello di concentrazione di soluzioni stazionarie di radionuclidi per il termine sorgente del campo remoto. In tale ambiente le cinetiche dei processi di assorbimento possono divenire importanti se non viene identificato un qualsiasi meccanismo che possa condurre a grandi inhomogeneità nel sistema o a percorsi di rapido transito delle acque sotterranee attraverso il sistema. Le cinetiche di assorbimento nel campo remoto non vengono considerate nella verifica delle prestazioni nonostante che cinetiche di precipitazione e mineralizzazione assumano rilievo nel caso tali processi vengano inclusi nella verifica.

Nel caso i flussi delle acque sotterranee siano relativamente rapidi, come ad esempio nelle zone di maggiore fratturazione, i meccanismi di ritardo diverrebbero, sempre più, meno significativi nel

controllo delle velocità di rilascio dei radionuclidi e, in alcune verifiche di prestazione, non viene loro assegnato ruolo alcuno. Il ritardo durante il trasporto rappresentava uno dei primi meccanismi da essere investigato con lo studio degli analoghi. Gran parte del lavoro iniziale fu condotto sui reattori di fissione naturale di Oklo, che potevano essere considerati come sorgenti puntiformi o zone di prodotti di fissione e di attinidi dai quali il trasporto poteva essere misurato. Studi simili furono condotti in altre località nelle quali sorgenti di serie naturali di radionuclidi potevano essere trovate, come a Morro do Ferro o al contatto tra intrusioni ignee e rocce ospiti. Altri studi hanno esplorato gli ambienti geologici nei quali non esisteva alcuna sorgente puntuale di radionuclidi, ad esempio profili di alterazione delle rocce, acquiferi con ben definite velocità di flusso ed acquiferi con velocità di flusso poco definite.

### **7.3 Trasporto e ritardo per diffusione matriciale e per variazioni redox.**

Gli argomenti di maggior rilevanza per trasporto e ritardo dei radionuclidi che sono stati, o potrebbero esserlo, indirizzati verso uno studio degli analoghi per supportare le corrette modellazioni dei fenomeni, sono:

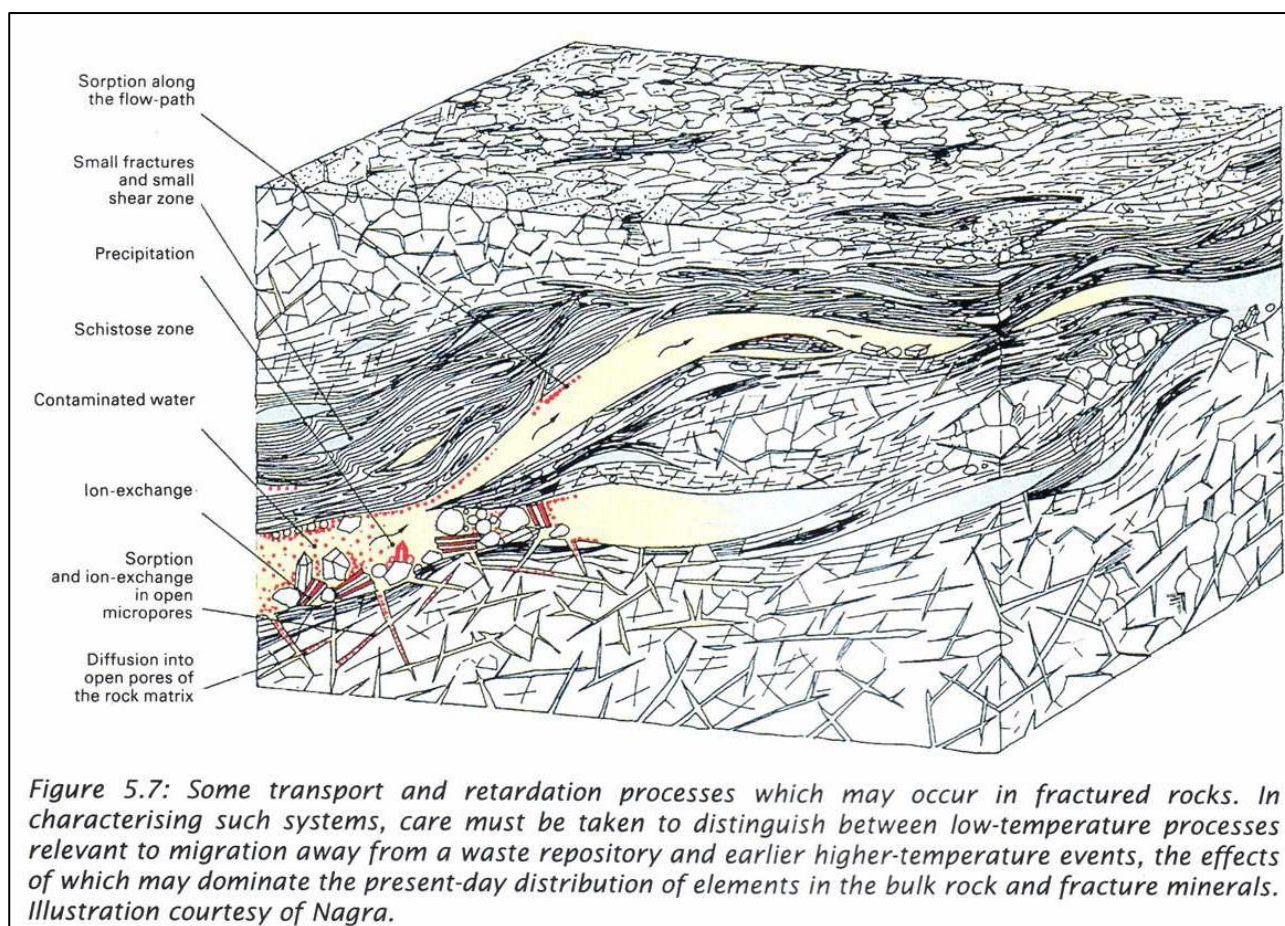
- trasporto e ritardo all'interno di rocce cristalline fratturate;
- trasporto e ritardo all'interno di rocce argillose;
- trasporto e ritardo all'interno di depositi di ceneri vulcaniche;
- trasporto e ritardo all'interno di evaporiti;
- trasporto e ritardo all'interfaccia geosfera-biosfera;
- misura in situ di coefficienti di distribuzione;

#### **7.3.1 Trasporto e ritardo all'interno di rocce cristalline fratturate**

Il meccanismo principale di trasporto e ritardo nelle rocce cristalline fratturate è l'advezione lungo canali idraulicamente attivi all'interno di una rete di fratture (vd. fig. 7.2). Tali fratture sono usualmente rivestite da mineralizzazioni secondarie risultanti dall'alterazione idrica o idrotermale della roccia e i minerali rivestenti la frattura dipendono dalla mineralogia della massa rocciosa e dalla chimica delle acque sotterranee e, pertanto, sono specifici del sito. Tali minerali sono estremamente importanti per comprendere il trasporto dei radionuclidi della roccia perché sono proprio i minerali di rivestimento che dominano ritardo ed assorbimento nelle fessure. Nelle strutture fortemente alterate tali minerali possono includere gran parte della zona di più alta porosità nella quale può trovarsi realizzata la matrice di diffusione.

Molti degli studi degli analoghi non dedicano sfortunatamente sufficiente attenzione all'esatta mineralogia e chimica delle superfici della frattura e pertanto non sono resi disponibili dati sufficienti per estrarre informazioni quantitative a scopo di verifica di prestazioni. Uno studio di maggior dettaglio [5], presenta una complessa serie di minerali di frattura quali: clorite, calcite, siderite, quarzo, epidoto, muscovite, illite, ematite, pirite, goethite, caolinite, argille a strati misti, gibbsite, plagioclasio e feldspato potassico.

Analisi elementari, incluse quelle per terre rare, uranio e torio, sono state effettuate su campioni di minerali riempienti le fratture, sulla roccia ospite e sulle acque sotterranee associate. I dati acquisiti attestano che la ridistribuzione di certi elementi si è verificata in risposta all'alterazione (formazione argillosa) della roccia ospite da parte delle acque sotterranee. L'uranio risulta, ad esempio, essere stato molto mobile ed è associato con la maggior parte dei materiali delle fratture, preferibilmente delle fasi ricche in ferro. Ugualmente il torio, ancora più fortemente legato alle stesse fasi. Il comportamento delle terre rare risulta variare: le terre rare leggere sono preferenzialmente associate alle fasi ricche in ferro, mentre per quelle pesanti risulta una certa selettività per i materiali carbonatici.



**Fig7.2 Processi di trasporto e ritardo nelle rocce fratturate.**

Confermata l'associazione degli elementi rimobilizzati alle fasi ricche di ferro (principalmente ossiidrossidi secondari di ferro), il torio presenta tuttavia problemi collegati al tentativo di separare gli effetti dei processi di bassa temperatura recente dai primi eventi di alta temperatura. Il torio è generalmente immobile in condizioni di bassa temperatura ma può migrare in associazione con i colloidali. La mobilità del torio sembrerebbe quindi più un artefatto sia del trasporto dei colloidali o di precedenti eventi di alta temperatura piuttosto che di trasporto recente a bassa temperatura.

La capacità di assorbimento della fase di rivestimento delle fratture del granito di Aespö (Sw) è collegata alla mineralogia di tale stessa fase costituita da argilla di salbanda, calcite e ossiidrossidi

di ferro. La distribuzione della serie di elementi includenti uranio, torio e terre rare su questi materiali è stata determinata con l'uso di metodi di estrazione sequenziale su minerali separati. Molti degli elementi (terre rare, scandio, torio, uranio, radio e bario) erano associati con precipitati misti di ossiidrossidi di ferro e di calcite, sebbene non fosse chiaro se i meccanismi dominanti di fissazione fossero l'assorbimento o la coprecipitazione. Nello stesso sito risultò significativa la mediazione biogenica, determinata in questo caso attraverso analisi chimica e isotopica dei minerali di frattura. La presenza di batteri solfato-riduttori (SRB) aveva causato la produzione di  $\text{HCO}_3$  e la susseguente formazione locale di calcite. Il meccanismo responsabile dell'incorporazione elementare nella calcite biogenica non è risultato chiaro, ma i dati geochimici indicano favorevole assunzione di terre rare leggere nella calcite. La rilevanza del ritardo del trasporto dei radionuclidi nel campo remoto risulta non chiara in questo studio a causa delle incertezze riguardanti la popolazione ed il significato dei processi microbici nelle rocce profonde indisturbate.

Studi simili sono stati condotti nei graniti di ElBerrocal, dove i minerali di frattura consistono di quarzo, potassio, feldspati, minerali argillosi carbonati e quantità minori di pirite e ossiidrossidi di ferro. Fosfati uranilici e silicati sono presenti in alcuni campioni. Il sito è andato soggetto ad una storia idrotermale complessa che rende difficile l'interpretazione dei dati geochimici. Tuttavia sono state tratte utili informazioni su una serie di elementi associati a minerali di rivestimento delle fratture. Confronti delle composizioni della matrice del granito e dei minerali rivestenti le fratture dimostrano che i minerali argillosi si sono formati direttamente dall'alterazione del granito. Molti degli elementi in tracce, incluso l'uranio, sono risultati associati a fasi minerali specifiche. L'uranio era stato precipitato come fase minerale co-precipitata con la calcite; l'assorbimento di uranio su ossidrossidi di ferro era meno comune in confronto ad altri siti di analoghi.

Il confronto dei risultati di studi di vari elementi su analoghi in un certo numero di siti mostrano simile comportamento di assorbimento di vari elementi. Uranio ed elementi di terre rare sono, ad esempio, frequentemente associati con ossiidrossidi di ferro. Sfortunatamente è molto raro definire in dettaglio la storia paleoidrologica di un sito e pertanto si presenta generalmente il caso che eventi di ritardo a bassa temperatura non possano essere univocamente identificati.

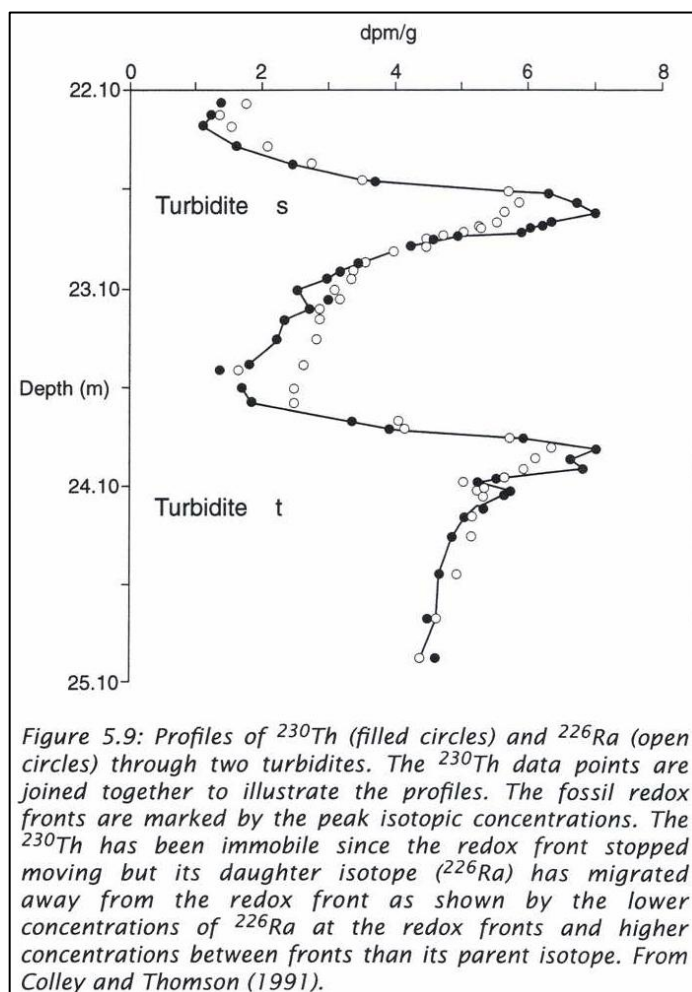
Inoltre, sebbene gli studi di analoghi naturali abbiano dimostrato gli effetti di processi di assorbimento e precipitazione sulle superfici di frattura, nessuna è stata utile a fornire distinzione chiara tra questi processi o a fornire dati quantitativi sul ritardo rispetto al trasporto degli elementi naturali nelle acque naturali. Questi studi forniscono essenzialmente utili osservazioni di effetti netti delle interazioni tra soluti e superficie della roccia e chiariscono quali fasi siano più attive, ma non forniscono il tipo di dati di assorbimento richiesti nella verifica delle prestazioni. Per questo argomento gli studi mineralogici sono progressivamente legati ad esperimenti di laboratorio per quantificare i processi di interesse.

### **7.3.2 Trasporto e ritardo nelle rocce argillose**

Sebbene i sedimenti non consolidati non possano essere considerati come un analogo completamente assimilabile alle rocce argillose ospiti del deposito o dei materiali argillosi di riempimento, l'analogia è generalmente valida per ambienti argillosi nei quali il trasporto è dominato dalla diffusione. Il contenuto di argilla e la mineralogia associata ai sedimenti è anche molto simile ad importanti rocce argillose ed i sedimenti hanno mantenuto condizioni riducenti simili a quelle del deposito per lunghi periodi di tempo sebbene le condizioni di pH possano essere dissimili.

Un esempio interessante è lo studio condotto sulle turbiditi marine dello Madeira Abissal Plain (vd. Fig. 7.3), che ha investigato il fenomeno della formazione di strati ricchi di uranio al fronte redox di migrazione. Il meccanismo dell'arricchimento di uranio si verifica quando un sedimento con un alto contenuto di uranio viene messo in posto da una turbidite in un ambiente marino profondo.

L'acqua marina ricca di ossigeno penetra il deposito turbiditico, e ossida e scioglie l'uranio, che è libero di diffondersi attraverso il sedimento. L'uranio migrante verso il basso raggiunge condizioni più riducenti elevando la concentrazione di uranio a quel livello.

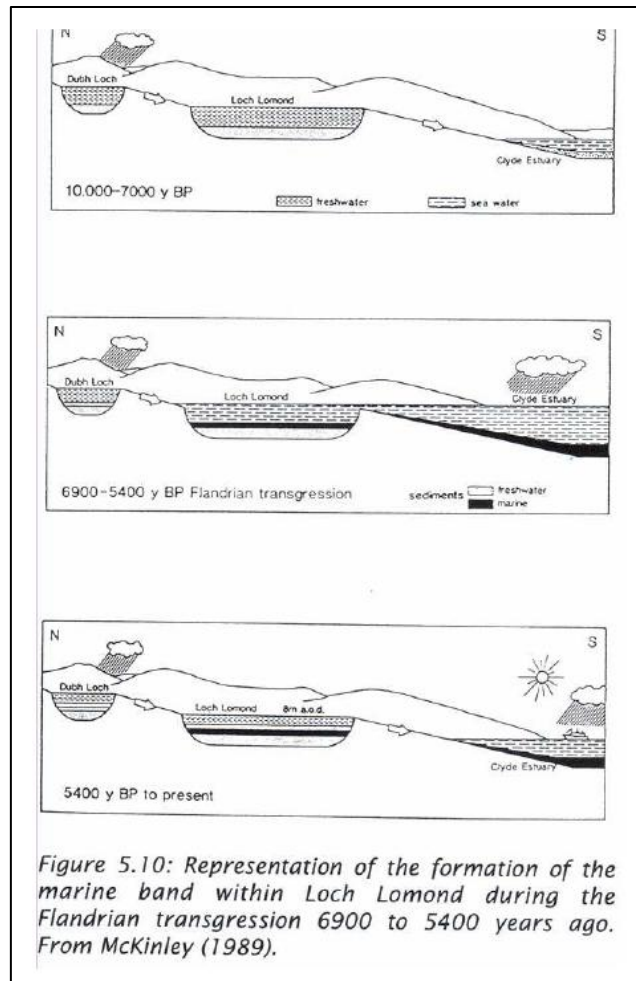


**Fig. 7.3 Fronti redox fossili marcati da picchi di concentrazione isotopica.**

Viene così a costituirsi un forte fronte redox e quando acque più ossigenate penetrano nella turbidite il fronte redox migra ulteriormente verso il basso trascinando con sé uranio

progressivamente più arricchito. Il fronte redox rimane attivo fino a che una torbidite successiva si colloca sopra la prima, ostacolando l'arrivo delle acque ossigenate. L'esame degli strati arricchiti in uranio ai fronti redox inattivi e le misure delle coppie genitore/figlio a più lunga vita della serie di decadimento  $^{238}\text{U}$  ( $^{238}\text{U}$ - $^{234}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ - $^{230}\text{Th}$ ;  $^{230}\text{Th}$ - $^{226}\text{Ra}$ ;  $^{226}\text{Ra}$ - $^{210}\text{Po}$ ) hanno dimostrato che il solo elemento che manifesti migrazione a partire dal momento in cui il fronte è divenuto inattivo è il  $^{226}\text{Ra}$ , la cui concentrazione, simmetrica attorno al picco del genitore  $^{230}\text{Th}$ , comporta che il trasporto sia avvenuto solo per diffusione e non per advezione (fig. 7.3). Il profilo di concentrazione del  $^{226}\text{Ra}$  è stato usato per calcolare i coefficienti effettivi di diffusione, risultati compresi tra  $6 \cdot 10^{-13}$  e  $1 \cdot 10^{-13}$  m<sup>2</sup>/s.

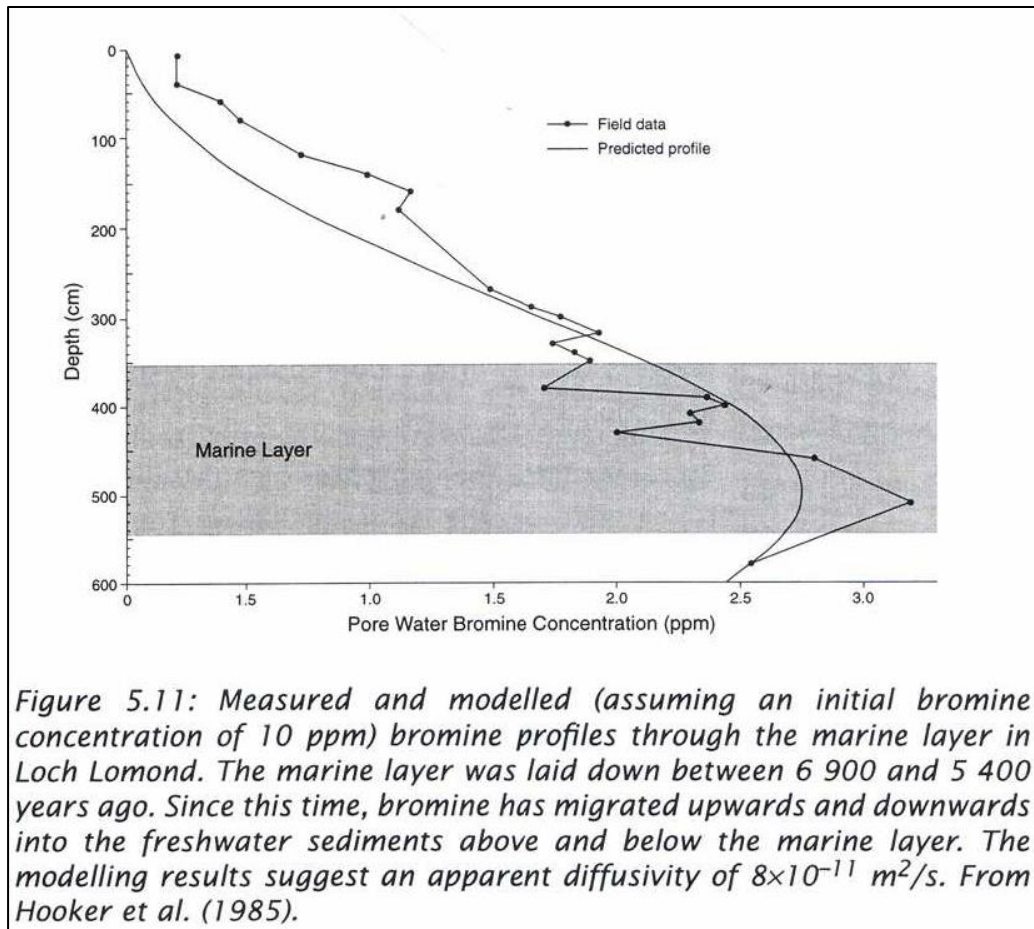
Lo studio più noto di analogo naturale del trasporto dei radionuclidi all'interno dei sedimenti è forse quello condotto a Loch Lomond (fig.7.4). Sebbene lo studio sia stato condotto su poche carote di sedimento del lago, sono state ottenute molte informazioni quantitative. Attualmente il lago è isolato dal mare ed è costituito da acqua dolce, ma una ingressione marina fiandriana ha avuto luogo a partire dal Firth of Clyde, che è una profonda insenatura situata nella costa occidentale della Scozia e separata dall'Oceano Atlantico dalla penisola di Kintyre. Questo evento è registrato nel sedimento con un livello spesso un metro di detriti marini coperti e coprenti sedimenti di acqua dolce, dando luogo di conseguenza ad una discontinuità geochimica. Tutti i sedimenti sono ricchi di argilla, contenendone fino allo 80% in alcuni orizzonti. La chimica delle acque interstiziali identifica i sedimenti marini per più alte concentrazioni di cloruri, bromuri ed ioduri. La migrazione di questi alogeni nei sedimenti di acqua dolce sopra e sottostanti registra la storia di un trasporto diffusivo.



**Fig. 7.4 Ingressione marina nel Lago Loch Lomond nella trasgressione Flandriana (-6900/-5400 da oggi).**

Una serie di profili di concentrazione per vari elementi ha riconosciuto che la sedimentazione del livello marino è avvenuta tra 6900 e 5400 anni fa. Il riconoscimento è avvenuto attraverso analisi di  $^{14}\text{C}$  e studi paleomagnetici e palinologici. La fissazione, correlata con la presenza di carbonio organico, di iodio, bromo, uranio e  $^{226}\text{Ra}$ , è stata chiaramente identificata all'interno del livello marino e dove è stato riconosciuto un fronte redox mobile. Le concentrazioni nelle acque interstiziali di bromo e, a minor grado, di iodio decrescono con la distanza dai sedimenti marini (vd. fig. 7.5).





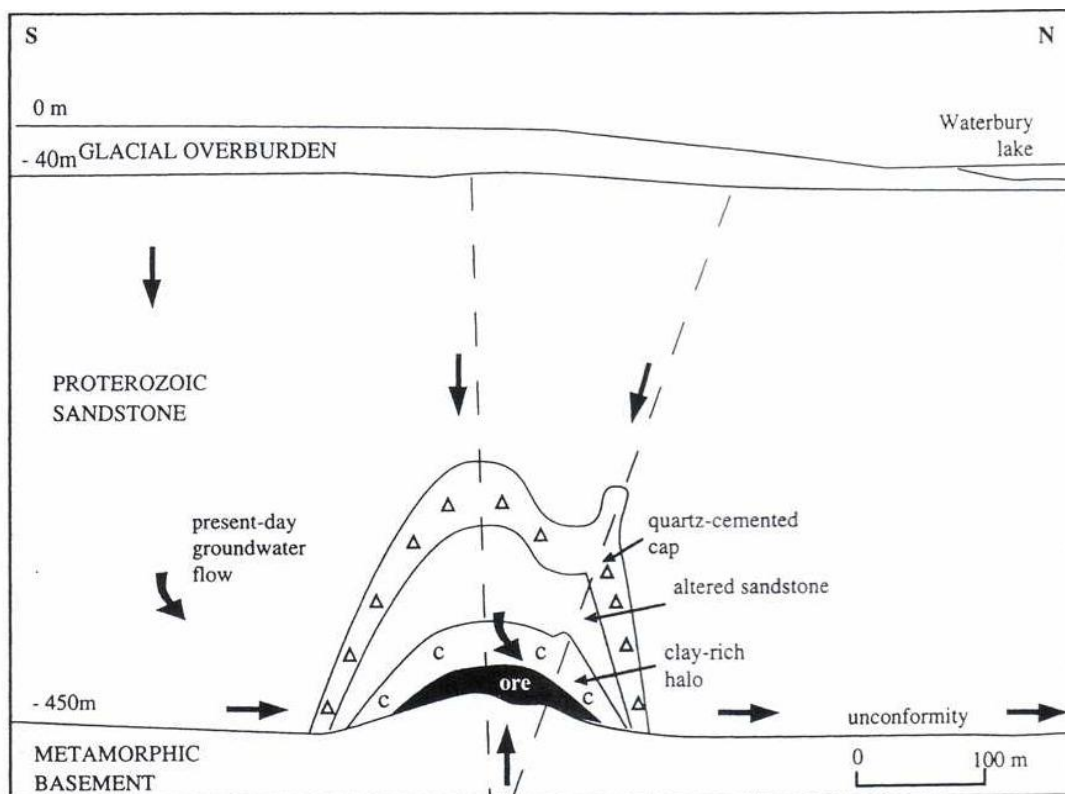
**Fig. 7.5 Diffusione del bromo dal sedimento marino verso quelli di acqua dolce sopra e sottostanti [6]**

Il profilo di concentrazione del bromo è stato modellato secondo diffusione semplice con assorbimento reversibile ed escludendo trasporto advettivo. Assumendo una concentrazione iniziale di 60ppm, il modello ha prodotto un'apparente diffusività di  $8 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2/\text{s}$ . Esperimenti di assorbimento in batch, condotte su materiale di carote per iodio e bromo, hanno dimostrato che le diffusività apparenti calcolate erano inferiori di un ordine di grandezza di quelle misurate e possibilmente dovute a perturbazione dei campioni in laboratorio. Ciò suggerisce che, sebbene gli studi di laboratorio siano conservativi, le diffusività calcolate sono probabilmente più realistiche. In più gli esperimenti di laboratorio indicano che alcuni processi di assorbimento erano apparentemente irreversibili per molti radionuclidi. Ne segue che l'assunzione, fatta in molti modelli di migrazione, che l'assorbimento è istantaneo e reversibile, è inaccurata e che la cinetica sottesa al processo deve essere investigata ulteriormente.

I risultati di questi due studi sono più utili se applicati ad ambienti di deposito argillosi dominati da diffusione. Chiaramente ciò includerebbe il trasporto nel materiale di riempimento bentonitico, ma l'informazione sarebbe appropriata alla diffusione in matrice in una roccia ospite argillosa fratturata nella quale si verifica il flusso advettivo.

A Cigar Lake (figg. 7.6, 7.7) l'alone di argilla attorno al minerale rappresenta i prodotti di alterazione formati dalla dissoluzione idrotermale e dal cedimento delle arenarie ospiti. Queste argille residuali, caratterizzate soprattutto da argille e da minerali accessori, formano un'efficiente

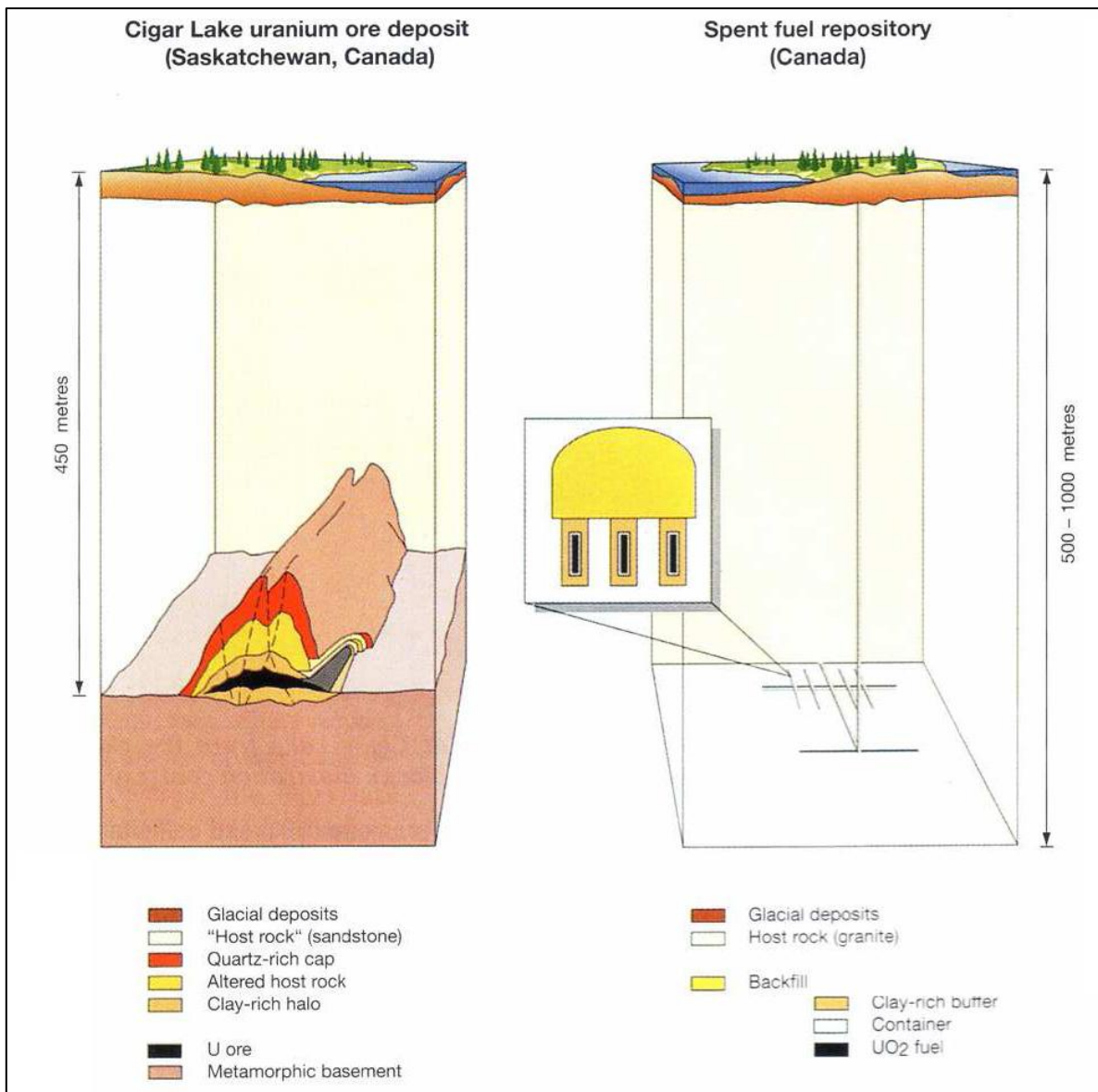
barriera idrologica per i movimenti delle acque sotterranee all'interno ed all'intorno del giacimento. Il movimento dei radionuclidi nell'alone di argilla, quando osservati, sono principalmente diffusivi e locali ed estesi solo fino a poche decine di centimetri.



**Fig. 7.6 - L'alone argilloso isolante i radionuclidi della mineralizzazione di Cigar Lake**

### 7.3.3 Trasporto e ritardo nei depositi di ceneri vulcaniche

Uno studio interessante sulla migrazione elementare in ceneri vulcaniche insature è stato intrapreso a Santorini (Biliog). Una grande eruzione (1628 A.C.) ricoprì l'isola con un potente deposito di ceneri silicee, che inondarono l'insediamento locale di Mino anche fu abbandonato. Manufatti di bronzo scavati ad Akrotiri sono stati considerati analoghi ai canister considerati per il deposito di Yucca Mountain. I manufatti apparivano abbastanza pesantemente corrosi ed un alone di contaminazione risultò essersi sviluppato intorno ad essi, tanto che il sistema archeologico appariva adatto per la verifica delle prestazioni da applicare al deposito di Yucca Mountain. In realtà il confronto tra la distribuzione misurata del metallo e il modello di predizione rivelò una certa corrispondenza, tuttavia le differenze tra le ceneri di Cantorini ed i tufi di Yucca M. in termini di porosità e permeabilità suggeriscono prudenza nell'interpretazione dell'analogo.



**Fig. 7.7** Similarità del giacimento di Cigar Lake ed un deposito di combustibile esaurito.

### 7.3.4 Trasporto e ritardo nelle evaporiti

Considerate secche, resta il dibattito se certe evaporiti posseggano un film di fluido intergranulare mobile che permetta la migrazione dei radionuclidi in soluzione. In mancanza di questo l'unico meccanismo disponibile in questo senso sarebbe la diffusione in stato solido, che è talmente lenta da non porre rischi per un deposito. L'analogo esaminato da [7] dimostra che la migrazione di uranio e torio in un ammasso salino intruso da rocce cristalline, come in altri casi di intrusioni ignee, è minima a distanza di decine-centinaia di milioni di anni.

### 7.3.5 Trasporto e ritardo all'interfaccia geosfera-biosfera

L'importanza di tale interfaccia rappresenta una condizione critica per il controllo dei rilasci dei radionuclidi all'ambiente superficiale. Per convenzione l'interfaccia è definita come la zona includente l'orizzonte superiore alterato delle rocce e delle coperture pedologiche fino al punto in

cui i radionuclidi sono prelevati dagli apparati radicali delle piante o sono assunti nelle acque superficiali. All'interno di questa zona esistono concentrazioni naturali di radionuclidi che possono essere considerati come analoghi chimici ed usati come traccianti di possibile movimento di radionuclidi da un deposito.

### **7.3.6 Misura della distribuzione dei coefficienti in situ**

La capacità di assorbimento è normalmente espressa in termini di  $K_D$  che esprime il rapporto tra la distribuzione di un elemento tra fase solida (assorbita) e liquida (acqua sotterranea). Studi recenti hanno riguardato ricerche sul  $K_D$  in situ [8], e i metodi comunemente adottati sono tre.

#### I° - Concentrazione di radionuclidi nella coppia roccia/acqua (pag. 184)

Il metodo applica gli studi di laboratorio stile batch alle situazioni di campo: le concentrazioni di radionuclidi sono misurate in una roccia, avendo cura di misurare solo la concentrazione assorbita e quella di un'acqua sotterranea di ubicazione appropriata. I dati così ottenuti possono essere significativi se la coppia acqua-roccia è presa da una sola località e le misure della fase solida sono prese da materiali disponibili per lo scambio con l'acqua; le fasi precipitate sono identificate e sottratte e l'intero sistema è in equilibrio, tutte condizioni difficilmente conseguibili. Resta in particolare difficile riconoscere se la fase solida misurata sia il risultato di assorbimento su superfici disponibili per scambio e precipitazione. In alcuni casi le concentrazioni misurate non distinguono neppure tra depositi di radionuclidi alla superficie e quelli presenti, o coevi, nella massa mineralogica della roccia. Nelle misure in situ rimangono irrisolte due questioni. La prima è la forte evidenza del riassorbimento durante la lisciviazione e la ridistribuzione dei vari elementi durante i processi di estrazione. L'effetto è la distorsione della distribuzione apparente dei radionuclidi. Secondariamente non viene messa in conto la possibilità dell'esistenza di radionuclidi allo stato colloidale.

#### II° - Profili di concentrazione dei radionuclidi

Metodo basato sul principio che la distribuzione di un'anomalia geochimica ben definita e databile può essere interpretata in termini di ritardo se la velocità di trasporto dell'acqua è conosciuta. Il caso più semplice corrisponde alla mancanza di trasporto advettivo e la migrazione dei radionuclidi si verifica soltanto per diffusione. Ad esempio, la ridistribuzione dei vari elementi dal livello marino del Lochlomond è stata analizzata per derivare i fattori di ritardo più adatti. Nel caso più semplice tali studi derivano un fattore di ritardo dal rapporto del tempo di transito del picco di un tracciante assorbente e di uno non assorbente. Questo è tuttavia vero sotto assunzione, indipendente dalla concentrazione, di un rapido assorbimento reversibile (tipo  $K_d$ ). Se il meccanismo attivo di assorbimento è più complesso, l'intero concetto di derivazione di un  $K_d$  in tale sistema è inappropriato.

#### III° - Rapporti isotopici

Metodo di determinazione di  $K_d$  in situ calcolato dai rapporti isotopici dei radionuclidi nelle acque sotterranee e nelle rocce. Metodo non adatto a riprodurre le condizioni di un deposito. Principalmente questo metodo si basa, per il trasferimento dei radionuclidi, sulla dissoluzione e sul rincipulo, ma la rimozione avviene solo per decadimento e adsorbimento. Tali assunzioni non sono generalmente applicabili ad un sistema di acque sotterranee perché in situazioni di flusso lento o in stato di disequilibrio possono verificarsi aggiunte per dissoluzione dei minerali e la rimozione per precipitazione o co-precipitazione. In sintesi appare che i valori del  $K_d$  in situ non possano essere riguardati come trasferibili dai sistemi naturali a quelli dei depositi o direttamente applicabili come parametri conservativi per input ai modelli di verifica delle prestazioni.

### **7.3.7 Sintesi sui meccanismi di trasporto dei radionuclidi**

L'assunzione di radionuclidi e di altri elementi in tracce sulle superfici di fratture nelle rocce cristalline è un fenomeno frequentemente osservato in campo. Le fasi principali assorbenti elementi dalle soluzioni sono gli ossidrossidi di ferro, i rivestimenti organici ed i minerali argillosi. E' spesso difficile distinguere quantitativamente tra processi di assorbimento e precipitazione. Molti studi di laboratorio sono diretti alla determinazione dei coefficienti di distribuzione (KDS) allo scopo di modellare il trasporto nei sistemi analoghi. Studi dei disequilibri naturali delle serie di decadimento possono fornire utili indicazioni sui tempi della mobilitazione e sulla deposizione dell'uranio in alcuni sistemi. Il trasferimento diretto dei dati  $K_d$  derivato dagli studi degli analoghi non ha ancora valenza pratica. Tuttavia essi possono essere usati in maniera semi-quantitativa per ottenere "verifiche nel reale" per la grandezza dei valori usati nello studio delle prestazioni e fornire un'informazione qualitativa sugli effetti generali dei processi di trasporto e ritardo e di assistere nell'identificazione dei processi più attivi nei vari ambienti.

Il ritardo elementare nel trasporto diffusivo è stato chiaramente identificato negli studi sui sedimenti non consolidati e sono stati ottenuti alcuni dati quantitativi sulla diffusività. Tali studi sono ragionevolmente analoghi del comportamento dei radionuclidi in rocce argillose e riempimenti con argille. L'argomento dell'assorbimento irreversibile dei radionuclidi su lunghi periodi di tempo, processo enormemente benefico in termini di verifica di prestazioni e che correntemente non riscuote alcun credito, può essere probabilmente risolto solo da studi sugli analoghi. Pochi studi di analoghi naturali hanno indirizzato l'argomento del trasporto dei radionuclidi nelle anidriti ed in altre formazioni evaporitiche. L'informazione disponibile indica che il trasporto è probabilmente diffusivo ed esser così molto lento. E' possibile che gli analoghi naturali possano aiutare nel dare informazioni sul comportamento dei radionuclidi nelle salamoie mobili, particolarmente nelle zone di mescolamento con acque di altre formazioni, ma ciò non è stato perseguito. Il comportamento dei radionuclidi all'interfaccia geosfera-biosfera può essere studiato con analisi di analoghi naturali sulla migrazione dei radionuclidi rilasciati da esplosioni in sottoterraneo e da accidenti tipo Chernobil. Dati quantitativi sono stati ottenuti da questo tipo di indagini, ma altro lavoro è necessario per definire come tali dati possano essere applicati nel modellare tale zona complessa. Determinazioni in situ di  $K_d$  sono potenzialmente estremamente valide nel quantificare la capacità di assorbimento di diverse associazioni minerali. Tuttavia, il

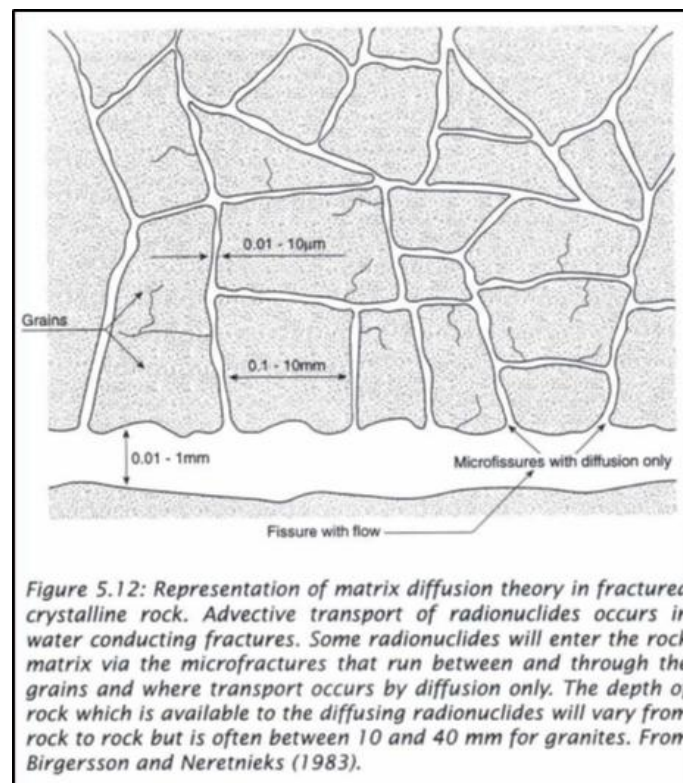
processo per l'ottenimento di tali misure è ostacolato da difficoltà tecniche e da ambiguità interpretative. A parte questi problemi, ogni sforzo dovrebbe essere fatto per tentare di migliorare le tecniche prima che tali indagini entrino a far parte dei futuri studi di analoghi. Molti dei dati sinora acquisiti devono essere trattati solo sotto il profilo qualitativo per i vari problemi intrinseci alle varie tecniche. Se i problemi possono essere rettificati, le tecniche possono ancora avere valore per le verifiche.

#### 7.4 Processi di diffusione dei radionuclidi nei mezzi geologici

Il termine diffusione matriciale è applicato ai processi attraverso i quali i soluti, trasportati nelle acque sotterranee fluenti nelle fratture, penetrano nelle masse rocciose circostanti per fenomeni di diffusione. La diffusione nella roccia si verifica nei sistemi di pori e di microfrazture connessi, mentre la diffusione nella fase solida è, al confronto, ritenuta insignificante. L'importanza della diffusione nella matrice nel contesto del trasporto dei contaminanti risiede nell'aumento dell'area della superficie della roccia in contatto con i soluti e nel ritardo dei rilasci dei contaminanti [2].

##### 7.4.1 Diffusione matriciale

La teoria della diffusione matriciale propone che i radionuclidi disciolti si diffondano da una frattura riempita d'acqua attraverso uno strato poroso ricoprente la frattura e nell'interno della matrice rocciosa. Se i radionuclidi sono reattivi, vengono assorbiti sulle superfici interne di questi pori o altrimenti rimangono disciolti all'interno dell'acqua immobile dei pori (fig. 7.8).



**Figura 7.8 Teoria della diffusione matriciale in una roccia cristallina**

Questo processo può essere considerato come un caso estremo di un mezzo a duplice porosità nel quale il flusso advettivo si verifica interamente nel sistema delle fratture, costituente la porosità

primaria, ed il trasporto di quanto in soluzione nella massa rocciosa, sede della porosità secondaria, si realizza per diffusione.

Nelle rocce dure, la porosità secondaria della matrice può essere molto piccola (0.1-1 %) e, se le acque sotterranee fluiscono rapidamente, l'impatto della diffusione matriciale sul trasporto dei contaminanti viene limitato perché la velocità di advezione nella frattura è molto maggiore di quella della diffusione nella massa rocciosa. Tuttavia, per il più lento percorso dei flussi presumibile in una roccia ospite, la diffusione matriciale può risolversi in un significativo ritardo nel rilascio e nella riduzione della concentrazione massima dei radionuclidi nelle acque sotterranee diffondentesi nella biosfera. Questo processo è particolarmente significativo se il tempo di trasporto risultante alla biosfera è maggiore della emivita del radionuclide, in quanto il rilascio totale può essere ridotto di parecchi ordini di grandezza. In più i rilasci intermittenti possono essere distribuiti su periodi di tempo più lunghi con rilasci di concentrazione decrescente per processi di diluizione temporale. Per i radionuclidi non assorbiti questo processo rappresenta un importante meccanismo di ritardo, perché queste specie sarebbero altrimenti trasportate alla velocità di advezione delle acque sotterranee.

La base teorica della diffusione matriciale è ben definita. Esistono tuttavia diverse vedute circa il volume di roccia che dovrebbe essere disponibile per la diffusione matriciale, in altri termini l'estensione della microporosità connessa. Considerevoli lavori in laboratorio ed in campo sono stati concentrati nella determinazione della profondità interconnessa adiacente alle fratture. Un problema significativo degli esperimenti in laboratorio è che sono sottoposti ad esame campioni di carote probabilmente disturbati da perforazioni e da sub campionamenti. L'alterazione della roccia può verificarsi solo a scala microscopica, ma poiché è proprio questa la scala di interesse per la diffusione matriciale è evidente la necessità che i dati di laboratorio debbano essere trattati con cautela. In generale tutti i cambiamenti indotti dal campionamento tendono a causare una sovrastima della diffusione matriciale. Questa è a sua volta non conservativa nel senso della verifica delle prestazioni perché conduce ad un grado apparentemente maggiore dell'immobilizzazione dei radionuclidi nel campo remoto. In un caso ideale, la diffusione matriciale dovrebbe risultare in un profilo di concentrazione attenuata separato dalla frattura ma l'eterogeneità nella roccia e gli effetti di vari eventi geologici sul sistema complicano il quadro.

Normalmente, le serie del decadimento naturale, gli elementi delle terre rare ed altri elementi sensibili al redox sono studiati nell'intento di coprire una serie di comportamenti geochimici, con l'aumento di possibilità di ottenere evidenze dell'interazione acqua-roccia.

Nel caso della serie di decadimento naturale, ad esempio, l'uranio è più solubile del torio e dello  $^{234}\text{U}$  è più mobile dello  $^{238}\text{U}$ . L'uranio è anche redox sensibile, mentre il radio è più verosimilmente interessato nelle reazioni di scambio o in solido-soluzione con una varietà di fasi carbonatiche. Questa serie di comportamenti geochimici è in più aumentata da una larga serie di emivite dei vari membri della serie (Es: l'emivita dello  $^{234}\text{U}$  è  $2.5 \cdot 10^5$  anni e del  $^{226}\text{Ra}$  è  $1.6 \cdot 10^3$  anni).

La combinazione dei due fattori permette di identificare una varietà di tipi d'interazione acqua-roccia con anche qualche idea della durata di un certo evento.

Gli argomenti di maggiore rilevanza per la diffusione matriciale indirizzati agli studi di analoghi naturali sono:

- profondità e volume della porosità interconnessa;
- capacità di tampone chimico della massa rocciosa;
- estensione della diffusione matriciale nelle formazioni sedimentarie;
- stima dei coefficienti di diffusione.

#### **7.4.1.1 Profondità e volume della porosità interconnessa**

Una ricerca per la misura della profondità della porosità interconnessa ha preso in esame una roccia in contatto con acque saline, avendo per riferimento queste ultime come traccianti nel movimento attraverso la roccia per diffusione matriciale. Su blocchi di granito, immersi in acqua per 30 anni come parte di un molo, sono stati determinati profili di diffusione di soluti di  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{F}^-$  e  $\text{SO}_4^{2-}$ , i coefficienti di diffusione apparente e le porosità accessibili ai soluti calcolate per  $\text{Cl}^-$  e  $\text{Br}^-$ . La scelta di tali anioni era motivata per la loro debole capacità o addirittura assenza di assorbimento e pertanto certamente i più mobili. Indagini di laboratorio su tali campioni hanno dimostrato che i coefficienti di diffusione sono incrementati fino a 200 volte in prossimità della superficie delle fratture in conseguenza delle alterazioni meccaniche, anche se in questo caso non si tratta tuttavia di un buon esempio in quanto la roccia era stata drenata prima della collocazione in acqua e pertanto i risultati possono essere spiegati più con la suzione capillare piuttosto che dalla diffusione matriciale.

In uno studio sulla migrazione dell'uranio nel granito [9] il meccanismo identificato risultò la suzione capillare piuttosto che la diffusione matriciale. In un altro studio [10], è stata misurata la diffusione di acque saline passanti dal granito ad una frattura conducente acqua. Il calcolo del coefficiente di diffusione apparente è risultato di  $2 \cdot 10^{-9} \text{ m}^2/\text{s}$ , un ordine di grandezza più elevato di quello misurato in laboratorio con esperimenti di diffusione. La discrepanza non è spiegata, ma può essere dovuta alla presenza di microfessure o all'uso di un modello inappropriato per il calcolo del coefficiente di diffusione apparente.

La distribuzione di elementi di una vena mineralizzata lisciviata ha permesso di misurare la profondità di percolazione delle acque nella roccia adiacente (Coehlo Pinto, 1987). Fra gli elementi studiati figurano uranio, torio, lantanio, neodimio, bromo, stronzio e bario. La profondità raggiunta fra i 32 ed i 65 mm fu interpretata come misura di diffusione matriciale. La maggiore redistribuzione elementare corrispondeva alla fascia più prossima alla vena e la profondità variava per ogni elemento; il bario fino a 32 mm, uranio e zirconio fino a 65 mm. Tutti gli elementi maggiori, misurati come ossidi, eccetto  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ , erano disturbati fino alla profondità di 50 mm.

Tali dati devono essere trattati con cautela perché le importanti condizioni al contorno del sistema sono sconosciute. Non esistono in particolare informazioni sulle temperature massime dei fluidi o



sulla durata del flusso dei fluidi nella frattura, e quindi i risultati di questo studio devono pertanto essere considerati come non conservativi.

Combinando tutti i dati tratti dalle esperienze condotte nell'URL di ElBerrocal Heath (1995) concluse che non aveva avuto luogo la sola diffusione matriciale ma una combinazione complessa di diffusione matriciale e di interazione chimica tra roccia e fasi mobili.

Valkiainen ha riscontrato [10] che valori di diffusione matriciale, inclusi valori per porosità in funzione della distanza da una frattura attiva in carote di varie rocce cristalline, evidenziano che la roccia nelle prime decine di mm presenta 2-3 volte i valori di porosità rispetto al resto della massa rocciosa.

Appare in generale che le rocce cristalline più alterate presentano il più grande potenziale per la diffusione matriciale rispetto alle rocce fresche e che i maggiori valori sono confinati solo ad un piccolo volume di roccia ad immediato contatto con la frattura e che non si estendono attraverso l'intero volume. Da notare inoltre che anche un piccolo volume può comportare una differenza significativa per il ritardo dei contaminanti.

#### **7.4.1.2 Capacità tampone chimico della massa rocciosa**

La solubilità di molti radionuclidi chiave è sostanzialmente più bassa in condizioni riducenti che in condizioni ossidanti. E' pertanto importante che l'ambiente geochimico del campo prossimo di un deposito debba essere capace di tamponare il potenziale redox per mantenere le condizioni riducenti nel caso di produzione radiolitica ossidante. Per depositi senza grandi volumi di ferro nel sistema di barriere ingegneristiche, ad esempio deposito di combustibile esaurito usante canister di rame, è il ferro ferroso della roccia ospite che deve agire come il più grande tampone delle condizioni redox. Un po' di ferro ferroso è presente nei minerali di rivestimento delle fratture o dove le rocce adiacenti siano idrotermicamente alterate e siano direttamente accessibili alle acque di falda per advezione. Tuttavia nel caso di rocce cristalline fratturate una assai più grande quantità di ferro ferroso è presente in minerali come biotite ed anfiboli all'interno della matrice rocciosa. Al fine di realizzare la capacità tampone redox di questo ferro ferroso, questi minerali devono essere accessibili alle acque sotterranee per diffusione matriciale. Se ne conclude che maggiore è la profondità connessa con la microporosità, maggiore è la capacità tampone redox della roccia. Anche la forma della porosità costituisce peraltro un fattore importante nel senso che, in caso di presenza di pochi grandi pori, sarà disponibile una proporzione più piccola del ferro totale presente rispetto a quella che si avrebbe nel caso esistesse un denso reticolo di micropori e microfratture. Nonostante l'ovvio importante legame tra diffusione matriciale e tampone redox, questo aspetto della diffusione matriciale ha ricevuto finora scarsa attenzione. Le acque sotterranee ossidanti sono effettivamente tamponate nella roccia ospite in 30-40 mm dalla frattura conduttrice. La capacità tampone della roccia è importante non solo per ridurre la solubilità e la mobilità dei radionuclidi, ma anche perché il "fronte redox" così creato, se confinato nei micropori e la massa rocciosa controllata dalla diffusione rende la formazione dei colloidi meno problematica che se essi si formassero in fratture aperte sede di trasporto advettivo.

### 7.4.1.3 Estensione della diffusione matriciale nelle formazioni sedimentarie

Non sono stati identificati molti studi concernenti l'estensione del fenomeno della diffusione matriciale nei sedimenti, e questa lacuna dovrebbe essere superata nonostante la visione semplicistica che tutte le rocce sedimentarie costituiscono mezzi porosi omogenei, poiché nella realtà molti sono fratturati ed hanno una duplice porosità nella quale è presente la diffusione matriciale. Gli studi delle Opalinus Clay in Svizzera hanno fornito dati non ambigui circa la diffusione matriciale in rocce sedimentarie fratturate. La diffusione matriciale in tali rocce si verifica attraverso tali rocce fino ad 80 mm dalla superficie delle fratture. Rocce più profonde, alla profondità del deposito, possono non manifestare diffusione matriciale ricorrente in parte così grande del loro volume. Studi a Wellenburg indicano che alla rilevante profondità del deposito la diffusione matriciale è attiva fino a 60-70 mm in calcari, biomicriti e biomicriti argillose. Di particolare interesse, le superfici delle fratture acquifere, rivestite da calcite secondaria, manifestano evidenza di diffusione matriciale nella roccia.

### 7.4.1.4 Stima dei coefficienti di diffusione

L'approccio più comune per la stima dei coefficienti di diffusione matriciale è l'uso di dati naturali dai quali effettuare un retro calcolo a partire da un profilo elementare assunto prodotto da diffusione entro o fuori della massa rocciosa. Il vantaggio maggiore degli esempi tratti dai sistemi naturali è che questi evitano le perturbazioni associate agli esperimenti di laboratorio. Vale la pena confrontare una piccola selezione (vd. Tab. 7.1) di dati di diffusione disponibili con il più grande volume di quelli ottenuti in laboratorio.

**Tabella 7.1 – Coefficienti di diffusione stimati nelle rocce cristalline**

*Table 5.3: Estimated diffusion coefficients in crystalline rock as compiled from a number of studies on natural samples using a variety of experimental methods. \*For method of calculation, see Alexander et al. (1990b).*

$D_a$ (m <sup>2</sup> /s)	Method
10 <sup>-21</sup> - 10 <sup>-18</sup>	Fitting uranium data from chlorite grains around hydrothermal veins (Shea, 1984).
10 <sup>-19</sup> - 10 <sup>-16</sup>	Uranium concentration gradient in the bulk rock around hydrothermal veins (Shea, 1984).
1.1×10 <sup>-17</sup> - 1.6×10 <sup>-15</sup>	Uranium gradients in bulk rock around hydrothermal veins using coupled advection-diffusion calculations (Shea, 1998).
3.3×10 <sup>-16</sup>	Recalculation of Shea (1984) bulk rock uranium profiles using coupled advection-diffusion calculations (Shea, 1998).
2.0×10 <sup>-18</sup> - 2.5×10 <sup>-16</sup>	Rare-earth element gradients in bulk rock around hydrothermal veins using coupled advection-diffusion calculations (Shea, 1998).
0.3×10 <sup>-14</sup> - 1.8×10 <sup>-14</sup>	Radium concentration gradient in bulk rock around a fracture at Grimsel (Alexander et al., 1990b).
1.1×10 <sup>-10</sup> - 5.8×10 <sup>-10</sup>	Calculated* from uranium distribution in bulk rock around pegmatitic vein from Bottstein (Smellie et al., 1986).
1.0×10 <sup>-10</sup> - 5.1×10 <sup>-10</sup>	Calculated* from uranium distribution in bulk rock around a fracture at Grimsel (Alexander et al., 1990a).
2×10 <sup>-9</sup>	Back diffusion of chlorine from a core sample into distilled water (Lehikoinen et al., 1992).

La diffusività apparente ( $D_a$ ) varia moltissimo ( $10^{-21}/10^{-9}$  m<sup>2</sup>/s). Il primo valore può essere rigettato in quanto nella serie dei coefficienti di diffusione dello stato solido, come pure l'ultimo, più grande del valore relativo alla diffusività molecolare in acqua pura.

#### **7.4.2 Conclusioni sul meccanismo della diffusione matriciale**

La diffusione matriciale nelle rocce cristalline è stata estesamente indagata ed altri lavori generici non sembrano necessari. Al contrario sono necessari, e ne sono in corso, studi specifici di sito. La diffusione matriciale nelle rocce cristalline fresche sembra effettiva fino alla profondità di 10-20 mm. Maggiori profondità si manifestano per le rocce alterate. Un valore di 10-20 cm fornisce già un grado significativo di ritardo. Caratteristiche geochimiche e fisiche rivelano che un'accentuata mobilità di elementi in tracce in prossimità di una frattura spesso corrisponde a zone di alterazione fisica o idrotermale. Meno ricerche sono state condotte sulle rocce sedimentarie. La profondità della diffusione è maggiore, fino a 70-80 mm. Servono studi di conferma. L'estensione della diffusione evidenzia anche la capacità della roccia ospite a tamponare le condizioni redox restringendo l'accesso delle acque sotterranee ai minerali ferrosi ricchi di ferro.

#### **7.5 Effetti della radiolisi nei mezzi geologici**

Nel campo prossimo dei depositi del combustibile esaurito, degli HLW e di alcune forme di alta attività ILW può esistere un campo significativo di radiazioni. La radiazione può causare la radiolisi di un certo numero di materiali nel campo prossimo, ad esempio cellulosa e bitume, ma è la radiolisi dell'acqua sotterranea che è la più significativa. La radiolisi dell'acqua consiste essenzialmente nella separazione della molecola d'acqua nelle componenti radicali cariche, per azione della radiazione. Durante la radiolisi dell'acqua vengono prodotte quantità uguali di ossidanti e riducenti.

##### **7.5.1 La radiolisi**

Questi prodotti primari possono reagire fra loro e con altre specie disciolte nel campo prossimo, la natura delle quali è fortemente dipendente dalla chimica del sistema delle barriere ingegneristiche. Molte analisi teoriche assumono che una produzione netta di ossidanti si verifica nel campo prossimo in quanto il riducente molecolare principale, H<sub>2</sub>, è relativamente chimicamente inerte e migrerebbe rapidamente all'esterno del sistema a causa della sua elevata diffusività. Gli ossidanti, in contrasto, dovrebbero essere più reattivi ed avere una diffusività minore. Potrebbe di conseguenza crearsi un fronte redox (ossidante) in lento movimento che migra verso l'esterno dal rifiuto alle barriere ingegneristiche ed alla roccia ospite. L'entità della migrazione del fronte sarebbe controllata dal bilancio tra produzione e consumo (tamponamento) di ossidante da parte di materiali ricchi di ferro nelle barriere ingegneristiche e nella roccia. Un considerevole volume di lavoro teorico e di laboratorio tende a replicare e capire i processi attivi nella produzione di ossidanti radiolitici. La maggior parte è stata focalizzata sul combustibile

esaurito quale maggiore produttore potenziale di radiolisi. Gli stessi principi si applicano comunque ad altri tipi di rifiuti ad alta attività. Gran parte del lavoro ha preso in considerazione l'effetto degli ossidanti radiolitici per la corrosione dei canister, per la dissoluzione delle waste form e per la susseguente solubilità e speciazione dei radionuclidi.

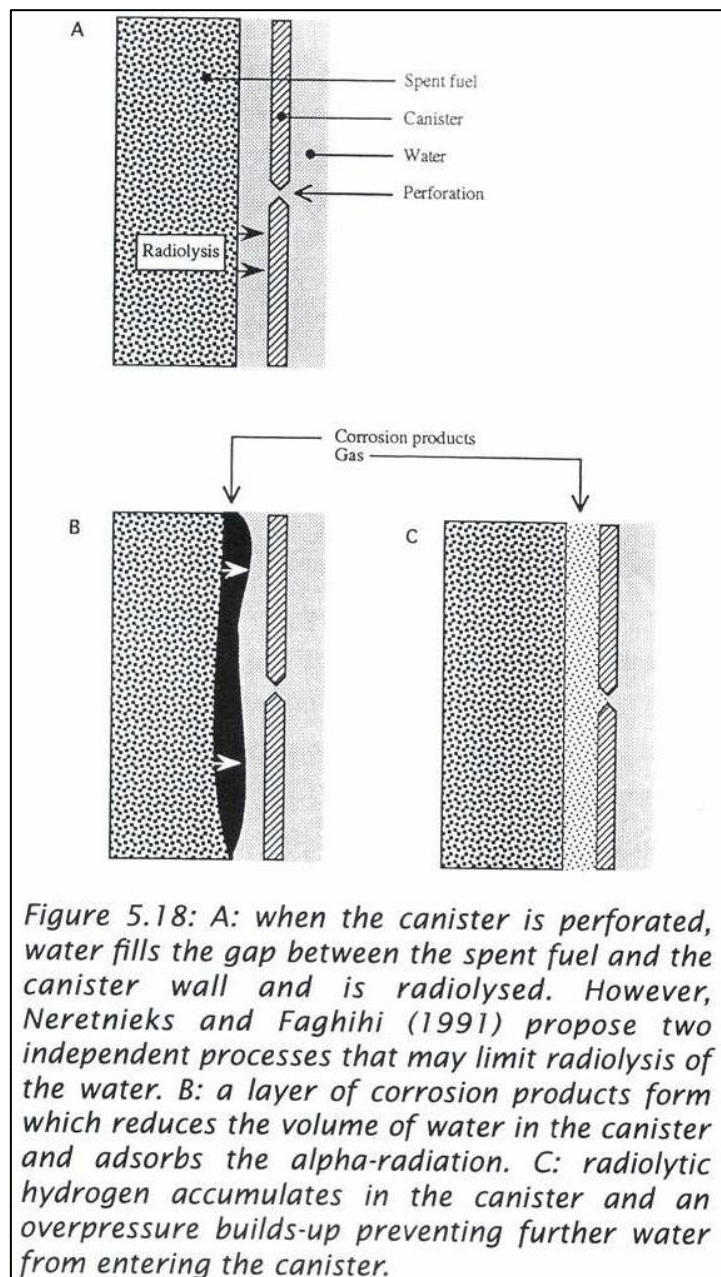
### **7.5.2 I processi principali nella radiolisi delle acque sotterranee**

Nell'ambiente del deposito, le acque interstiziali della bentonite vanno soggette a dosi di radiazioni varianti nel tempo e con la distanza dal wasteform. All'inizio, una volta che il materiale tampone circondante i canister intatti dei rifiuti sia stato saturato, l'acqua interstiziale viene esposta ad un lento trasferimento lineare di energia (LET) ad alta intensità gamma ed a flussi di neutroni. I maggiori effetti radiolitici si verificano alla parete del canister. Il calcolo dell'aumento degli ossidanti è problematico. In un deposito HLW con molti canister di acciaio, gli ossidanti ne intensificano la corrosione ma, nel processo, vengono anche consumati mantenendosi così le condizioni riducenti almeno fino a che l'acciaio non sia stato ossidato. In confronto, la corrosione del canister, se fatto di metallo non ferroso, viene interessata meno dalla produzione di ossidanti. In questo caso il canister può mantenere la propria integrità ma il campo prossimo diviene progressivamente più ossidante. In entrambi i casi, tuttavia, la radiolisi netta dell'acqua interstiziale della bentonite è trascurabile a questo stadio per la schermatura operata dal canister fino a che questo rimane intatto. Quando infine i canister saranno perforati, il rifiuto è esposto al contatto diretto con l'acqua interstiziale della bentonite. A questo stadio, oltre che ai flussi gamma e neutronici, l'acqua interstiziale è esposta ad un alto LET, a radiazione alfa e beta dai quali era in precedenza schermata dal canister. L'effetto della radiazione alfa è molto più importante di quello delle radiazioni beta, gamma o neutroniche. Le dosi di radiazioni alfa e beta alle acque interstiziali dipende da molti fattori che comprendono l'area superficiale esposta dalla wasteform e dalla durata del contenimento del canister. Una volta che il canister sia perforato, ogni acciaio presente consuma ancora ossidanti, contribuendo a mantenere riducente il campo prossimo. Un campo prossimo progressivamente ossidante può causare una più rapida dissoluzione del wasteform o incrementare la solubilità di alcuni importanti radionuclidi provenienti dal rifiuto. Per canister di metalli non feriferi il campo prossimo può essere già ossidante quando i canister stessi siano perforati causando un'accelerazione maggiore di quanto potrebbe esserlo altrimenti. Quando gli ossidanti entrano in contatto con la wasteform, i riducenti più forti del sistema saranno ossidati per primi. Tale fatto lascia gli attinidi meno reattivi nello stato di ossidazione inizialmente posseduto nella wasteform. Dopo un certo tempo si forma uno strato protettivo di ossidi metallici sui riducenti più forti riducendone la capacità tampone redox, con possibile incremento della velocità di ossidazione degli attinidi. Con l'aumento progressivo della capacità ossidante del campo prossimo, aumenta la solubilità di molti radionuclidi chiave. Se la capacità tampone redox del canister viene superata, il fronte redox migra verso la roccia ospite. Tale fatto è improbabile in un deposito con canister di acciaio ma potrebbe verificarsi in configurazioni di deposito con minor quantità di acciaio, ad esempio con canister di rame (La descrizione di questo processo [2], presume che gli altri materiali e le rocce ospiti non abbiano capacità tampone redox. Ciò non è

strettamente vero, ad esempio la bentonite contiene tipicamente parecchie percentuali di ferro, ma l'estensione della capacità tampone redox posseduta da altri materiali viene progettata ed è specifica del sito).

Gli effetti della migrazione del fronte redox e le conseguenze derivanti per il trasporto dei radionuclidi sono qui discussi in dettaglio in immediata successione.

In un esercizio di modellazione per un deposito di combustibile esaurito [11] sono proposti due meccanismi associati ad un canister perforato e che dovrebbero limitare la produzione di ossidanti di parecchi ordini di grandezza.



**Figura 7.9 – Processi di radiolisi dell'acqua nell'interspazio tra il combustibile esaurito ed il canister quando quest'ultimo sia perforato**

Una volta perforato il canister l'acqua (eventualmente presente o disponibile) fluisce attraverso il foro e riempie lo spazio tra il canister ed il rifiuto. Nelle prime descrizioni teoriche della radiolisi nel campo prossimo, si presumeva che, una volta perforato, il canister non avrebbe dovuto svolgere nessuna funzione ulteriore. Questo assunto è eccessivamente conservativo. Infatti la corrosione anche di solo quantità minori di ferro in un canister di acciaio può agire come tampone redox significativo. Una volta iniziata la decomposizione, i prodotti di corrosione si accumulano rapidamente nell'interspazio tra il canister e il rifiuto. I prodotti della corrosione hanno densità maggiore dell'acqua e assorbono le radiazioni alfa più velocemente. Insieme alla riduzione in volume dell'acqua adiacente al rifiuto, tale fatto determina una minore radiolisi

Un secondo meccanismo non correlato può agire nel limitare la radiolisi. L'idrogeno radiolitico prodotto nei primi stadi della radiolisi può formare una discreta fase gassosa nell'interspazio fra rifiuto e canister. Parte di questo gas può dissolversi e diffondersi fuori dal sistema ma, a causa dell'alta capillarità della bentonite, si può determinare una sovrappressione di gas, che previene un maggiore flusso di acqua nell'interspazio a compensare quello perduto per radiolisi. L'effetto di entrambi questi processi dipende dalla dimensione delle perforazioni nel canister e non è facilmente quantificabile. E' probabile tuttavia che le perforazioni iniziali siano piccole e che la riduzione in radiolisi sia massima al momento in cui gli effetti radiolitici dovrebbero essere più critici, quando cioè la radioattività è alta.

Il numero relativamente ridotto di studi di analoghi su questo argomento riflette probabilmente il fatto che la radiolisi non sia stata considerata di alta priorità nella maggior parte dei programmi di sviluppo dei depositi, tranne che in Svezia ed in Finlandia, ed anche a causa della identificazione di uno scarso numero di siti di analoghi affidabili.

Gli argomenti di maggiore rilevanza per la radiolisi indirizzati, attualmente o potenzialmente per studi di analoghi, sono:

- i processi comportati nella radiolisi delle acque sotterranee;
- quanto sia comune la radiolisi in natura;
- la capacità tampone potenziale delle fasi di corrosione del ferro ridotto delle barriere ingegneristiche.

### **7.5.3 Conclusioni sul fenomeno della radiolisi**

La radiolisi delle acque sotterranee appare realmente presente in natura in una serie di ambienti geologici nei quali possono esistere minerali radioattivi. Processi simili di radiolisi possono quindi essere presenti nel campo prossimo di un deposito, ma a velocità controllata dall'attività del rifiuto. Modelli di radiolisi nell'ambiente del campo prossimo assumono che l'idrogeno esca rapidamente dal campo prossimo del deposito e che il fronte redox risultante migri dal canister verso l'esterno in tutte le direzioni in una maniera semplice. Il modello non spiega l'ambiente redox osservato ad Oklo dove, sebbene la radiolisi sia avvenuta, l'idrogeno non è completamente

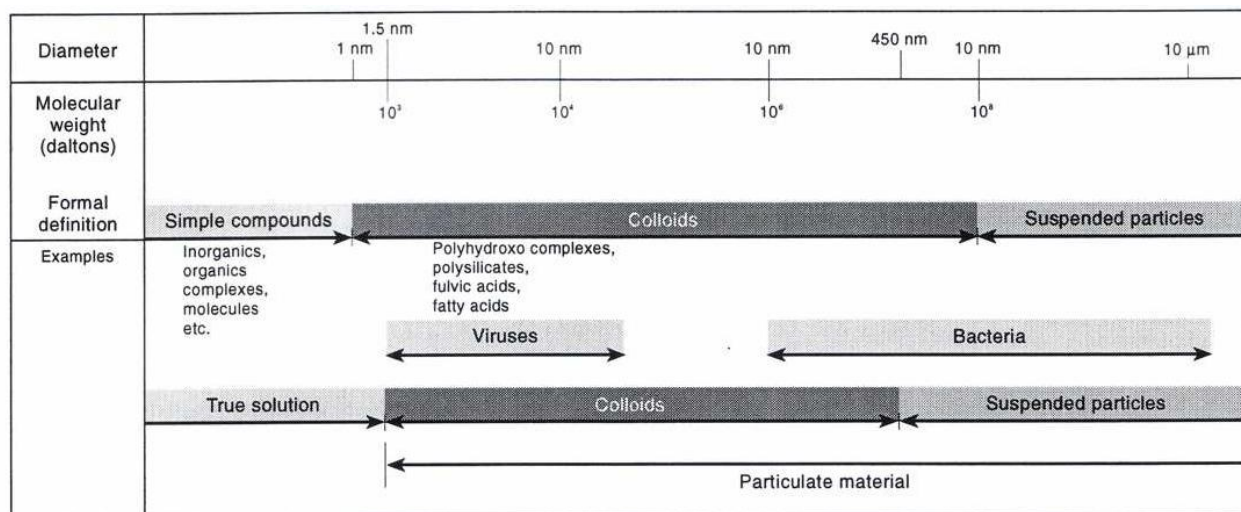
sfuggito al sistema, apparentemente restava e manteneva “tasche” di condizioni riducenti. Ciò ha importanti ripercussioni per la verifica delle prestazioni di un deposito in quanto, se l’idrogeno qui si comportasse alla stessa maniera, allora i modelli potrebbero essere eccessivamente conservativi. Non è tuttavia chiaro se le condizioni redox ad Oklo risultino da condizioni fisico-chimiche specifiche, ad esempio per temperature estreme, non rappresentative dell’ambiente del deposito. Se ciò è vero allora i modelli teorici possono descrivere accuratamente lo sviluppo radiolitico nel campo prossimo. Studi sperimentali sul materiale di Cigar Lake confermano che l’ossidazione dello  $UO_2$  può verificarsi. A causa delle incertezze, necessiterebbero ulteriori studi di analoghi naturali in ambienti geologici rilevanti.

## 7.6 Ruolo dei colloidii nel trasporto dei radionuclidi

I modelli standard del trasporto dei radionuclidi sono basati sulla chimica della soluzione dei radionuclidi lisciviati dalla wasteform e sui componenti del sistema naturale acqua/roccia. Assunzione implicita è che i radionuclidi siano trasportati solo come specie disciolte nelle acque sotterranee. Come tali i modelli sono semplicistici e non conservativi in quanto trascurano il potenziale effetto del trasporto advettivo dei radionuclidi legati ai colloidii [2].

### 7.6.1 Colloidii

Nel senso qui usato i colloidii comprendono materiale sospeso, nelle dimensioni  $10^{-9}m \div 10^{-6}m$ , e disperso nelle acque sotterranee. E’ in realtà difficile misurare le dimensioni dei materiali fini in soluzione. Pragmaticamente i limiti dimensionali sono definiti sulla base delle dimensioni selettive dei filtri come presentate nel diagramma di figura 7.10.



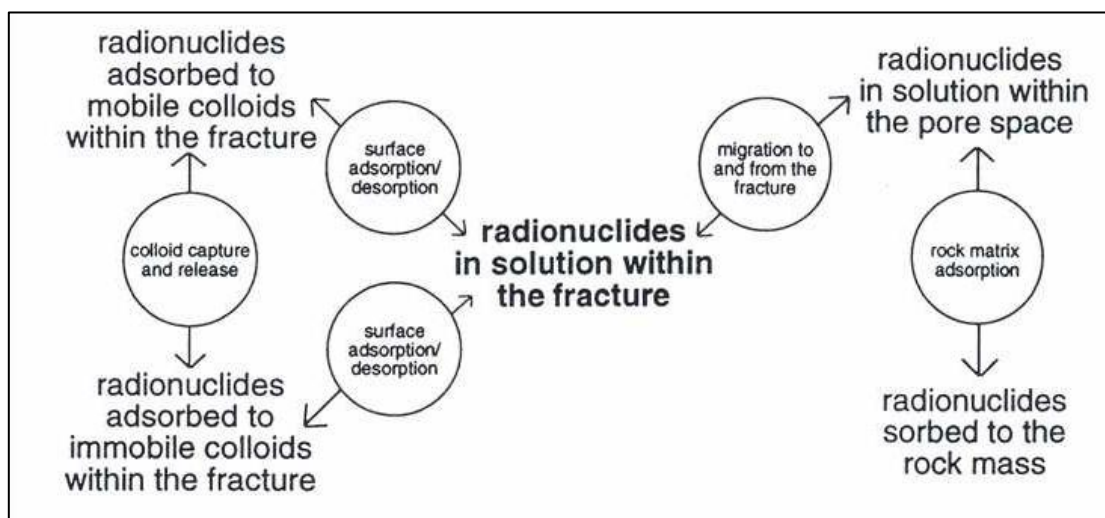
**Figura 7.10** Dimensioni relative definenti la pura soluzione, i colloidii e le particelle sospese.

E’ possibile definire due tipi di colloidii sulla base del loro modo di assunzione dei radionuclidi [12-13]. Il primo gruppo comprende colloidii prodotti dai processi di enucleazione e accrescimento delle specie solide contenenti radionuclidi a partire dalla soluzione. Il secondo gruppo comprende colloidii preesistenti nelle acque sotterranee, come colloidii di silice e materiale

argilloso, contenente radionuclidi assorbiti. Questo secondo gruppo include colloidii formati da cedimenti del waste form o delle barriere ingegneristiche, comprese anche macromolecole organiche, come acidi fulvici e umici, che complessano fortemente alcuni ioni di radionuclidi. I due gruppi ricorrono nella letteratura dei rifiuti radioattivi come veri e pseudo colloidii. Tale distinzione non è tuttavia considerata utile in quanto tutti i colloidii sono potenzialmente capaci di influenzare il trasporto dei radionuclidi; e pertanto tutto il materiale stabile sospeso della dimensione dei colloidii viene in questa sede definito colloidale, indipendentemente dal modo dell'assunzione dei radionuclidi.

Le dimensioni decisamente piccole dei colloidii comportano che una data massa possiede un'area specifica superficiale estremamente alta, fino a  $10^3$  m<sup>2</sup>/g per i più piccoli. Il comportamento chimico-fisico dei colloidii è pertanto fortemente controllato dalle reazioni e interazioni delle superfici; ad esempio i colloidii sono capaci di assorbire specie ioniche o molecolari in soluzione. Ne consegue che una grande popolazione colloidale nelle acque sotterranee possa avere importanti conseguenze per il comportamento dei radionuclidi.

Come esempio, in figura 7.11 vengono schematizzate le interazioni potenziali tra colloidii, radionuclidi e superfici minerali in un sistema di rocce fratturate. Per prima cosa, la presenza di colloidii significa che il sistema tradizionale a due componenti, roccia-acqua, non è sufficiente per la modellazione del trasporto in soluzione dei radionuclidi se questi sono sostanzialmente assunti dai colloidii. Questo dovrebbe avere particolare importanza per la determinazione in situ del  $K_d$  in quanto la concentrazione di radionuclidi misurata dalle soluzioni dovrebbe includere una componente significativa di radionuclidi presenti come colloidii. In fatto, numerosi studi di laboratorio hanno dimostrato che l'assunzione di radionuclidi da parte dei colloidii è reale almeno sotto queste condizioni controllate. Prima, tuttavia, che i colloidii siano trasportati da un deposito alla biosfera, devono essere superati un certo numero di ostacoli.



**Figura 7.11 – Tipi di interazioni fra colloidii, radionuclidi e superfici minerali in una roccia fratturata**



Molte ricerche in campo hanno studiato popolazioni colloidali di notevoli dimensioni in acque sotterranee profonde, ma questa informazione da sola non è sufficiente. Necessita una dimostrazione inequivocabile del trasporto di colloidali in un'appropriata formazione geologica a distanze rilevanti dal deposito, fatto che può essere conseguito solo dallo studio di analoghi. L'ubicazione ideale per tale dimostrazione dovrebbe essere un corpo minerario profondo, come sorgente puntuale, dal quale qualsiasi colloidale mobile potrebbe essere seguito a valle.

Nell'ambiente del deposito, il trasporto colloidale è considerato potenzialmente più significativo nel campo remoto. Nel campo prossimo di un deposito HLW, o di combustibile esaurito, un ruolo particolare di sicurezza del tampone della bentonite compattata è quello di agire come un filtro di colloidali e di macromolecole. Si ritiene generalmente che i pori interstiziali della bentonite compattata siano troppo piccoli per consentire l'advezione dei colloidali. Studi di laboratorio hanno dimostrato questa realtà o comunque che la mobilità è estremamente bassa.

Il materiale cementizio nel campo prossimo agisce ugualmente da filtro colloidale ma la degradazione del calcestruzzo può produrre colloidali che potrebbero essere mobili ai margini esterni della massa cementizia. L'apprezzamento crescente della potenziale importanza dei colloidali ha comportato un certo numero di studi di analoghi naturali per caratterizzare i colloidali nelle acque profonde e di quantificare gli effetti potenziali per la sicurezza del deposito. Pochi studi di analoghi hanno realizzato i loro obiettivi, in parte per le difficoltà operative del misurare e caratterizzare le particelle colloidali. Lo stesso atto del campionamento può influenzare la natura dei colloidali. La presenza di cationi sui filtri può alterare i rapporti colloidali/soluzione.

I colloidali devono essere studiati nel contesto del flusso delle acque sotterranee e del sistema di trasporto dei radionuclidi. Le alte popolazioni di colloidali in ambienti simili a quelli dei depositi di rifiuti radioattivi sono probabilmente insolite, il che è positivo per la sicurezza del deposito. Data la particolare significatività dei colloidali nell'attivazione del trasporto dei radionuclidi, gli argomenti di maggiore rilevanza che hanno indirizzato, o potranno indirizzare, verso studi di analoghi sono:

- popolazioni dei colloidali nei sistemi naturali;
- stabilità dei colloidali nei sistemi naturali;
- assunzione e trasporto dei radionuclidi da parte dei colloidali nei sistemi naturali;
- colloidali nei sistemi antropogenici;

#### **7.6.1.1 Popolazioni dei colloidali nei sistemi naturali**

Popolazioni di colloidali sono state esaminate in molti ambienti di sub superficie. Molti di tali studi in campo hanno comportato esperimenti di iniezione e pertanto non si tratta di veri studi di analoghi. Per questi ultimi possono essere menzionati Cigar Lake, Poços del Caldas, Oklo, Palmottu e Alligators River. Le condizioni chimico-fisiche di Cigar Lake sono simili a quelle di un deposito e quindi veramente significative. La popolazione dei colloidali nelle acque profonde è di circa 8 mg/l. È stato calcolato che meno dello 0.01% di radionuclidi in un dato volume di roccia verrebbe assorbito su questi colloidali in qualsiasi momento. Per quanto basso, questo dato potrebbe essere significativo per il trasporto nel tempo di vita di un deposito. La concentrazione media di uranio

dei colloidi nella zona del corpo minerario è dello 0.06% contro il 12% dello stesso. Tale fatto suggerisce che la maggior parte dei colloidi sia stata generata dall'argilla e non dal giacimento. Tuttavia i colloidi delle arenarie, separate dal giacimento dalle argille, hanno concentrazioni di uranio ancora minori. L'evidenza isotopica indica che la maggioranza dell'uranio e del radio assorbiti è derivata dalle acque sotterranee ed inoltre che alcuni dei colloidi hanno trattenuto l'uranio fino ad 8000 anni. La popolazione dei colloidi è significativamente troppo bassa per influenzare la migrazione dei radionuclidi se l'assorbimento è reversibile. Visto tuttavia che l'uranio è stato assorbito per migliaia di anni ne deriva che parte dell'assorbimento è durevole e che i colloidi sono stabili. Non si può quindi concludere che una bassa popolazione di colloidi sia insignificante riguardo al trasporto dei radionuclidi alla scala dei tempi geologici. La bassa concentrazione dei colloidi nelle arenarie indica che la formazione argillosa agisce come barriera efficiente per la migrazione dell'uranio. Tale fatto è congruente con altre informazioni suggerenti che l'argilla è plastica e forma un'effettiva barriera idraulica tra il giacimento e le fratture prossime contenenti acqua.

#### **7.6.1.2 Stabilità dei colloidi nei sistemi naturali**

La stabilità dei colloidi è importante perché in parte responsabile del trasporto dei nuclidi su lunghe distanze. Indagini di laboratorio o su colloidi recuperati da acque naturali profonde tende a suggerire che la maggior parte dei colloidi hanno carica negativa e sono relativamente stabili. Ciò è vero anche per colloidi di ossido di ferro che, in molti sistemi pH delle acque profonde, dovrebbero avere una carica positiva. Difficile è verificare direttamente la stabilità dei colloidi. Quelli formati dall'alterazione della roccia ospite o dai minerali rivestenti le fratture possono costituirsi (precipitare) o scomparire (sciogliersi) lungo il percorso del flusso al cambiare delle condizioni geochimiche, come osservato a Poços de Caldas e ad OsamuUtsumi. In quest'ultimo caso particelle di ossido di ferro prelevate nelle acque di fondo venivano considerate generate in profondità da acque riducenti risalenti piuttosto che da trasporto verso il basso di materiale dalla superficie durante le precipitazioni. Con questo meccanismo, i colloidi precipiterebbero nelle acque sotterranee se le condizioni eccedessero la solubilità per una data fase solida in una zona di saturazione chimica.

#### **7.6.1.3 Assunzione e trasporto dei radionuclidi da parte dei colloidi nei sistemi naturali**

In molti degli studi in materia è stato riscontrato che una certa proporzione di uranio, torio e terre rare era associata ai colloidi. La proporzione era più alta per il torio che per l'uranio per la più bassa solubilità del primo nella maggior parte delle acque. Le terre rare mostrano generalmente una affinità per i colloidi intermedia tra l'uranio ed il torio. La miniera di Steenkampskraal in Sud Africa, la più ricca del mondo in monazite, contiene il 45% di ossidi di elementi delle terre rare, il 4% di  $\text{ThO}_2$  e 600 ppm di  $\text{UO}_2$ . Evidenze geochimiche indicano che parte della monazite si discioglie in zone nelle quali la matrice silicea è esposta ad acque ossidanti. Le concentrazioni di colloidi nelle acque oscillavano fra  $3 \cdot 10^{10}$  e  $3 \cdot 10^{11}$  colloidi/litro.

L'evidenza da studi di analoghi naturali per la reversibilità dell'assunzione dei radionuclidi sui colloidi è largamente basata su dati degli studi del disequilibrio della serie dell'uranio. Tuttavia tali misure non sono adatte a distinguere facilmente tra assorbimento e precipitazione su colloidi nello stesso modo in cui non lo possono essere sulle superfici di rocce e di minerali fratturati.

La reversibilità dell'assorbimento dei radionuclidi nei colloidi è una tematica non risolta. L'influenza dei colloidi sul trasporto netto dei radionuclidi sarà pertanto limitata per le concentrazioni e per le proprietà di assorbimento dei colloidi misurate nella maggior parte sistemi naturali delle acque profonde. Se tuttavia l'assorbimento è irreversibile, il trasporto dei colloidi diviene un processo potenzialmente più significativo, se i colloidi sono sia più stabili, sia mobili. Naturalmente l'assorbimento realmente irreversibile rappresenta una impossibilità termodinamica; l'irreversibilità, in termini geochimici pratici, si riferisce ad una durata di assorbimento lunga relativamente al trasporto dei colloidi in un sistema di acque profonde.

#### **7.6.1.4 Colloidi nei sistemi antropogenici**

Molti dei dati indicanti la mobilità dei colloidi derivano dall'osservazione del movimento dei radionuclidi a valle di siti per la prova delle esplosioni nucleari o da strutture sub superficiali di LLW. Le rocce ospiti nel Nevada Test Site delle esplosioni nucleari sono lave idraulicamente insature dello stesso tipo di quelle proposte per il deposito HLW di Yucca Mountain, situato al margine esterno dell'area ristretta sede delle esplosioni. I risultati dell'analisi di quest'ultima rappresentano quindi un analogo per la verifica delle prestazioni di Yucca Mountain, ma sono meno rilevanti per altri concetti di deposito in rocce sature. Gli studi nel sito Nevada hanno riscontrato un trasporto dei radionuclidi più veloce di quanto predetto sulla base dei valori di  $K_d$  determinati in laboratorio. In un pozzo realizzato a 91 m di distanza dalla cavità creata dall'esplosione è stato realizzato un pompaggio per indurre un flusso idrico. Nessuna radioattività è stata riscontrata per due anni ma, continuando il pompaggio, è aumentata alla stessa velocità la concentrazione di  $^3\text{H}$  e di  $^{106}\text{Ru}$ . Tale fatto è sorprendente in quanto il trizio non viene assorbito e quindi viaggia alla stessa velocità dell'acqua, mentre il rutenio, con alta attitudine ad essere assorbito, avrebbe dovuto viaggiare ad una velocità 30.000 volte inferiore rispetto a quella del trizio. E' comunemente accettato che i valori  $K_d$  di laboratorio siano poveri descrittori del comportamento in campo, ma la discrepanza rilevata nel Nevada è probabilmente collegata ad un trasporto del rutenio in fase colloidale.

#### **7.6.2 Sintesi del ruolo dei colloidi nel trasporto di radionuclidi**

Molti studi di analoghi naturali hanno esaminato le popolazioni dei colloidi ed i loro effetti sul trasporto dei radionuclidi in condizioni rilevanti per il deposito, ma le conclusioni per la verifica delle prestazioni di un deposito sono decisamente scarse. Tale fatto dipende in parte dalla circostanza che le popolazioni colloidali nelle acque profonde sono troppo limitate per poter essere misurate, ma ciò non toglie che i colloidi possano avere influenza per il trasporto dei radionuclidi in uno specifico sito di deposito. Ogni accertamento delle popolazioni dei colloidi nella verifica delle prestazioni non può essere limitato alla sola considerazione della popolazione

naturale dei colloidi esistenti prima dello sviluppo del laboratorio, come indicato dallo studio degli analoghi. Piuttosto la verifica delle prestazioni deve considerare il potenziale di generazione di nuovi tipi o di incremento delle popolazioni di colloidi dovuti alle perturbazioni geochimiche dell'ambiente del campo prossimo, come l'alone alcalino di attesa derivazione da depositi cementizi L/ILW. Uno studio di analogo naturale ideale del trasporto dei colloidi dovrebbe essere a grande scala e dovrebbe includere la successione probabile delle acque sotterranee attese nel campo remoto di un deposito e dovrebbe esaminare la stabilità dei colloidi a tutti gli interfaccia delle stesse. Di particolare importanza per le rocce cristalline dovrebbe essere lo studio del comportamento dei colloidi in una massa rocciosa fratturata satura, argomento finora non adeguatamente trattato.

### **7.7 Genesi e ruolo di trasporto dei gas nella geosfera**

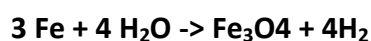
I gas possono essere generati in un deposito poco dopo la chiusura, quando le condizioni possono permanere ossidanti, e possono continuare nel più lungo termine quando le condizioni divengono riducenti. Poco dopo la chiusura del deposito l'ossigeno libero disponibile viene consumato attraverso la corrosione aerobica dell'acciaio e attraverso l'azione microbica aerobica su qualsiasi materiale organico presente. L'ultimo processo genererà volumi di CO<sub>2</sub> equivalenti a quello dell'ossigeno consumato, insieme a volumi di gas inerti, principalmente H<sub>2</sub> e metano (CH<sub>4</sub>).

Questi processi consumeranno rapidamente l'ossigeno nel sistema del campo prossimo e verranno a stabilirsi condizioni anaerobiche, che dovranno mantenersi a causa del basso contenuto di ossigeno delle acque profonde (se presenti o disponibili). Una volta stabilizzatesi le condizioni anaerobiche, possono prodursi gas attraverso tre processi principali:

- corrosione anaerobica dell'acciaio;
- degradazione anaerobica, indotta microbiologicamente, dei materiali organici;
- radiolisi dell'acqua e del materiale organico.

La significatività di questi tre processi dipenderà chiaramente dal tipo del deposito e del rifiuto contenuto. Tuttavia i depositi L/ILW produrranno i più grandi volumi di gas per la presenza di sostanze organiche nei rifiuti.

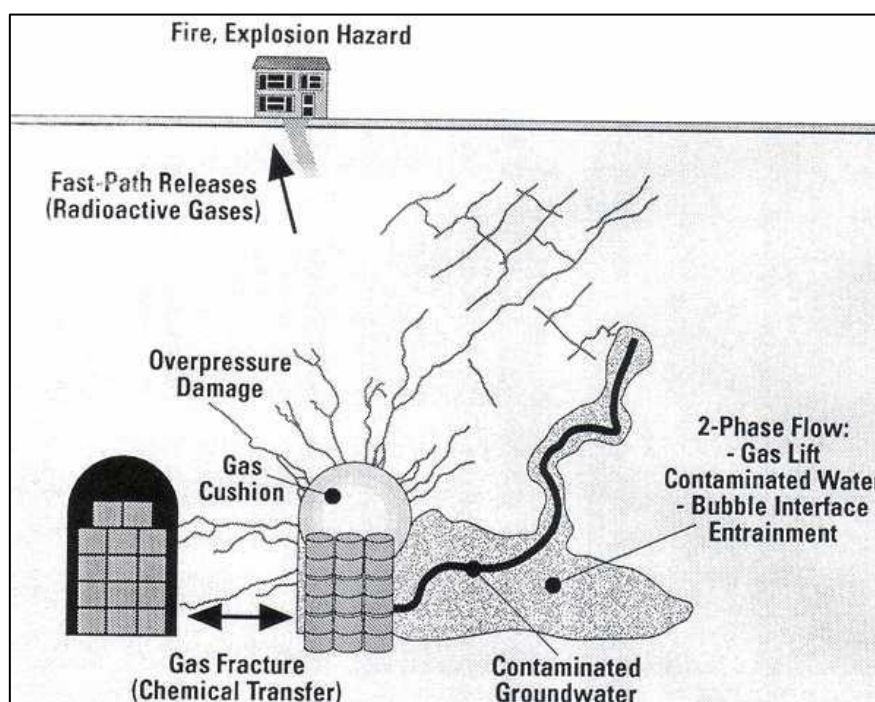
Il materiale più facilmente degradabile nei LLW è la cellulosa, presente in forma di legno, carta ecc., sebbene questi materiali possano essere inceneriti piuttosto che essere consegnati ad un deposito. La degradazione microbica della cellulosa origina gas CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> e H<sub>2</sub>. Il gas prodotto dalla sostanza organica non è importante come quello derivante dalla cellulosa. La maggioranza degli altri materiali organici nei rifiuti L/ILW, come le resine scambiatrici di ioni ed i bitumi, sono generalmente più resistenti alla degradazione chimica con produzione di gas meno significativa. La corrosione anaerobica dell'acciaio presente in tutte le configurazioni di deposito produrrà idrogeno sotto condizioni anaerobiche:



dove, la velocità di questa reazione sarà controllata dall'accessibilità delle superfici metalliche e dalle condizioni chimiche. In un deposito L/ILW, le condizioni alcaline possono rallentare la velocità di corrosione rispetto alle condizioni di pH neutro in un deposito HLW o di combustibile esaurito. Le velocità di produzione di gas dovute a radiolisi sono probabilmente molto inferiori rispetto a quelle dovute alla corrosione anaerobica del ferro o alla degradazione del materiale organico e non sono generalmente considerate significative per la verifica delle prestazioni.

Inizialmente il gas generato dovrebbe dissolversi nell'acqua. Tuttavia, continuandone la produzione, gas libero può formarsi nel campo prossimo se la velocità di produzione del gas eccede quella alla quale il gas può sfuggire nel campo prossimo. La formazione della fase del gas libero dovrebbe essere preoccupante per la sicurezza del deposito in quanto la formazione di una sovrappressione del gas potrebbe provocare danni alle barriere ingegneristiche o alla roccia del campo prossimo, con danni potenziali ancora non chiari. Una fase gassosa mobile uscente dal campo prossimo può impattare anche sulla migrazione dei radionuclidi con l'espulsione delle acque contenenti i radionuclidi disciolti. Se la temperatura sale in un deposito con bentonite può essere raggiunto un punto critico che permette al gas di rompere ed attraversare la bentonite e fluire all'esterno, con possibilità di incremento locale e della conduttività idraulica del tampone.

Nel caso dell'esistenza di sistemi di fratturazione e faglie idraulicamente aperte nel campo remoto, i gas generati nel deposito possono sfuggire al campo remoto ed anche raggiungere la superficie, ma i risultati delle osservazioni effettuate in Toscana, sede di campi geotermici, escludono questa possibilità almeno per le formazioni argillose ). Nel caso di accumuli presso questa si può creare un pericolo di esplosione ed incendio e porre anche un pericolo radiologico, in quanto gli isotopi radioattivi  $^3\text{H}$  o  $^{14}\text{C}$  possono avere sostituito gli equivalenti non radioattivi in idrogeno, metano o idrocarburi.



**Figura 7.12 – Formazione di gas e conseguenze nel campo prossimo di un ipotetico deposito di L/ILW**

Argomenti importanti per futuri studi di analoghi sono:

- velocità di produzione dei gas
- migrazione e reazione dei gas nella geosfera
- effetti della migrazione dei gas sul trasporto in soluzione

### **7.7.1 Velocità di produzione dei gas**

Le velocità di produzione dei gas nel campo prossimo di un deposito sono incerte, specialmente per la corrosione degli acciai in condizioni iperalcaline ma anche per la degradazione microbica della sostanza organica. Gli studi degli analoghi naturali possono potenzialmente fornire informazioni quantitative sulla produzione di gas per corrosione dei metalli a mezzo della determinazione della velocità di corrosione delle barre di rinforzo nelle strutture di cemento armato ecc., in ambienti saturati e riducenti. Per i depositi HLW e del combustibile esaurito un approccio simile per gli oggetti di acciaio, sepolti in bentonite od in altre argille, può essere appropriato se possono essere trovati sistemi analoghi. La composizione dell'acciaio e delle acque interstiziali ed il grado di corrosione possono essere misurati e, possibilmente, la produzione di gas calcolata. Questa informazione può essere allora estrapolata all'ambiente del deposito.

La metanogenesi nei sedimenti di acqua dolce si verifica largamente come risultato della scissione dell'acetato. Molto del metano prodotto può essere ossidato nella parte superiore di una pila di sedimenti prima che possa essere rilasciato. Nei sedimenti marini la metanogenesi si realizza in gran parte per la riduzione della  $CO_2$ . Esistono anche informazioni sulla velocità di rilascio del metano da sedimenti riducenti, particolarmente negli ambienti umidi. Come risultato di una grande quantità di lavoro su quest'area, il meccanismo della produzione di gas è ben noto e trasferibile al caso dei depositi. La comparazione fra un deposito L/ILW ed una palude, entrambi riducenti, ha permesso di calcolare il quantitativo di produzione di circa  $1m^3/t$  di rifiuto.

### **7.7.2 Migrazione e reazione dei gas nella geosfera.**

Oltre che nei giacimenti di idrocarburi la produzione di gas si verifica in sorgenti naturali, per lo più in aree idrotermali, non particolarmente rilevanti per siti di deposito. Resta l'utilità per il comportamento dei gas nella geosfera. Grandi volumi di idrogeno sono presenti nelle acque di fondo delle ofioliti e sono associate con le sorgenti iperalcaline studiate come analogo per i depositi cementizi. L'idrogeno può esistere in concentrazioni di pochi percento in equilibrio con  $CO_2$  e  $CH_4$  nella crosta anche a profondità di 2 km. La migrazione del gas nella geosfera si verifica sia in soluzione sia come fase gassosa separata più vicino alla superficie. La migrazione del gas è controllata dal reticolo di fratture nelle rocce dure e dalla geometria delle formazioni a bassa permeabilità. Pertanto lo stillicidio di gas alla superficie non indica necessariamente la presenza di una sorgente di gas in verticale nel sottosuolo. Anomalie superficiali di gas sono associate anche con tracce di arricchimenti di elementi. Con la migrazione attraverso la roccia il gas può reagire con i minerali presenti, ma non a temperature e pressioni simili a quelle attese in un deposito. E' probabile che parte del gas sia consumato in reazioni redox con specie come solfati, nitrati,  $Mn(IV)$

e Fe(II) della roccia. Queste reazioni sono termodinamicamente possibili ma possono essere inibite da una cinetica lenta. Questo è particolarmente il caso nel quale il gas migra rapidamente in fase gassosa. E' necessario acquisire più dati cinetici su queste reazioni, per determinare quanto efficienti esse possano essere nel consumare i volumi di gas sviluppati in un deposito.

### **7.7.3 Effetti della migrazione dei gas sul trasporto in soluzione**

La migrazione dei gas attraverso la geosfera può perturbare il flusso delle acque sotterranee e pertanto il flusso dei soluti attraverso un numero di processi quali:

- 1) la formazione di bolle può cambiare la viscosità apparente delle acque sotterranee ed indurre o accelerare il movimento;
- 2) le bolle possono spingere le acque di fondo in fronte a loro lungo un percorso preferenziale;
- 3) bolle immobili possono cambiare la direzione del flusso delle acque sotterranee sigillando realmente certi percorsi;
- 4) bolle possono catturare radionuclidi e colloidali dalle acque sotterranee che si attaccano conseguentemente all'interfaccia gas/acqua e si muovono con le bolle per un processo di flottazione del gas;
- 5) bolle di gas provenienti da soluzioni a seguito di caduta della pressione di confinamento delle acque sotterranee possono cambiare la chimica dell'acqua, specialmente alterando il pH con lo sviluppo dell'anidride carbonica.

Mentre alcuni di questi processi appaiono come potenzialmente significativi, nessuna valutazione di campo o di analogo del loro impatto sulle prestazioni di un deposito è stata condotta. Per la velocità di produzione dei gas esiste una quantità sostanziale di informazione su questi meccanismi. Dati ed esperienze sono giacenti presso l'industria degli idrocarburi, nelle scienze marine e nei processi delle pratiche ingegneristiche. Se un qualsiasi meccanismo è identificato come importante, allora può essere appropriato individuare evidenze analoghe del loro comportamento nella geosfera, per quanto l'applicazione degli analoghi a questo settore sia labile.

### **7.8 La migrazione dei prodotti di fissione e degli attinidi in ambiente naturale (Oklo)**

La migrazione dei prodotti di fissione e dei transuranici in mezzi naturali è evidentemente conosciuta meno bene, da un punto di vista teorico, di quella dell'uranio o del torio (De PutterTh., Chalet J.M., 1994). L'analogo di Oklo ha fornito le informazioni più numerose e più interessanti.

**Rubidio e cesio.** Non sono trattenuti nella struttura cristallina dell'uraninite a causa, soprattutto, del loro raggio ionico molto grande. Diversi studi sembrano tuttavia indicare che nessuno dei due elementi è migrato in maniera importante. Il comportamento del  $^{137}\text{Cs}$  è stato intravisto attraverso di quello del suo discendente  $^{137}\text{Ba}$ .

**Krypton e Xenon.** Quelli fissiogenici sono instabili nella struttura dell'uraninite. Essendosi probabilmente diffusi rapidamente alla superficie dei grani, sarebbero stati interamente asportati dai fluidi idrotermali.

**Ittrio.** E' stato catturato nell'uraninite in ragione del suo raggio ionico vicino a quello dell'uranio.

**Zirconio.** Si sostituisce parzialmente allo  $U^{4+}$ , fino a qualche centinaio di ppm, nel reticolo dell'uraninite. Quanto allo  $^{90}Zr$ , la sostituzione temporanea del suo genitore  $^{90}Sr$  nel reticolo dell'uraninite non è da escludere.

**Niobio.** Fissiogenico, non è migrato.

**Molibdeno.** E' migrato fino allo 80% su una distanza breve. La maggior parte di quello mobilizzato è catturato a circa 1.5 m dalle zone di reazione, nei solfuri secondari della ganga.

**Tecnezio.** Trattenuto in parte (60-85%) nel reticolo dell'uraninite, è, per il resto, migrato per una dozzina di metri al massimo, in associazione con il rutenio.

**Rutenio.** Trattenuto in maggioranza (70-90%) nel reticolo dell'uraninite, la parte migrata è stata rapidamente catturata nei solfuri secondari della ganga con il molibdeno e con il tecnezio.

**Palladio.** Parzialmente incorporato sotto forma nativa nell'uraninite (microliti).

**Rodio.** Probabilmente trattenuto nell'uraninite là dove si è formato.

**Argento.** Sembra mancare nella zona della reazione. E' possibile, ma non dimostrata, una migrazione di questo elemento sotto forma colloidale o di complesso organometallico. Il meccanismo di migrazione non è stato ancora chiarito.

**Cadmio.** Non trattenuto nell'uraninite che per meno del 10%.

**Indio.** Prodotto ( $^{115}In$ ) in piccole quantità ad Oklo. Il raggio ionico di questo isotopo rendono probabile il suo incorporamento nel reticolo cristallino dell'uraninite.

**Stagno.** Migrato massicciamente, fino al 60-70%. La migrazione è dovuta al piccolo raggio ionico dell'elemento. Il campo prossimo dei reattori è arricchito in stagno fissiogenico associato a solfuri secondari.

**Antimonio.** Non sembra essere migrato massicciamente.

**Tellurio.** Caratterizzato da un raggio ionico molto ridotto, che rende improbabile la sua incorporazione nel reticolo cristallino dell'uraninite. Per contro è probabile che il tellurio nativo sia disperso sotto forma criptocristallina nel minerale.

**Bromo e Iodio.** Entrambi suscettibili di migrare. Dati sicuri sono stati ottenuti per il bromo, ma si considera che tutto lo iodio prodotto sia migrato lontano dai siti di reazione. E' possibile che lo iodio mobilizzato sia stato catturato al momento della formazione dei solfuri secondari. Oltre il molibdeno ed il rutenio fissiogenico questi solfuri sarebbero suscettibili di catturare anche lo iodio.

**Alogeni.** L'analogo di Loch Lomond fornisce dati interessanti sulla migrazione, nel corso degli ultimi 10.000 anni, dello iodio attraverso un livello argilloso, processo verificatosi anche ad Oklo.



Lo iodio sarebbe mobilizzato sotto la forma della specie ionica  $I^-$ , spostandosi per diffusione attraverso la roccia incassante ed essendo poco suscettibile di essere ritardato attraverso un qualunque processo di assorbimento. Solo modificazioni maggiori delle condizioni geochimiche o la formazione di complessi organo-iodati sarebbero suscettibili di ridurre la mobilità dello iodio.

**Stronzio e bario.** Prodotti di fissione importanti in quantità ( $^{88}\text{Sr}$ ) e per attività intrinseca elevata. Gli studi sembrano mostrare che non esiste migrazione significativa di  $^{90}\text{Sr}$  (quantità del suo discendente genetico  $^{90}\text{Zr}$ ). Per contro non esiste certezza sul comportamento dello  $^{88}\text{Sr}$ . Il bario è un elemento i cui bilanci sono difficili da stabilire ad Oklo in ragione della presenza di Ba naturale (baritina, comprendente una proporzione importante di  $^{138}\text{Ba}$ , mascherante l'apporto fissiogenico di questo isotopo). Nessuno dei due elementi è suscettibile di essere incorporato nel reticolo dell'uraninite, ma in presenza di quantità sufficienti di S e di  $\text{CO}_2$  è possibile che la formazione di  $\text{SrCO}_3$  e/o  $\text{SrSO}_4$  immobilizzi una parte dello stronzio, cosa parimenti vera per il bario. Sembra inoltre che lo stronzio ed il bario di Oklo abbiano potuto essere assorbiti sui minerali argillosi prima di essere desorbiti e di precipitare sotto forma di carbonati e/o di solfati.

**Piombo.** Discendente radiogenico degli attinidi a periodo molto lungo ( $^{235}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ) è stato oggetto di una rimobilizzazione molto posteriore all'arresto dei reattori di fissione; ciò contrariamente alla maggior parte dei prodotti di fissione che si sono formati, ed eventualmente dispersi, in un intervallo da 0.1 a 0.8 Ma secondo l'attività dei reattori. L'episodio intrusivo di 750 Ma ha probabilmente permesso la perdita per diffusione della maggior parte del piombo prodotto in questa maniera. Troppo voluminoso per essere incorporato nel reticolo dell'uraninite, il  $\text{Pb}^{2+}$  ha formato numerosi minerali secondari, specialmente solfuri, nel campo lontano dai reattori.

**Bismuto.** Discendente radiogenico del nettunio ( $^{237}\text{Np} \rightarrow ^{209}\text{Bi}$ ) è stato integralmente trattenuto nel reticolo cristallino dell'uraninite dei reattori. Il raggio ionico dello ione trivalente  $\text{Bi}^{3+}$  è in effetti molto vicino a quello dello  $\text{U}^{4+}$ .

**Nettunio.** Prodotto ad Oklo, deriva dall'intensa irradiazione neutronica dei minerali più arricchiti. Questo elemento non è migrato nella misura nella quale il diossido  $\text{NpO}_2$  forma una soluzione solida completa con  $\text{UO}_2$ , essendo i raggi ionici di  $\text{Np}^{3+}$  e di  $\text{U}^{4+}$  quasi identici.

**Plutonio.** Sotto forma di ossido ( $\text{PuO}_2$ ) forma ugualmente una soluzione solida con  $\text{UO}_2$ , ciò che spiega la sua ritenzione nelle zone di reazione, essendo il raggio ionico del  $\text{Pu}^{4+}$  molto prossimo a quello dello  $\text{U}^{4+}$ , o nella loro prossimità immediata.

## BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 7

- [1] Miller, W. et al.: Natural analogue studies in the geological disposal of radioactive wastes. Nagra Technical Report 93-03. Wettingen, Switzerland, January 1994.
- [2] Miller, W., et al.: Geological disposal of radioactive wastes & natural analogues. Waste Management Series, Pergamon: Elsevier Science, 2000
- [3] G. McKinley and J. Hadermann: "Radionuclide Sorption Database for Swiss Safety Assessment", NAGRA Technical Report NTB 84-40, January 1984.
- [4] Benvegno, F., Brondi, A., Polizzano, C., 1988. Natural Analogues and evidence of long term isolation capacity of clays occurring in Italy. CEC Report EUR 11896.
- [5] Landstrom O. and Tullborg E.-L. (1990) The influence of fracture mineral/groundwater interaction on the mobility of U, Th, REE and other trace elements, SKB-TR-90-37, Swedish Nucl. Fuel Waste Manag.Co., Stockholm, Sweden.
- [6] Hooker P.J.,(1985-1990) Quantitative interpretation of Cl,Br, and I porewater concentration profile in lake sediment of Loch Lomond, Scotland. BGS Technical Report, WE/90/3.
- [7] Wollenberg, H.A., Smith, A.R., Mosier, D.F., Flexser, S., and Clark, M., 1985, Radon-222 in groundwater of the Long Valley caldera, California: Pure and Applied Geophysics V. 122, p. 327-339.
- [8] MURPHY, W.M., PICKETT, D.A., "Isotopic constraints on radionuclide transport at Peña Blanca", Seventh EC Natural Analogue Working Group Meeting, Stein am Rhein, Switzerland, Commission of the European Communities, Rep. EUR 17851 EN, (1996) 113–122.
- [9] Baertschi P., Waldere W, Ivanovich M., (1991) Uranium and Thorium-series nuclides – Applied Isotope Hydrology - A case study in Northern Switzerland ELSEVIER Amsterdam.
- [10] Olin M. and Valkiainen M. et al., 1990 – Diffusivity and porosity studies in rock matrix. The effect of salinity – Technical Research Centre of Finland VTT Research Notes 1394.
- [11] Neretnieks I and Faghihi M (1991) Some mechanisms which may reduce radiolysis. SKB Technical Report, TR 91-46.
- [12] Avogadro, A., De Marsily, G., (1984): The Role of Colloids in Nuclear Waste Disposal, Mat. Res. Symp. Proc. Vol. 26, 495-505.
- [13] Kim, J.I., G. Buckau, F. Baumgartner, H.C. Moon and D. Lux. 1984. Colloid Generation and the Actinide Migration in Gorbelen Groundwaters. In Scientific Basis for Nuclear Waste Management, V. 7, Gary L. McVay, Ed., Elsevier, NY, pp. 31-40.

## 8. APPROCCIO BELGA (MOL URL) PER LO STUDIO SUI FENOMENI DI TRASPORTO DEI RADIONUCLIDI IN MATRICE ARGILLOSA

### 8.1 Introduzione

Nel progetto belga di deposito geologico la matrice argillosa è la principale barriera in termini di confinamento dei radionuclidi. I due principali obiettivi sono la comprensione e la previsione del comportamento dei radionuclidi nell'argilla, ossia:

identificare i meccanismi fondamentali che governano la migrazione dei radionuclidi in argilla e determinare i parametri di migrazione che sono necessari per le valutazioni di sicurezza.

### 8.2 Migrazione dei radionuclidi in argilla

Dato che l'argilla è solitamente caratterizzata da una bassa conduttività idraulica verticale ( $K_{vert} \approx 2 \cdot 10^{-12} \text{ ms}^{-1}$ ) e un basso gradiente idraulico naturale (2 m di battente di acqua su 100 m di spessore di argilla), la migrazione dei radionuclidi è essenzialmente controllata dalla diffusione, con l'avvezione che gioca solo un ruolo secondario.

Il numero di Péclet ( $Pe$ ), frequentemente usato in idrogeologia, illustra queste affermazioni molto chiaramente quando applicate alla migrazione di radionuclidi in argilla. Esso è calcolato in base alla seguente relazione:

$$P_e = \frac{V_D x}{\eta R D_{app}}$$

dove

$P_e$ : Péclet number (-);

$V_D$ : velocità di Darcy ( $\text{ms}^{-1}$ );

$x$ : distanza (m);

$\eta$ : porosità accessibile alla diffusione (-);

$R$ : fattore di ritardo (-);

$D_{app}$ : coefficiente di diffusione apparente ( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ).

Per  $P_e < 1$ , la diffusione domina sull'avvezione alla distanza  $x$  dalla sorgente. In argilla,  $P_e$  è minore di 1 in tutti i casi. Come esempio, per lo iodio che è caratterizzato da un  $\eta R D_{app}$  dell'ordine di  $3.7 \cdot 10^{-11} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ ,  $P_e$  è uguale a 0.08 ai margini della formazione di argilla ( $x = 50 \text{ m}$ ,  $V_d = 4 \cdot 10^{-14} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ ).

il flusso unidimensionale diffusivo in un mezzo poroso [2] è dato da:

$$F = \eta G F_{aq} = -\eta G D_{aq} \frac{\partial C}{\partial x} = -\eta \frac{D_{aq}}{R_f} \frac{\partial C}{\partial x}$$

dove  $F$ : flusso diffusivo nel mezzo poroso ( $\text{mol m}^2\text{s}^{-1}$ );

$F_{aq}$ : flusso diffusivo in acqua pura ( $\text{mol m}^{-2}\text{s}^{-1}$ );

$\eta$ : porosità accessibile alla diffusione (-);

$G$ : fattore geometrico (-);

$R_f$ : fattore di roccia (-),  $R_f = 1/G$ ;

$D_{aq}$ : coefficiente di diffusione in acqua pura ( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ );

$C$ : concentrazione nella soluzione delle specie che diffondono ( $\text{mol m}^{-3}$ );

$x$ : distanza (m)

l'effettivo coefficiente di diffusione [3],  $D_e$  ( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ), è definito come segue:

$$D_e = \eta G D_{aq} = \eta \frac{1}{R_f} D_{aq}.$$

Il coefficiente di diffusione apparente,  $D_{app}$  ( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ), è uguale a:

$$D_{app} = \frac{D_e}{\eta R} = \frac{D_{aq}}{R R_f}$$

dove  $R$  è il fattore di ritardo (-).

Nelle valutazioni di sicurezza, il parametro usato per il coefficiente di diffusione nelle acque interstiziali  $D_p$  ( $\text{m}^2\text{s}^{-1}$ ) è dato dalla relazione:

$$D_p = G D_{aq} = \frac{D_{aq}}{R_f}.$$

Si può vedere che  $D_p$  non dipende dal fattore di ritardo ma dal fattore geometrico  $G$  ed è direttamente correlato al coefficiente di diffusione in acqua pura.

La riduzione nel flusso  $F/F_{aq}$  di cui tiene conto il fattore geometrico, dipende dalla tortuosità e costrittività dei pori a livello microscopico.

Nella maggior parte dei casi (mezzi porosi),  $G$  può essere solo determinato su base microscopica attraverso relazioni semiempiriche. In argilla, si osserva una leggera anisotropia per il fattore geometrico, che è più alta nella direzione parallela al piano di sedimentazione dell'argilla.

Questa leggera differenza tra i valori di  $G_{hor}$  e  $G_{vert}$  tiene conto delle discrepanze notate nei test di migrazione tra campioni verticali e orizzontali per lo stesso elemento (l'argilla è isotropa rispetto agli altri parametri di migrazione  $\eta$ ,  $R$ ,  $D_{aq}$ ). Il fattore geometrico varia tipicamente tra 0.07 e 0.27. Non può essere stabilita una chiara distinzione tra i valori per  $G$  per specie differenti. Un'analisi dei

dati disponibili per elementi debolmente assorbiti o non assorbiti suggerisce che i seguenti valori possano essere scelti per i fattori geometrici:

$$G_{\text{hor}} = 0.1; G_{\text{vert}} = 0.15.$$

La speciazione, solubilità e mobilità dei radionuclide sono il risultato di reazioni chimiche complesse: idrolisi, precipitazione, assorbimento, complessazione, cambiamenti redox, formazione di specie polinucleari e colloidali.

A parte gli ioni idrossili, due leganti in particolare determinano la speciazione e la mobilità di molti radionuclide in argilla: carbonati e materia organica disciolta.

Le concentrazioni di Carbonio Organico Totale (TOC) e di Carbonio Inorganico Totale (TIC) sono quindi due parametri chiave che possono essere usati per valutare le capacità complessanti dell'acqua interstiziale in argilla.

Gli attinidi sono alcuni degli elementi più sensibili ai fenomeni di complessazione. Mentre la letteratura specializzata fornisce un'abbondanza di dati a proposito di idrolisi, reazioni redox e complessazione di carbonato, i dati per la complessazione di materia organica, specialmente in un mezzo alcalino, sono molto rari.

### **8.3 Caratteristiche chimiche delle acque interstiziali in argilla**

La nostra conoscenza in questo campo è stata recentemente espansa dal progetto europeo ARCHIMEDE il cui scopo era migliorare la comprensione dei meccanismi di acquisizione e regolazione della chimica dell'acqua in un ambiente di argilla. Questo studio è stato eseguito in tre fasi dal 1992 al 1994:

1. Lavoro fatto in situ (underground research facility), prendendo campioni rappresentativi ed eseguendo misure sul sito
2. Lavoro fatto nel laboratorio di superficie e analisi (caratterizzazione dei solidi, dei fluidi e della microbiologia);
3. Modellizzazione geochemica.

Tutti i dati correntemente disponibili sono stati soggetti a una revisione critica. La composizione media inorganica dell'acqua interstiziale è data nella Tabella 8.1 (valor medio).

Il valore riportato per i fosfati dovrebbe essere trattato con attenzione a causa di una possibile contaminazione dei campioni analizzati (presenza di impurità nel piezometro usato per il campionamento). Misure di campioni prese da un altro piezometro non sono state in grado di confermare questo valore (il livello è al di sotto dei limiti di rilevabilità pari a  $2.5 \text{ mg L}^{-1}$ ).

La concentrazione di carbonio organico in soluzione (DOC) varia tra  $41.3$  e  $144 \text{ mg L}^{-1}$ .

Le condizioni che prevalgono devono essere scrupolosamente mantenute quando si misura il pH.

La pressione parziale di  $\text{CO}_2$  è  $10^{-3.42} \text{ MPa}$  ( $10^{-2.42} \text{ atm}$ ) che indica che l'acqua interstiziale è sovra-satura se confrontata con le condizioni atmosferiche ( $p\text{CO}_2 = 10^{-4.5} \text{ MPa}$  o  $10^{-3.5} \text{ atm}$ ) [5]. Una misura di pH su una soluzione degassata produce un errore dell'ordine di una unità [6].

La presenza di carbonati solidi (percentuale di calcite e siderite: da 1 a 5%) attribuisce all'argilla una certa capacità di buffer (pH).

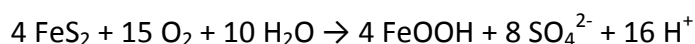
Finché il potenziale redox è interessato, questo è fissato da un insieme di minerali comprendente la pirite (FeS<sub>2</sub>), che è anche presente con un contenuto da 1 a 5%, e siderite[4].

**Tabella 8.1: composizione inorganica media dell'acqua interstiziale in argilla**

Element	Concentration [mol.L <sup>-1</sup> ]
<i>Anions</i>	
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	1.36 10 <sup>-2</sup>
Cl <sup>-</sup>	7.61 10 <sup>-4</sup>
F <sup>-</sup>	1.89 10 <sup>-4</sup>
HPO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	3.96 10 <sup>-5</sup>
Br <sup>-</sup>	6.13 10 <sup>-6</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	2.08 10 <sup>-6</sup>
<i>Cations</i>	
Na <sup>+</sup>	1.77 10 <sup>-2</sup>
K <sup>+</sup>	2.81 10 <sup>-4</sup>
Mg <sup>2+</sup>	1.19 10 <sup>-4</sup>
Ca <sup>2+</sup>	9.98 10 <sup>-5</sup>
Fe (II/III)	1.61 10 <sup>-5</sup>
Al (III)	2.96 10 <sup>-6</sup>
<i>Neutral species</i>	
B(OH) <sub>3</sub>	6.93 10 <sup>-4</sup>
Si(OH) <sub>4</sub>	1.78 10 <sup>-4</sup>
<i>Physico-chemical parameters</i>	
pH <sup>(*)</sup>	8.2 ± 0.05
Eh (mV/SHE <sup>(**)</sup> )	-0.250
Ionic conductivity (mS.cm <sup>-1</sup> )	1.8
Total quantity of dry matter per litre of interstitial solution (mg.L <sup>-1</sup> )	≈ 1500
(*) measured in situ without loss of CO <sub>2</sub> by means of an optode	
(**) redox potential versus standard hydrogen electrode	

La capacità redox dell'argilla è circa 2 meq g<sup>-1</sup>.

I test di migrazione devono essere condotti sotto strette condizioni anaerobiche, poiché anche l'ossidazione parziale dell'argilla altererà le sue proprietà e modificherà significativamente il comportamento non solo dei radionuclide ma anche della materia organica [7]. In presenza di ossigeno la pirite si ossida secondo la reazione generale:



Il mantenimento a lungo termine di condizioni geochimiche favorevoli al rallentamento dei radionuclidi è un punto cruciale che determina la sicurezza a lungo termine di un deposito in argilla, ed è un argomento che futuri programmi tratteranno come questione di priorità.

Un gran numero di argomenti dovranno essere studiati per dimostrare ciò (diagenesi dell'argilla, formazione di septaria, cambiamenti climatici etc.), ma i seguenti punti dovrebbero già essere enfatizzati qui e adesso in questo contesto:

Acqua interstiziale in argilla sta in equilibrio con i minerali della fase solida (equilibrio di dissoluzione/precipitazione) da un tempo molto lungo, anche se non è attualmente possibile specificare un'esatta scala temporale;

gli equilibri redox sono stabili dall'inizio della sedimentazione e sono stati raggiunti molto rapidamente a causa dell'attività microbica dei batteri solfato riducenti e metanogeni che molto rapidamente hanno prodotto la prima pirite e quindi metano.

#### **8.4 Caratteristiche dei minerali costituenti dell'argilla**

I minerali possiedono una carica elettrica superficiale negativa permanente dovuta, tra le altre cose, alla sostituzione isomorfa del silicio da parte dell'alluminio o dell'alluminio da parte del magnesio in piani tetraedrici (silice) e ottaedrici (gibbsite) rispettivamente.

Una caratteristica importante della superficie dei minerali è il punto zero di carica (ZPC).

Ciò definisce il  $pH_{zpc}$  dei minerali per cui la carica  $\sigma$  (densità di carica superficiale netta totale) si cancella. Il  $pH_{zpc}$  perciò caratterizza globalmente l'acidità della superficie. Quando il  $pH < pH_{zpc}$ , la carica è positiva, quando il  $pH > pH_{zpc}$ , essa è negativa.

Il valore di  $pH_{zpc}$ , che è direttamente collegato alla natura dell'ossido dipende da un numero di fattori tale che la polarizzazione dei gruppi di superficie da parte dei cationi, la struttura cristallina e la morfologia delle particelle, i trattamenti fisico-chimici e termali dell'ossido. Sotto le condizioni in situ, l'argilla è caratterizzata da un pH leggermente alcalino.

Questo pH è al di sopra del  $pH_{zpc}$  dei costituenti dell'argilla, e il risultato è una dissociazione dei gruppi S-OH alla superficie dei minerali (S = silanolo, alluminoli) con la creazione di cariche negative.

Questa caratteristica è manifestata da una repulsione elettrostatica degli anioni (esclusione Donnan) e assorbimento dei cationi. La porosità accessibile alla diffusione degli anioni non assorbenti quali lo iodio ( $\eta \approx 0.12$ ) sarà pertanto minore di quella dei cationi e delle specie neutre ( $\eta \approx 0.30$ ) quali l'acqua triziata o la silice disciolta ( $Si(OH)_4$ ). Con riguardo agli anioni (Ossianioni come  $PO_4^{3-}$ ,  $SeO_3^{2-}$  and  $SiO(OH)_3^-$  sono qui considerati) per cui un processo di assorbimento è osservato (attraverso uno scambio chelante), si assume una porosità accessibile alla diffusione di 0.30.

L'assorbimento di cationi dipende non solo dalla loro affinità con i chelanti di superficie ma anche dal loro raggio idrato e la loro carica elettrica netta.

I radionuclidi elettrofili quali Cs (I), Pd (II), Eu (III), Am (III), Cm (III), Zr (IV) e gli elementi redox sensibili facilmente ridotti a specie scarsamente solubili (Se, Tc, U, Np, Pu) saranno fortemente immobilizzati nella fase solida.

### **8.5 Ruolo della materia organica naturalmente presente in argilla**

La materia organica naturale è comunemente suddivisa in quattro gruppi: la frazione umica che è insolubile in un mezzo alcalino, i componenti umici e fulvici e una frazione consistente di piccole molecole la cui capacità complessante non è nota. Gli acidi umici precipitano a un pH inferiore a 2 mentre gli acidi fulvici rimangono in soluzione. Gli acidi umici hanno una struttura tridimensionale che è caratterizzata da un elevato grado di aromaticità e dalla presenza di ponti alifatici.

Questi composti possiedono numerosi gruppi funzionali (particolarmente R-COOH, R-OH) che sono responsabili delle loro proprietà complessanti verso i cationi, in particolare attinidi trivalenti [9].

Gli acidi umici e fulvici sono presenti come colloidali tra 1 nm e 0.1  $\mu\text{m}$  in dimensione. Data la loro solubilità a un elevato pH, questi acidi sono mobili nei mezzi fratturati [10]. L'argilla contiene da 1 a 3% di percentuale in peso di materia organica [11] e una frazione molto piccola è in soluzione ed è considerata essere mobile ( $\approx 0.05\%$ ).

In un mezzo poroso quale l'argilla, la mobilità di specie organiche in soluzione dipende anche dalla taglia molecolare, essendo le molecole più grandi immobilizzate nei pori da ultrafiltrazione.

La materia organica in soluzione consiste di 70% di acidi umici e il 30% di acidi fulvici e altre piccole molecole. Un 50% della materia organica disciolta è caratterizzata da un peso molecolare minore di 1000 ( $\leq 1$  nm). Con l'eccezione di reazioni di idrolisi, la chimica della soluzione degli attinidi in argilla potrebbe essere considerata come la competizione tra carbonati e acidi umici e fulvici (complessazione). Per calcoli di speciazione, le costanti di complessazione con acidi fulvici non sono note per l'argilla e così essi sono estrapolati dagli scarsi dati disponibili per gli acidi umici. La formazione di complessi misti (carbonati, acidi umici) è stata inoltre riportata per l'europio, l'americio e il curio. La distribuzione degli attinidi tra le specie differenti è una funzione delle costanti di stabilità dei complessi ( $\log \beta_i$ ) e della concentrazione dei carbonati e degli acidi umici in soluzione [7].

La presenza di materia organica non dovrebbe essere vista come un fattore necessariamente dannoso per la ritenzione di attinidi e lantanidi (ed elementi trivalenti in particolare). Mentre la formazione di complessi organici può risultare in un aumento intrinseco nella solubilità di certi radionuclidi, esso può anche condurre a una riduzione nella concentrazione mobile. L'argilla (diametro medio dei pori: 5 nm) di fatto agisce come un ultrafiltro verso i colloidali organici con cui i radionuclidi complessati sono parzialmente associati limitandone perciò la mobilità [6, 12].

La materia organica assorbita sulla superficie dei minerali e immobilizzata dall'effetto di filtrazione dell'argilla costituisce una capacità complessante significativa riguardo agli attinidi.



Poiché la capacità complessante della materia organica sembra essere più pronunciata per le frazioni di maggior peso molecolare, l'assorbimento dei radionuclidi sulla componente immobile dovrebbe essere favorito. La materia organica presente sulla superficie dei minerali nella forma di complessi umici di argilla agirebbe come una sorta di rivestimento complessante dei cationi metallici [7, 13].

Un gran numero di processi contribuiscono alla formazione di complessi umici di argilla: scambio di chelanti, interazione idrofobica, ponti cationici e anche ultrafiltrazione meccanica da parte dell'argilla.

### 8.6 Interazioni solido-soluzioni che influenzano la migrazione

Tutte le interazioni soluzione-solido che potrebbero influenzare in una certa misura la migrazione dei radionuclide nell'argilla sono mostrate nella Tabella 8.2.

La migrazione dei radionuclidi sia per avvezione che diffusione sarà influenzata da vari processi di ritenzione.

In Tabella 8.2 alcuni di questi processi sono presentati. Sono raggruppati come funzione del tempo crescente di reazione. L'assorbimento è in generale il primo passo dell'immobilizzazione.

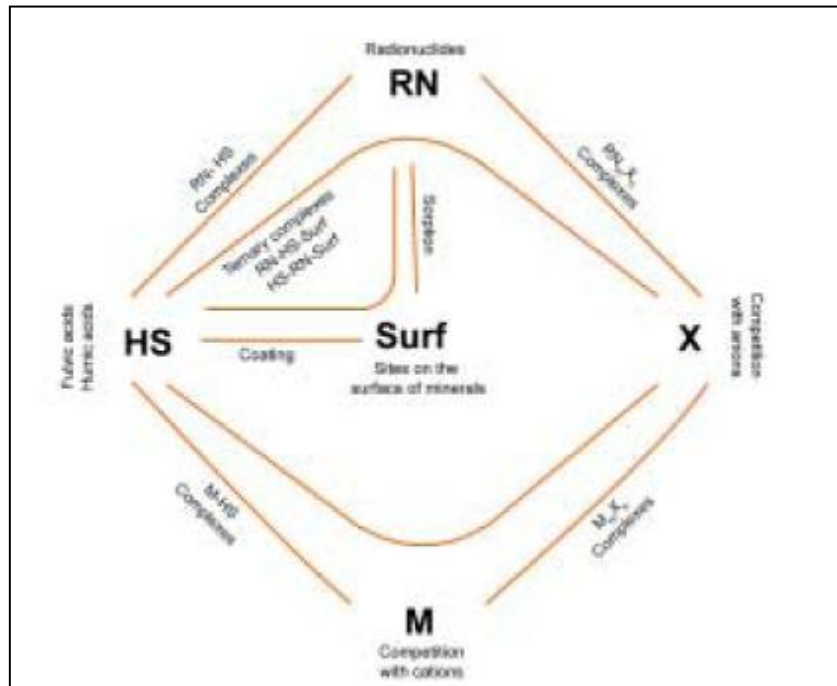
La capacità di ritenzione di una barriera naturale dipende dalla natura dei processi che governano e dalla capacità dei materiali naturali di trattenere i radionuclidi. Ad esempio, se la precipitazione è il processo dominante di ritenzione, la capacità riducente della barriera naturale determinerà la capacità complessiva di ritenzione; se l'assorbimento è il processo coinvolto, quindi la concentrazione di assorbimento totale del sito sarà il fattore chiave; se la soluzione solida/co-precipitazione è il processo dominante, si deve guardare al contenuto di calcite e ad altri minerali secondari [14].

**Tabella 8.2: Processi chimici e fisici che portano a una possibile ritenzione dei radionuclidi [14].**

Group	Process
Process related to migration	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Ion exclusion</li> <li>▪ Molecular filtration</li> </ul>
Fast and reversible sorption	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Physisorption like Van der Waal's sorption</li> <li>▪ Surface complexation on functional groups of clay including: linear sorption, non-linear sorption, ion exchange<sup>b)</sup>, ligand exchange, ...</li> </ul>
Immobilisation processes <sup>a)</sup>	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Formation of solid-solution</li> <li>▪ Surface precipitation</li> <li>▪ Precipitation</li> <li>▪ Phase transformation (aging or weathering)</li> </ul>
Processes believed to have very slow kinetics	<ul style="list-style-type: none"> <li>▪ Isotopic fractionation</li> </ul>
a)	Processes by which solutes become incorporated within immobile solid phases over timescales of relevance to safety assessments.
b)	Cation Exchange Capacity (CEC): $24 \pm 3$ meq/100 g of rock for strontium and $23 \pm 3$ meq/100g of rock for calcium.

A causa del suo alto contenuto nell'argilla, la materia organica può indurre interazioni specifiche che influenzano il comportamento di migrazione complessivo dei radionuclidi. Le diverse interazioni eventualmente coinvolte sono rappresentate schematicamente in figura 8.1.

**Figura 8.1: rappresentazione schematica delle interazioni potenzialmente coinvolte nella materia organica che possono influenzare il comportamento di migrazione dei radionuclidi.**



### 8.7 Studio dell'omogeneità dell'argilla

Varie ricerche sono state fatte per valutare l'omogeneità verticale dell'argilla rispetto alle sue proprietà di migrazione. Test di migrazione con HTO,  $^{131}\text{I}^-$  e  $\text{H}_2\text{CO}_3^-$  sono stati eseguiti su campioni verticali. I parametri esaminati in questi studi sono il coefficiente di diffusione apparente ( $D_{app}$ ) e il prodotto  $\eta R$  delle specie che diffondono ( $\eta$ : porosità accessibile alla diffusione, R: fattore di ritardo). L'argilla può pertanto essere considerata omogenea in termini dei parametri di migrazione di traccianti conservativi (non rallentati).

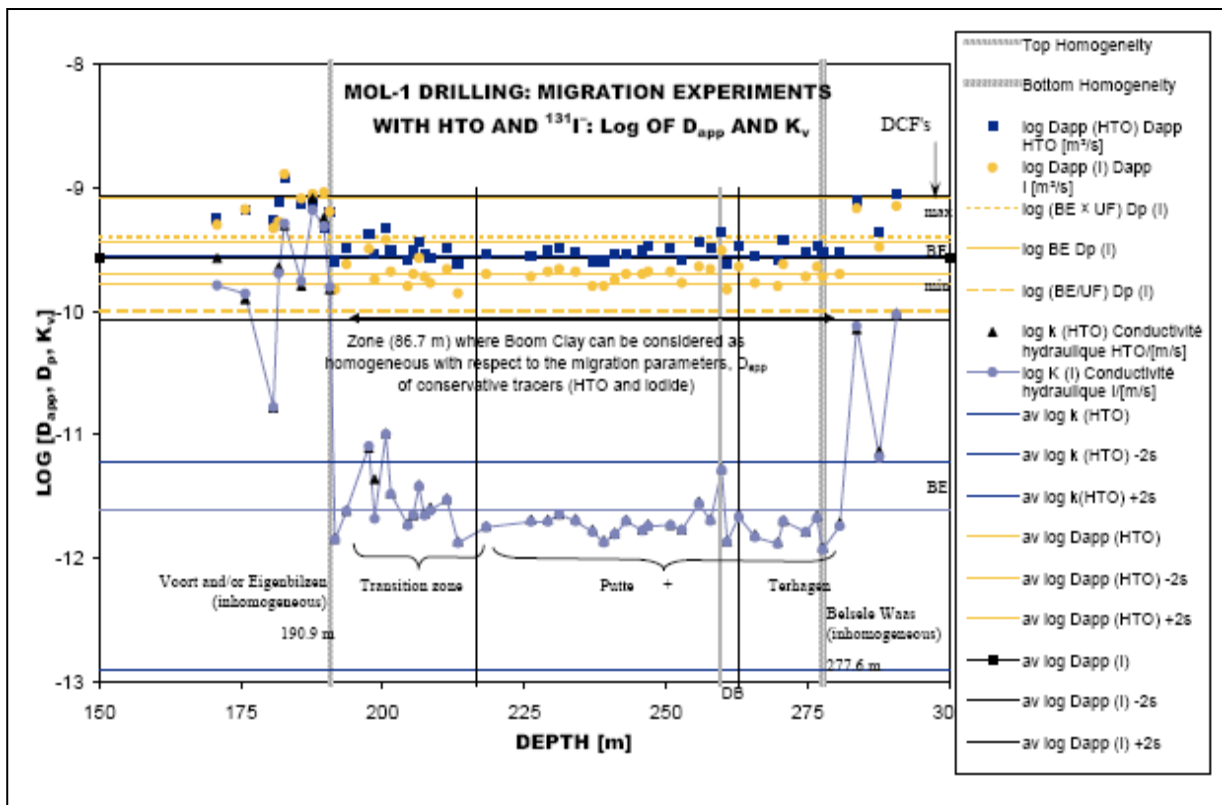


Figura 8.2: test di migrazione su HTO e I presso il pozzo di Mol I (Belgio).

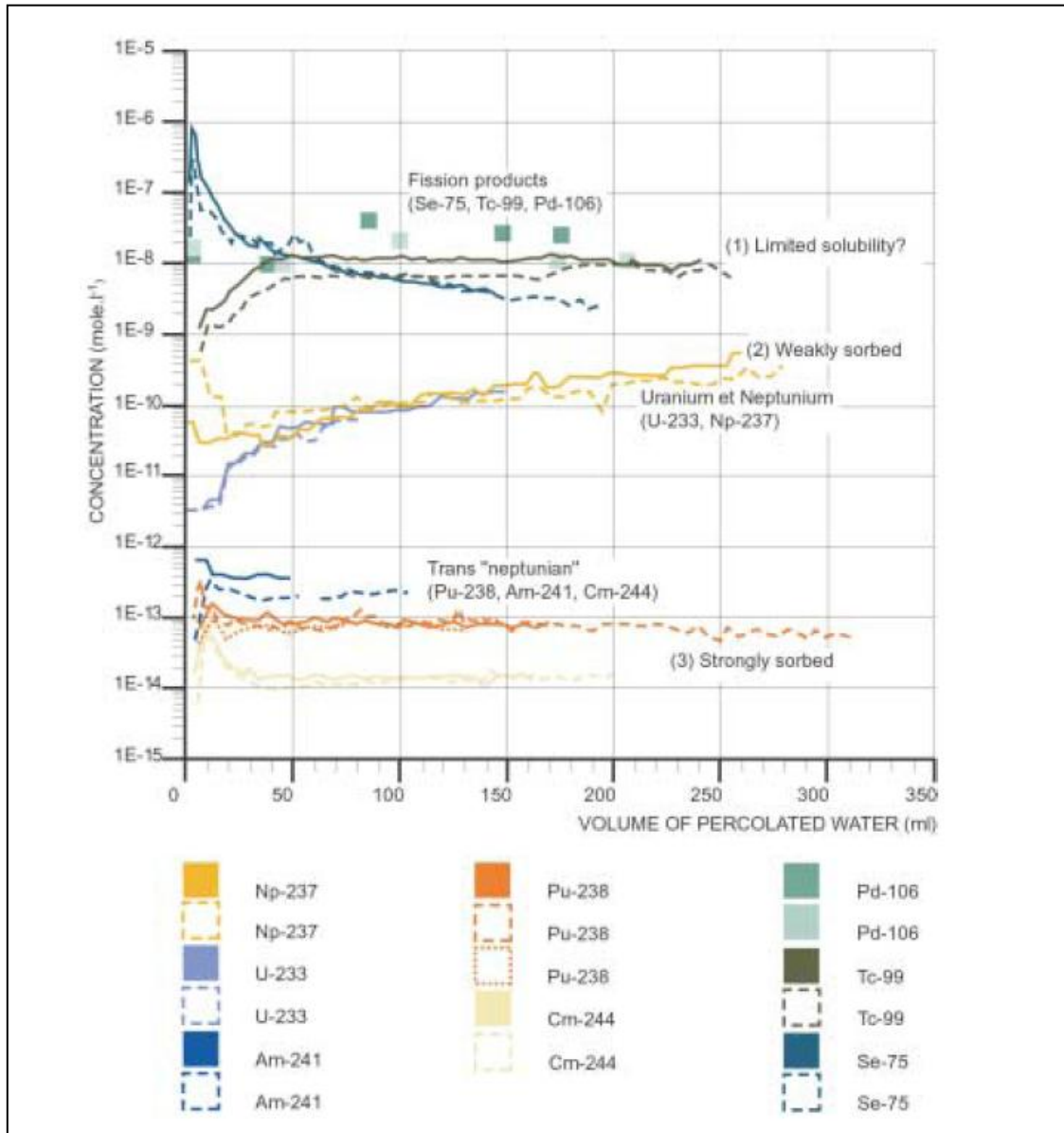
## 8.8 Comportamento degli elementi in argilla

Le concentrazioni misurate nelle soluzioni di percolato sono state rappresentate in un grafico per gli elementi studiati ad oggi. (Figura 8.3).

Essi appaiono raggruppati in tre distinte categorie:

1. prodotti di fissione (Se-Tc-Pd): questi elementi sono apparentemente caratterizzati da un basso assorbimento. La loro concentrazione in soluzione corrisponde a un limite di solubilità nella regione di  $10^{-8}$  M;
2. attinidi debolmente assorbiti (An) (U-Np): dati recentemente acquisiti suggeriscono che questi elementi potrebbero essere presenti nelle argille in forma neutra  $(An(OH)_4)$  e/o complessi di carbonato caricati negativamente che terrebbero conto per il loro basso assorbimento. Il livello di concentrazione di questi elementi in soluzione è approssimativamente  $10^{-10}$ - $10^{-9}$  M. lo studio dell'uranio è affrontato con serie difficoltà. A livello sperimentale, negli esperimenti condotti finora l'introduzione di un termine di sorgente non in equilibrio termodinamico con l'ambiente di argilla (problemi con il controllo dello stato di valenza dell'uranio) complica qualsiasi interpretazione dei risultati. Per ciò che concerne i codici di calcolo, i database termodinamici disponibili presentano carenze e incoerenze tra i valori riportati che riducono fortemente il significato di questi calcoli (e quindi la loro applicabilità), con l'uranio tetravalente che è particolarmente importante in questo caso;

3. Attinidi trivalenti fortemente assorbiti (Am-Cm) e plutonio trivalente o tetravalente: per questi elementi, le interazioni con la materia organica dominano e determinano il loro comportamento. Le concentrazioni misurate nelle soluzioni di percolato variano tra  $10^{-14}$  e  $10^{-12}$  M.



**Figura 8.3: Concentrazioni di radionuclidi nelle soluzioni di percolazione in funzione del tempo**

Il livello di incertezza inerente nella determinazione dei parametri di migrazione varia considerevolmente con la natura degli elementi studiati:

1. elementi non redox sensibili: iodio, bicarbonato, cesio: riguardo a questi elementi, debolmente o non assorbiti ( $\text{HCO}_3^-$ ,  $\text{I}^-$ ) e fortemente assorbiti ( $\text{Cs}^+$ ), determinare i parametri di migrazione non è particolarmente problematico. La speciazione di questi elementi nell'argilla è chiaramente definita dalla loro chimica. Essi sono introdotti all'inizio degli esperimenti in una forma che è in equilibrio termodinamico con l'ambiente. I modelli usati per interpretare i risultati sperimentali sono perfettamente utilizzabili in questo caso,

essendo la loro utilizzabilità dimostrata per mezzo di test in situ su larga scala ( $I^-$ , HTO) e test di percolazione a lungo termine ( $Cs^+$ ). Il livello di confidenza che può essere posto nei valori scelti per il cesio e lo iodio è considerato essere soddisfacente. Incertezza rimane per le specie  $HCO_3^-$  a proposito del valore del fattore di ritardo R. la difficoltà in questo caso è il fatto che gli ioni bicarbonato sono molto debolmente rallentati ( $R \approx 1.5$ ), e ulteriori test saranno condotti in laboratori di superficie.

2. Elementi fortemente assorbiti e/o elementi redox sensibili (Se, Tc, U, Np, Pu, Am, Cm): interpretare i test di migrazione per questi elementi richiede un numero di difficoltà dovute ai seguenti punti:
  - La misura della validità dei modelli di migrazione: codici sono stati specificamente sviluppati da parte di SCK-CEN per determinare, da dati sperimentali, i fattori di ritardo ( $\eta R$ ) e i coefficienti di diffusione ( $D_{app}$ ) sui quali tra le altre cose le valutazioni di sicurezza sono basate. I processi considerati in questi modelli sono diffusione e avvezione. I modelli assumono anche assorbimento lineare e irreversibile. Questi codici sono prevalentemente adatti a elementi che, dal punto di vista delle condizioni sperimentali che si incontrano, sono caratterizzati da un ben definito stato di valenza e alta solubilità. Gli elementi che sono redox sensibili sono ridotti a una forma che è generalmente meno solubile e precipitano, implicando che i fenomeni di precipitazione durante la migrazione attraverso il nucleo di argilla cambino seriamente la soluzione analitica delle equazioni fondamentali. Conseguentemente, i codici esistenti dovranno essere adattati. Un'interpretazione rigorosa dei dati sperimentali richiede che, così come i processi di migrazione, dovrebbero anche essere messi in conto processi chimici di ossidoriduzione (aspetti cinetici), precipitazioni di fasi insolubili e, se necessario, processi di assorbimento irreversibile. Per questi elementi, i fenomeni di assorbimento e quindi il valore di  $\eta R$  sono significativamente sovrastimati sulla base del modello. Con riguardo ai radionuclidi la cui migrazione è correlata alla migrazione di materia organica (Am-Cm), altri specifici aspetti devono essere presi in considerazione;
  - la limitazione degli esperimenti eseguiti: solo i test di diffusione pura sono stati eseguiti in alcuni casi. Questi non possono essere usati per determinare il parametro  $\eta R$ ;
3. la migrazione di un elemento che esiste sotto diverse specie in soluzione: in certi casi non è impossibile che diverse specie mobile di un elemento esistano e siano caratterizzate da specifici parametri di migrazione. Questo aspetto deve essere ulteriormente investigato e la tecnica di elettromigrazione dovrebbe essere in grado di fornire risposte decisive in questo campo. Inoltre, un picco è generalmente osservato all'inizio dei test, probabilmente dovuto a una specie non in equilibrio chimico con l'ambiente. Questo punto dovrà essere confermato. Dovrà anche essere dimostrato che un equilibrio sarà raggiunto entro il tempo impiegato per migrare attraverso i primi pochi metri dell'argilla.

## 8.8 Conoscenza dei meccanismi di base-modellizzazione geochimica

Lo studio dei meccanismi di assorbimento di radionuclide è a uno stadio preliminare.

La principale priorità dei programmi condotti finora è stata determinare -per gli elementi critici e potenzialmente critici- i parametri di migrazione ( $\eta R$  e  $D_{app}$ ) necessari per valutazioni di sicurezza.

Il fattore di ritardo  $R$  è direttamente correlato al coefficiente di distribuzione  $K_d$ .

I valori usati devono essere supportati da conoscenza sufficiente dei meccanismi di base.

Questa conoscenza è uno dei maggiori elementi che controllano il grado di confidenza che può essere posta nei parametri scelti (*confidence building*), e questa visione è condivisa in maniera unanime dalla comunità scientifica internazionale che si confronta con questo problema [61, 62].

Il modello geochimico di argilla è uno dei principali obiettivi nel medio termine. Questo programma ambizioso implica la ricerca in un gran numero di campi correlati alla speciazione dei radionuclidi in soluzione, la caratterizzazione di fasi solide e in particolare l'identificazione dei siti di assorbimento etc.

### 8.9 Validazione dei dati

Sarebbe interessante confrontare il coefficiente di diffusione in soluzione acquosa calcolato dal coefficiente di diffusione molecolare in argilla ( $D_p$ ) con quelli riportati in letteratura.

Questo esercizio è reso possibile dal fatto che  $D_p$  non dipende dal fattore di ritardo ma dalla tortuosità del mezzo attraverso il fattore geometrico.

Questo esercizio assume che la speciazione dei radionuclidi sia identificata.

Nelle valutazioni di sicurezza, uno degli approcci adesso considerati per certi elementi è l'uso di un flusso costante corrispondente alle concentrazioni mobili misurate nelle soluzioni di percolazione. La determinazione indipendente di queste concentrazioni mobili è raccomandata.

### 8.10 Ruolo della materia organica

I modelli che sono attualmente usati non considerano il comportamento colloidale della materia organica (ultrafiltrazione, capacità di ritenzione dell'argilla) [64].

Rimangono incertezze circa i processi di riarrangiamento per aggregazione delle molecole più piccole o rottura delle più grandi.

Negli esperimenti di migrazione con materia organica etichettata in contatto con  $^{241}\text{Am}$ , la concentrazione di americio nelle soluzioni all'uscita delle colonne dopo una rottura rapida iniziale varia tra  $10^{-12}$  e  $5 \cdot 10^{-12}$  mol  $\text{L}^{-1}$  a seconda delle frazioni organiche considerate [6, 36, 65]. Si ricorderà che i valori riportati per i test di percolazione (filtro impregnato con americio smaltito tra due strati di argilla) sono nella regione di  $10^{-14}$ - $10^{-13}$  mol $\cdot\text{L}^{-1}$ .

Questi dati mostrano che il termine di sorgente può influenzare i risultati, almeno entro i limiti delle condizioni di test applicate. Le seguenti teorie sono state elaborate per tenere conto di questo comportamento. Nel primo caso, l'americio è molto probabilmente introdotto in soluzione nella forma complessata  $^{14}\text{C-OM-}^{241}\text{Am}$ . Mentre la maggior parte dell'americio è fortemente assorbito nella fase solida, una piccola frazione mascherata dalla materia organica in soluzione è

mobile (Figura 8.4). Questa frazione è caratterizzata da una migrazione colloidale specifica della materia organica.

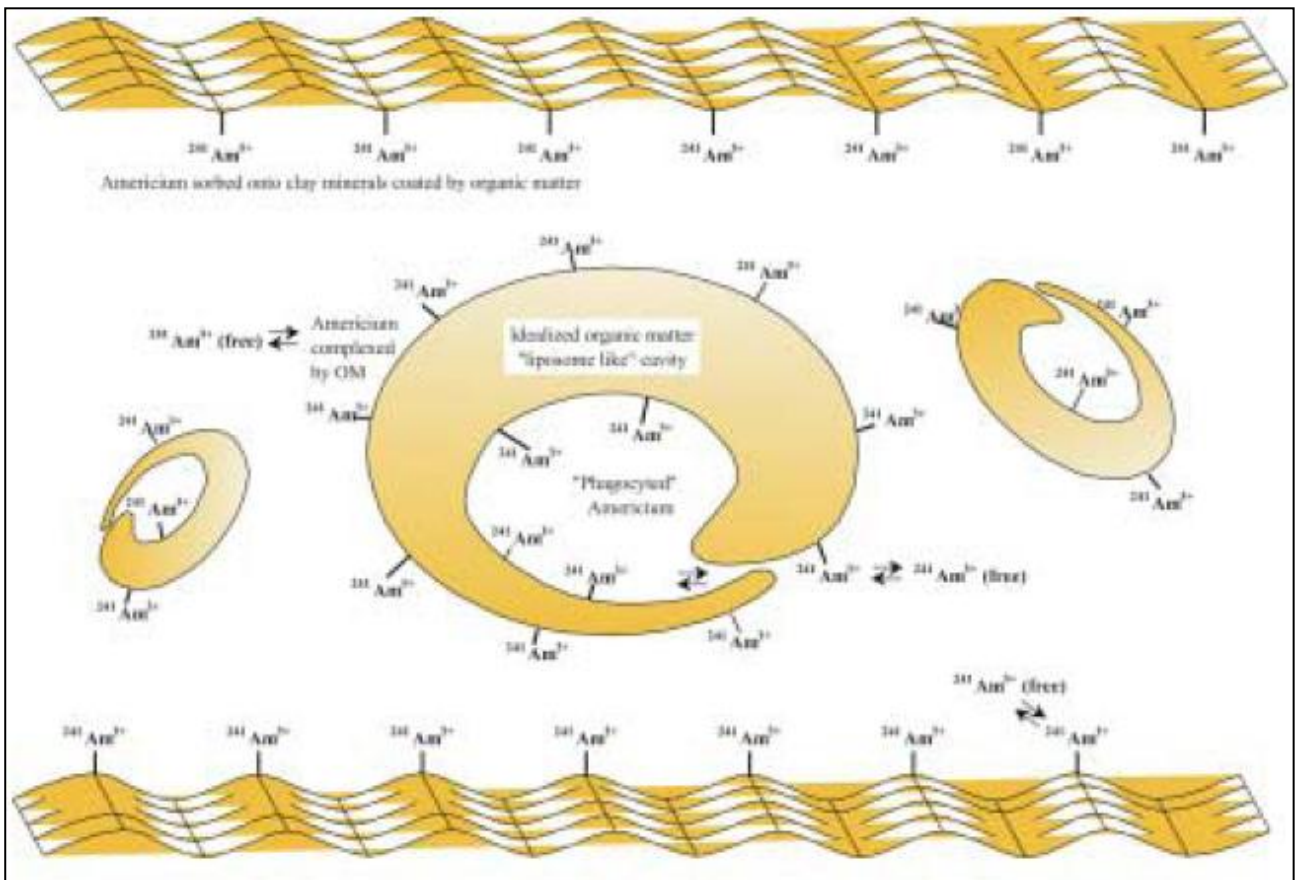
L'americio adesso intrappolato nella materia organica ("fagocitata") non può più interagire con la componente organica immobile alla superficie dell'argilla. Il comportamento dell'americio non può pertanto essere descritto in termini di equilibrio termodinamico.

Durante la percolazione (test con doppi traccianti), l'americio è costantemente lisciviato dalla frazione fortemente assorbita alla frazione mobile [58].

Questo trasferimento non può essere stimato al tempo presente a causa di una mancanza di dati. Nel secondo tipo di esperimento di percolazione, l'americio è precipitato e/o assorbito sull'argilla all'inizio.

Durante la percolazione, l'americio gradualmente ritorna in soluzione. Differenze nella cinetica dei meccanismi coinvolti terrebbe conto delle differenze nella concentrazione osservate tra i due tipi di esperimenti.

Sarà necessario mostrare che, in tutti i casi, un regime stazionario sarà raggiunto al tempo necessario per migrare attraverso i primi pochi metri di argilla e che la concentrazione mobile dell'americio sarà effettivamente  $10^{-14}$  -  $10^{-13}$  mol L<sup>-1</sup>.



**Figura 8.4: Americio mascherato da materia organica.**

### 8.11 Elettromigrazione

Ci vogliono parecchi anni per condurre esperimenti con elementi fortemente assorbiti, e l'esecuzione di parecchi cicli necessari per confermare i risultati e rivelare possibili errori nella progettazione degli esperimenti implicherebbe perciò una lunghezza di tempo proibitiva.

Questo tempo potrebbe ridursi significativamente forzando la migrazione dei radionuclidi da parte dell'applicazione di un campo elettrico. Uno studio in questo campo è stato recentemente iniziato ed è attualmente in corso. I risultati ottenuti finora dimostrano l'applicabilità di questo metodo [13,66, 67, 68].

Inoltre dal punto di vista della garanzia di qualità, determinare i parametri di migrazione attraverso diversi metodi è essenziale per la validazione dei dati.

### 8.12 Valori scelti per la modellizzazione del campo lontano

I valori di solubilità per i radionuclide in argilla sono mostrati in Tabella 8.3 [44,69].

**Tabella 8.3: Limiti di solubilità (best estimates) degli elementi in argilla.**

Element	Best estimate [mol.L <sup>-1</sup> ]	Min. [mol.L <sup>-1</sup> ]	Max. [mol.L <sup>-1</sup> ]	Type of statistical distribution
Ni	1 10 <sup>-3</sup>	1 10 <sup>-4</sup>	1 10 <sup>-1</sup>	triangular log
Se	5.5 10 <sup>-8</sup>	1 10 <sup>-9</sup>	3 10 <sup>-6</sup>	uniform log
Zr	1 10 <sup>-6</sup>	1 10 <sup>-9</sup>	1 10 <sup>-3</sup>	uniform log
Nb	3.2 10 <sup>-6</sup>	1 10 <sup>-8</sup>	1 10 <sup>-3</sup>	uniform log
Tc	3 10 <sup>-8</sup>	4 10 <sup>-9</sup>	5 10 <sup>-8</sup>	triangular log
Pd	1 10 <sup>-7</sup>	1 10 <sup>-9</sup>	1 10 <sup>-5</sup>	uniform log
Sn	5.5 10 <sup>-7</sup>	3 10 <sup>-8</sup>	1 10 <sup>-5</sup>	uniform log
Sm	2 10 <sup>-6</sup>	5 10 <sup>-8</sup>	5 10 <sup>-6</sup>	triangular log
Ra	1 10 <sup>-9</sup>	1 10 <sup>-10</sup>	2 10 <sup>-5</sup>	triangular log
Ac	2 10 <sup>-6</sup>	5 10 <sup>-8</sup>	5 10 <sup>-6</sup>	triangular log
Th	5 10 <sup>-7</sup>	1 10 <sup>-10</sup>	1 10 <sup>-6</sup>	triangular log
Pa	1 10 <sup>-5</sup>	5 10 <sup>-11</sup>	2 10 <sup>-5</sup>	triangular log
U	3.2 10 <sup>-8</sup>	1 10 <sup>-10</sup>	1 10 <sup>-5</sup>	uniform log
Np	1 10 <sup>-6</sup>	1 10 <sup>-10</sup>	1 10 <sup>-5</sup>	triangular log
Pu	5 10 <sup>-7</sup>	1 10 <sup>-9</sup>	5 10 <sup>-5</sup>	triangular log
Am	2 10 <sup>-6</sup>	5 10 <sup>-8</sup>	5 10 <sup>-6</sup>	triangular log
Cm	2 10 <sup>-6</sup>	5 10 <sup>-8</sup>	5 10 <sup>-6</sup>	triangular log

### 8.13 Parametri di migrazione e solubilità operativa

Tre insiemi di dati sono stati scelti per i parametri di migrazione usati nelle valutazioni di sicurezza [44, 69]. Nonostante il progresso significativo ottenuto nella comprensione dei meccanismi di migrazione in argilla, è ancora troppo presto per creare un singolo database di riferimento, e ulteriore ricerca è necessaria per confermare questi risultati.



L'aggiornamento degli insiemi di dati riflette il progresso fatto e può essere sintetizzato come segue:

*Set 1:* a causa della confusione tra i fenomeni di assorbimento e di precipitazione, si è ritenuto fermamente che gli elementi Se, Tc, U, Np fossero fortemente assorbiti;

*Set 2:* il fattore di ritardo per selenio e tecnezio è preso pari a 1.

Per il tecnezio, è noto che la concentrazione alla sorgente, dopo che si sono stabilizzate le condizioni di equilibrio ( $C_0$ ) nel nucleo di argilla è uguale alla concentrazione misurata nel percolato ( $C_{\text{percol}}$ ) e ha lo stesso ordine di grandezza della sua solubilità ( $S_{\text{ol}}$ ). Dato che  $C_0 \approx C_{\text{percol}} \approx S_{\text{ol}}$ , si conclude che  $R = 1$ . I dati disponibili per il selenio indicano che un comportamento confrontabile con quello del tecnezio (nessun assorbimento sull'argilla);

*Set 2':* questa seconda revisione segue la nozione di solubilità operativa. Ciò è inteso per simulare la migrazione di una piccola frazione mobile per gli elementi trivalenti (Sm, Ac, Am, Cm) e il plutonio tetravalente o trivalente, che è lisciviato continuamente a circa  $1 \cdot 10^{-13} \text{ mol} \cdot \text{L}^{-1}$  con nessun rallentamento apparente ( $R = 1$ ).

In questo *set 2'*, l'assorbimento dell'uranio e del nettunio è stato anche rivisto verso il basso ( $R = 40$ ). U e Np non assorbirebbero niente più che la silice disciolta ( $\text{Si}(\text{OH})_4$ ) nell'acqua interstiziale.

La solubilità operativa ( $S_{\text{op}}$ ) non ha niente a che fare con la nozione convenzionale di solubilità ( $S_{\text{ol}}$ ) come definita in termini termodinamici. Si inferisce da valori di concentrazioni misurate nelle soluzioni di percolazione all'uscita dalle colonne, e si assume che rappresenti la frazione mobile non rallentata dell'elemento considerato. Per calcolare la migrazione di questi elementi in argilla, postuliamo prima una concentrazione nella soluzione uguale alla solubilità operativa, e secondo un fattore di rallentamento  $R$  di 1.

Si sa abbastanza circa gli attinidi trivalenti e lantanidi (Ac, Am, Cm, Sm) per giustificare l'approccio cauto basato sulla solubilità operativa [58]. È noto il fatto che la maggior parte di questi elementi si assorbono molto fortemente sulla superficie dell'argilla (assorbimento per complessazione superficiale sulla materia organica associate con lo scheletro di argilla) e ciò reduce grandemente la loro concentrazione in soluzione.

Solo una piccola frazione è mobile. Si assume conservativamente che le specie mobili mascherate dalla materia organica in soluzione trovano difficoltà a interagire con la componente organica immobile sulla superficie dell'argilla. Questo approccio deve essere usato con attenzione per il plutonio in ogni caso (ancora non si sa abbastanza circa il suo comportamento così come i meccanismi non sono ancora risolti).

Uranio e nettunio sono gli elementi al cui proposito vi è la maggior incertezza. Conservativamente, il coefficiente di diffusione molecolare ( $D_p$ ) uguale a quelli della materia organica mobile e dell'acqua triziata rispettivamente (*Set 2*) sono assegnati a Sm-Ac-Am-Cm-Pu e U-Np.

I tre insiemi dei parametri di migrazione scelti sono mostrati in Tabella 8.4 [44, 69].

**Tabella 8.4: Parametri di migrazione scelti da SCK nel caso di Mol I (Belgio).**

Element	Set 1				Set 2				Set 2'			
	Sol. limit (mol/l)	$\eta$ (—)	$D_p$ (m <sup>2</sup> /s)	R (—)	Sol. limit (mol/l)	$\eta$ (—)	$D_p$ (m <sup>2</sup> /s)	R (—)	Op. sol. l. (mol/l)	$\eta$ (—)	$D_p$ (m <sup>2</sup> /s)	R (—)
C	—	0.12	1.2 E-10	1	—	0.12	1.2 E-10	1				
Cl	—	0.12	2.0 E-10	1	—	0.12	2.0 E-10	1				
Ca	—	0.30	2.0 E-10	20	—	0.30	2.0 E-10	20				
Ni	1.0 E-03	0.30	2.1 E-10	50	1.0 E-03	0.30	2.0 E-10	50				
Se	1.5 E-08	0.10	2.0 E-10	300	5.5 E-08	0.13	2.0 E-10	1				
Rb	—	0.30	2.0 E-10	200	—	0.30	2.0 E-10	200				
Sr	—	0.30	2.0 E-10	14	—	0.30	2.0 E-10	14				
Zr	6.0 E-07	0.17	2.0 E-10	400	1.0 E-06	0.30	2.0 E-10	400				
Nb	5.0 E-04	0.17	2.0 E-10	50	3.2 E-06	0.30	2.0 E-10	50				
Mo	—	0.13	2.0 E-10	20	—	0.30	2.0 E-10	20				
Tc	3.0 E-08	0.30	2.0 E-10	2 000	3.0 E-08	0.30	2.0 E-10	1				
Pd	2.0 E-08	0.17	2.0 E-10	20	1.0 E-07	0.30	2.0 E-10	20				
Ag	—	0.30	2.0 E-10	300	—	0.30	2.0 E-10	300				
Sn	5.0 E-06	0.17	2.0 E-10	20	5.5 E-07	0.30	2.0 E-10	20				
I	—	0.12	2.0 E-10	1	—	0.12	2.0 E-10	1				
Cs	—	0.30	3.6 E-10	3 600	—	0.30	3.6 E-10	3 600				
Sm	1.0 E-05	0.13	2.0 E-10	300	2.0 E-06	0.30	2.0 E-10	300	1.0 E-13	0.13	5.0 E-11	1
Ra	5.0 E-09	0.30	2.0 E-10	50	1.0 E-09	0.30	2.0 E-10	50				
Ac	1.0 E-05	0.13	2.0 E-10	2 000	2.0 E-06	0.30	2.0 E-10	1 000	1.0 E-13	0.13	5.0 E-11	1
Th	5.0 E-07	0.17	2.0 E-10	500	5.0 E-07	0.30	2.0 E-10	500				
Pa	1.0 E-05	0.17	2.0 E-10	400	1.0 E-05	0.30	2.0 E-10	400				
U	1.0 E-04	0.10	2.0 E-10	300	3.2 E-08	0.30	2.0 E-10	300	1.0 E-09	0.30	2.0 E-10	40
Np	1.0 E-09	0.13	2.0 E-10	2 000	1.0 E-06	0.30	2.0 E-10	1 000	1.0 E-09	0.30	2.0 E-10	40
Pu	5.0 E-07	0.17	2.0 E-10	1 000	5.0 E-07	0.30	2.0 E-10	1 000	1.0 E-13	0.13	5.0 E-11	1
Am	2.0 E-06	0.13	2.0 E-10	2 000	2.0 E-06	0.30	2.0 E-10	1 000	1.0 E-13	0.13	5.0 E-11	1
Cm	1.0 E-05	0.13	2.0 E-10	1 000	2.0 E-06	0.30	2.0 E-10	1 000	1.0 E-13	0.13	5.0 E-11	1
SPA calculations (+ stochastic calculations)				Updating SPA calculations (+ HLW glass and hulls calculations)				Future SF calculations (+ HLW glass and hulls calculations)				

#### 8.14 Studi condotti nei laboratori di superficie

Programmi di ricerca nei laboratori di superficie si concentreranno sui seguenti argomenti:

- Determinazione dei parametri di migrazione dei radionuclide in argilla;
- Studio del comportamento dell'uranio: sforzi consistenti saranno dedicati a questo attinide data la sua potenziale importanza per lo smaltimento diretto del combustibile irraggiato da una parte e le molte incertezze e carenze che esistono nei dati fondamentali dall'altra;
- Studio dell'omogeneità dello strato di argilla attraverso il suo pieno spessore;
- Modellizzazione geochimica dell'argilla: questo è un compito che copre molte discipline (determinare la solubilità e la speciazione di radionuclidi, caratterizzare le fasi minerali e organica, studiare i meccanismi di assorbimento, fenomeni di osmosi etc.);
- Effetti della migrazione di fronti chimici generati dal campo vicino sulle proprietà di ritenzione di argilla (specificamente migrazione di un fronte alcalino generato dai materiali di riempimento a base cementizia);
- studi specifici sui parametri di migrazione nel materiale di riempimento, l'intrappolamento di <sup>129</sup>I nel campo vicino, l'accettabilità di waste in cellulosa, l'impatto di temperatura sulla

migrazione e determinazione dei parametri di migrazione nell'acquifero superiore (glaucosite).

La conoscenza della speciazione e della solubilità dei radionuclidi in argilla è fondamentale per molte ragioni. Il programma si articola su tre livelli: modellizzazione dei dati sperimentali da esperimenti di migrazione, modellizzazione dell'argilla (assorbimento) e validazione dei valori di solubilità usati nelle valutazioni di sicurezza.

La priorità è stata data logicamente agli elementi redox sensibili (scarsamente solubili nelle forme ridotte), cioè Se, Tc, Np, U e Pu.

Questo lavoro include sia aspetti sperimentali che teoretici (modellizzazione geochimica).

### **8.15 Effetti della migrazione di un fronte alcalino sulle proprietà dell'argilla**

nel progetto, la tendenza è a muoversi verso una matrice idraulica per il materiale di riempimento per il waste di livello medio (ILW). pertanto, così come il waste condizionato nel cemento, ammassi sostanziali di cemento sarebbero introdotti nel deposito. Questo scenario pone la questione della migrazione di un fronte alcalino nell'argilla. È perciò essenziale valutare l'impatto della diffusione di un fronte alcalino sulle proprietà dell'argilla in generale e sulle sue capacità di ritenzione di radionuclidi in particolare. Anche le caratteristiche geomeccaniche dell'argilla devono essere probabilmente modificate.

Ci saranno cambiamenti mineralogici (precipitazione di calcite, analcite etc.) che possono risultare in una riduzione della porosità totale e indurimento dell'argilla plastica. Uno degli obiettivi è sviluppare uno strumento (modello) che può essere usato per valutare l'evoluzione del sistema in situ su larga scala come funzione delle coordinate spaziali e temporali. Raggiungere questo scopo è necessariamente basato sulla sinergia tra sperimentazione e modellizzazione (collegando gli aspetti geochimici con quelli di migrazione) e in questo contesto i test in situ condotti nelle installazioni sotterranee di ricerca nell'ambito dei programmi europei (es. ECOCLAY II) sono fondamentali.

### **8.16 Effetti della migrazione di nitrato di sodio sulle proprietà dell'argilla**

Il nitrato di sodio associato con waste bitumato (ad es. EUROBITUM) dovrebbe essere smaltite in un deposito geologico profondo.

Gli ioni  $\text{Na}^+$  possono modificare le caratteristiche dell'argilla, mentre gli ioni  $\text{NO}_3^-$  possono influenzare la speciazione dei radionuclidi redox sensibili e quindi il loro comportamento nell'argilla.

Ciò riguarda principalmente Se, Tc, U, Np e Pu. Due fattori potrebbero essere decisivi in questo contesto: l'attenuazione del potere ossidante degli ioni di nitrato in un ambiente neutro e/o alcalino, e il fatto che l'argilla ha una certa capacità tampone redox ( $2 \text{ meq.g}^{-1}$ ) [73].

Il sodio nitrato molto solubile sarà completamente lisciviato entro i primi 20 000 anni[74] e quindi migrerà nel campo lontano. Gli ioni  $\text{Na}^+$  diffondono nell'argilla senza essere grandemente rallentati. Il comportamento delle argille è simile al comportamento dei sistemi colloidali, e un cambio nella chimica della soluzione interstiziale può avere un effetto significativo sul sistema. Specificamente, le argille sono molto sensibili alla forza ionica della soluzione che influisce sulle caratteristiche del doppio strato elettrico sulla superficie dei minerali (negativamente caricata). L'energia di interazione tra le particelle di argilla comprende due termini[75]:

- un termine di repulsione: questa è una funzione delle concentrazioni e valenza dei cationici in soluzione, della costante dielettrica del mezzo e del pH;
- un termine di attrazione: questa è essenzialmente una funzione della temperatura e della costante dielettrica del mezzo.

Un cambiamento di condizioni dentro l'argilla può causare fenomeni di flocculazione (collasso) e/o peptizzazione (rigonfiamento).

Il programma di ricerca si articola in quattro parti: modellizzazione della migrazione del sodio nitrato in argilla, influenza sulla migrazione dei radionuclidi, valutazione degli effetti degli ioni  $\text{Na}^+$  sulla struttura dell'argilla e studio dell'impatto potenziale degli ioni nitrato sull'attività microbica in argilla.

### **8.17 Influenza della materia organica**

Mentre il ruolo della materia organica è stato chiaramente identificato per gli attinidi trivalenti, la sua influenza sul comportamento di altri elementi ancora pone un numero di questioni. Il programma sarà esteso all'uranio, al nettunio, al plutonio, al selenio e al tecnezio (esperimenti a doppio tracciante). I seguenti punti saranno anche sviluppati:

- i modelli attualmente usati dovranno essere modificati per dare spazio al comportamento colloidale della materia organica (ultrafiltrazione, capacità di ritenzione dell'argilla);
- i processi di riarrangiamento per aggregazione delle molecole più piccole o rottura delle molecole più grandi devono essere studiati con maggior dettaglio.

La modellizzazione delle interazioni tra radionuclide e materia organica (mobile e immobile) richiede una miglior comprensione delle sue caratteristiche quali le densità totali di sito, il numero dei siti disponibili e le relative condizioni etc.

La ricerca sui meccanismi di assorbimento sarà introdotta da un lavoro sulla caratterizzazione della materia organica, specificamente della sua frazione immobile. Questi dati sono fondamentali per gli esercizi seguenti di modellizzazione. I programmi attuali hanno evidenziato certi fenomeni (particolarmente di tipo cinetico), la comprensione dei quali sarà decisiva per l'interpretazione dei risultati sperimentali. Questi aspetti saranno esaminati in uno studio approfondito.

### **8.18 Fenomeni di osmosi**

A seconda delle caratteristiche dei minerali e dalla composizione della soluzione interstiziale, vi sono esempi in letteratura dove l'argilla agisce come membrana osmotica verso certi soluti (micro-osmosi) [75, 76].

Questi fenomeni sono relativamente ben spiegati, soprattutto sulla base del principio di esclusione anionica (esclusione Donnan), e test preliminari sull'argilla sono attualmente in corso. Potrebbe essere consigliabile valutare gli effetti di questi fenomeni sulla migrazione di radionuclidi.

Nel caso particolare delle sabbie glauconitiche, nelle valutazioni di sicurezza un fattore di ritardo pari a 1 viene applicato conservativamente a tutti gli elementi.

### **8.19 Assorbimento di Iodio 129 nel campo vicino**

SCK-CEN ha eseguito due valutazioni di sicurezza sullo smaltimento diretto di combustibile irraggiato ( $T_{1/2} = 1.57 \cdot 10^7$  anni). Dovrebbe essere comunque evidenziato che per questo nuclide la dose efficace di un individuo del gruppo critico è sotto gli standard di sicurezza applicati. Poiché lo iodio è presente nelle acque interstiziali dell'argilla in forma di anione ( $I^-$ ), esso si diffonde senza essere ritardato.

Un programma di ricerca iniziato nel 1997 per indagare la ritenzione di iodio nel campo vicino (test con carbonio attivo quale I-accettore). Parallelamente a tale approccio sperimentale, uno studio bibliografico sarà effettuato per valutare le possibilità di ritenzione di iodio sui minerali noti per la loro stabilità su una scala temporale geologica, o di insolubilizzazione nel campo vicino (precipitazione, ad esempio come Cul etc.)

### **8.20 Accettabilità di waste in cellulosa**

Studi recenti hanno stabilito molto chiaramente che la degradazione di cellulose in ambiente alcalino e in condizioni anaerobiche è in grado di causare un aumento considerevole nella solubilità degli attinidi e una riduzione significativa nel loro assorbimento [79, 80, 81, 82, 83]. L'acido isosaccarinico (ISA), il principale prodotto della degradazione della cellulose che è generato in un mezzo alcalino e in condizioni anaerobiche, è stato identificato come l'agente primariamente responsabile per la complessazione del plutonio.

Un programma iniziato nel 1997 mira a valutare gli effetti che la degradazione della cellulosa potrebbe avere sul comportamento del plutonio e dell'americio nel campo lontano indisturbato. I risultati parziali che sono disponibili indicano che i prodotti di degradazione della cellulosa, specialmente ISA, hanno solo un impatto minore sulla speciazione dei radionuclidi nel campo lontano. Questo è mostrato da misure di solubilità sul plutonio e l'americio nelle acque interstiziali in argilla in presenza di ISA e prodotti di degradazione della cellulosa [84, 85].

### **8.21 Influenza della temperature sulla migrazione dei radionuclide (campi vicini e lontani)**

La presenza di rifiuti che emettono calore nel deposito (HLW) provocherà una salita temporanea della temperatura dell'ambiente circostante. Un test di migrazione su campioni del materiale di riempimento che sono stati previamente sottoposti a un ciclo termico deve essere eseguito con elementi tipici dei principali gruppi in termini del loro comportamento nell'argilla (test di

riferimento in bianco su campioni indisturbati saranno condotti in parallelo). Ci deve essere anche uno studio preliminare degli effetti termali sulle caratteristiche dell'argilla. In questo caso test di migrazione devono essere eseguiti con elementi non assorbiti o debolmente assorbiti ( $^{131}\text{I}^-$ , HTO e  $\text{H}_2^{14}\text{CO}_3^-$ ).

### 8.22 Modellizzazione dell'assorbimento

Si sviluppa nel modo seguente:

- Caratterizzazione dell'argilla:
  - Fase solida: identificazione e quantificazione dei siti coinvolti nei processi di assorbimento, precipitazione, co-precipitazione;
  - fase acquosa: composizione, speciazione dei radionuclidi in soluzione etc.;
- Identificazione dei processi chiave (meccanismi) e determinazione dei parametri correlati.
- Sviluppo di un modello geochimico e di un database utilizzabile per l'argilla (alta percentuale di materia organica) per tenere conto del comportamento dei radionuclide: uno dei benefici di tale modello sarebbe che esso include i cambiamenti geochimici nell'ambiente e valuta così le proprietà di ritenzione delle barriere naturali nel lungo termine.
- Validazione del modello attraverso il confronto delle previsioni teoriche con i risultati sperimentali indipendenti.

### 8.23 Conclusioni

I valori dei parametri di migrazione dei radionuclidi nell'argilla devono essere sottoposti a una revisione critica dettagliata basata non solo sui risultati ottenuti dai programmi condotti dagli operatori (es. SCK-CEN in Belgio) ma anche sui valori estrapolati dai dati riportati in letteratura.

Il processo di revisione culmina nella creazione di un database per ciascun elemento interessato. Questi parametri sono continuamente aggiornati all'arrivo di nuove informazioni da gestire.

Gli studi sulla caratterizzazione della materia organica e il suo impatto sulla migrazione di radionuclidi sono andati avanti, e alcuni dati fondamentali sono stati prodotti, specialmente in relazione agli attinidi trivalenti. Test aggiuntivi, molti dei quali sono attualmente in corso, sono stati effettuati con l'obiettivo di aumentare il numero di radionuclidi studiati.

Le tecniche di elettromigrazione vengono applicate sistematicamente a tutti gli elementi studiati come un controllo alternativo e indipendente dei metodi attuali. Questa tecnica dovrebbe rendere possibile eseguire più test con gli elementi assorbiti entro periodi di tempo significativamente più corti, e ciò migliorerà la statistica dei dati disponibili. Allo stesso tempo, studi aggiuntivi sono in corso in un gran numero di aree con l'obiettivo di assicurare un'interpretazione rigorosa dei risultati sperimentali.

Questa attività si riferisce alla materia organica,  $\text{HCO}_3^-$ , Se, Tc, U, Np e Am.

Dato l'attuale livello di conoscenza, le ipotesi più conservative sono sistematicamente applicate per questi elementi. Nuovi test di migrazione sono iniziati e sono attualmente in corso per i seguenti elementi: CH<sub>4</sub>, Pd, Pa, Pu e Cm.

Test di migrazione con HTO, <sup>131</sup>I<sup>-</sup> e H<sub>14</sub>CO<sub>3</sub><sup>-</sup> sono stati effettuati su campioni verticali presi sull'intero spessore dello strato di argilla durante le campagne di perforazione. Questi mostrano chiaramente che in termini di migrazione (parametri misurati: ηR, D<sub>app</sub>), l'argilla è caratterizzata da una buona omogeneità, almeno per le specie coinvolte nello studio.

Uno dei principali obiettivi perseguiti è lo sviluppo di un modello di assorbimento geochimico utilizzabile per l'argilla, e ciò richiede la caratterizzazione delle fasi solide e acquose e una conoscenza dei meccanismi di base sottesi ai processi di assorbimento e speciazione dei radionuclidi.

Una strategia di ricerca è stata definita e i primi programmi sono iniziati. Considerando l'estensione di questa attività significa che questo sarà un impegno a lungo termine. I valori dei parametri di migrazione scelti deve essere supportato da una conoscenza adeguata del sistema (*confidence building*).

In aggiunta a studi specifici sulla modellizzazione geochimica dell'argilla, nuovi campi di ricerca sono stati identificati e i relativi programmi definiti:

- studio della omogeneità verticale dell'argilla (elementi assorbiti);
- determinazione dei parametri di migrazione nell'acquifero (sabbie glauconitiche);
- studio delle possibilità per l'intrappolamento dello iodio nel campo vicino (I-accettori);
- studio della cinetica dei processi chiave (riduzione, precipitazione, assorbimento) attivi nei test di migrazione (adattamento dei modelli);
- studio dell'impatto della migrazione dei fronti chimici e/o specie complessanti generate dal campo vicino sulle proprietà di ritenzione dell'argilla (pennacchio alcalino, migrazione dei nitrati lisciviati dai packages, fronte di ossidazione);
- studio dei fenomeni di osmosi tra l'argilla e gli acquiferi sottostanti e sovrastanti.

## BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 8

- [1] Henrion P.N., Monsecour M., Synthesis report on transport of radionuclides in Boom Clay, State of the Art; SCK/CEN Report R-2863, 1990.
- [2] Apted M.J., Survey and review of near-field performance assessment. Annex to 'The Status of Near-Field Modelling', Proceedings of a Technical Workshop, Cadarache, France, 11-13 May 1993. NEA-OCDE.
- [3] De Preter P., De Cannière P., Moors H., Put M., In situ and laboratory experiments for the Boom Clay; in Migration of radionuclides in the geosphere, MIRAGE Project-Third Phase, Report EUR 16218 EN, p.77, 1995.
- [4] Griffault L., Merceron T., Mossmann J.R., Neerdael B., De Cannière P., Beaucaire C., Daumas S., Bianchi A., Christen R., Participation to the project ARCHIMEDE-ARGILE, Rapport Final, EEC Contract No. FI2WCT90- 0117, ANDRA, France, Report EUR 17454, 1996.
- [5] Dierckx A., Boom Clay in situ porewater chemistry; Report SCK/CEN BLG-734, 1997.
- [6] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Wang L., Aertsens M., Lolivier P., Put M., Fonteyne A., Van Gompel M., Ortiz L., Van Ravestyn L., Maes T., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactive waste; Tasks 1.2 to 5.2 & Operation and Maintenance of the URF/Tasks 2.1, 2.3, 2.4, 2.8.; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the First Semester of 1997. Contract CCHO-95/268 KNT 9094610, Report SCK/CEN R-3240, 1998.
- [7] De Cannière P., Moors H., Lolivier P., De Preter P., Put M., Laboratory and in situ migration experiments in the Boom Clay; EEC Contract No. FI2WCT90- 0039, Report EUR 16927, 1996.
- [8] Jolivet J.P., De la solution à l'oxyde; InterEditions. CNRS Editions, 1994.
- [9] Kim J., The chemical behaviour of transuranium elements and barrier functions in natural aquifer systems; in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVI, Mat.Res.Soc.Symp.Proc., 294, p.3-21, 1993.
- [10] Buffle J., Complexation reactions in aquatic systems- an analytical approach, John Wiley & Sons, 1988.
- [11] Baeyens B., Maes A., Cremers A., In situ physico-chemical characterization of Boom Clay; Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle; 6, p. 391, 1985.
- [12] Wei J., Van Iseghem P., Colloid formation during interaction of HLW glass with interstitial Clay water; in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX, Mat. Res. Soc. Proc., vol. 465, p. 269, 1997.
- [13] Dierckx A., Moors H., De Cannière P., Maes N., Put M., Migration of radionuclides; in Feasibility and Acceptability of Nuclear Waste Disposal in the Boom Clay Formation; SCK/CEN Report BLG-726, 1997 (Editor: A. Dierckx and V. Labiouse, Waste and Disposal Unit, SCK/CEN, Boeretang 200, B-2400 Mol).



- [14] Heath M., Immobilization, Conclusion of working group 4, geological evidence and theoretical bases for radionuclides retention, Workshop proceedings, Oskarshamn, Sweden, 7-9 May 2001.
- [15] Hummel W., Competition of other complexes: theoretical aspects; in Binding Models Concerning Natural Organic Substances in Performance Assessments, Proceedings of an NEA Workshop organized in co-operation with PSI, Zuzach, 14-16 September 1994; p.215-222, OECD Documents, ISBN 92-64-14527-3, 1995.
- [16] Neerdael B., Geological radwaste disposal in Belgium-research programme, review and objectives; in Geological Problems in Radioactive Waste Isolation, Second Worldwide Review, Edited by P.A. Witherspoon, LBNL-38915/UC-814, 1996.
- [17] Put M., Marivoet J., Volckaert G., Neerdael B., How performance assessment of a geological waste disposal in Clay has contributed to focus the radionuclide migration research; paper presented at Waste Management 97, Tucson, Arizona, March 2-6, 1997.
- [18] De Preter P., Put M., De Cannière P., Moors H., Migration of radionuclides in Boom Clay; State-of-the-Art Report, ONDRAF-NIRAS Report NIROND 92-07, 1992.
- [19] Put M., A unidirectional analytical model for the calculation of the migration of radionuclides in a porous geological medium; Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, Vol. 6, 361-390, 1985.
- [20] Henrion P.N., Put M., Van Gompel M., The influence of compaction on the diffusion of non-sorbed species in Boom Clay; Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, Vol. 16, p. 1, 1991.
- [21] De Preter P., Put M., De Regge P., Migration of radionuclides in Boom Clay. The interaction of safety assessment needs with experimental studies; Poster presented at the Migration 91 Conference.
- [22] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Wang L., Aertsens M., Lolivier P., Put M., Fonteyne A., Van Gompel M., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactive waste; Tasks 1.2 to 5.2 & Operation and Maintenance of the URF/Tasks 2.1,2.3, 2.4, 2.8; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the Second Semester of 1995. Contract CCHO- 95/268 KNT 9094610, Report SCK/CEN R-3088 Volume 2 (of 3), 1996.
- [23] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Wang L., Aertsens M., Lolivier M., Put M., Fonteyne M., Van Gompel M., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactive waste; Tasks 1.2 to 5.2 & Operation and Maintenance of the URF/ Tasks 2.1,2.3, 2.4, 2.8; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the First Semester of 1996. Contract CCHO-95/268 KNT 9094610, Repot SCK/CEN R-3135 Volume 2 (of 3), 1996.
- [24] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Wang L., Aertsens M., Lolivier P., Put M., Fonteyne A., Van Ravestyn L., Van Gompel M., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactive waste; Tasks 1.2 to 5.2 & Operation and Maintenance of the URF/ Tasks 2.1,2.3, 2.4,

2.8; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the Second Semester of 1996. Contract CCHO-95/268 KNT 9094610, Report SCK/CEN R-3139 Volume 2 (of 2), 1997.

[25] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Wang L., Aertsens M., Lolivier M., Put M., Fonteyne M., Van Gompel M., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactive waste; Tasks 1.2 to 4.6 & Operation and Maintenance of the URF/ Tasks 2.1,2.3, 2.4, 2.6, 2.8; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the Second Semester of 1997. Contract CCHO- 95/268 KNT 9094610, Report SCK/CEN R-3379, 1999.

[26] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Maes N., Wang L., Aertsens M., Put M., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactive waste; Tasks 2.1 to 4.6 & Operation and Maintenance of the URF/ Task 2.1; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the Second Semester of 1999.

[27] Cremers A., Maes A., Radionuclide partitioning in environmental systems: a critical analysis. In Application of Distribution Coefficients to Radiological Assessments Models; Eds. Sibley T.H. and Myttenaere C., Elsevier Applied Sciences, 1986.

[28] Elrashidi M.A., Adriano D.C., Workman S.M., Lindsay W.L., Chemical Equilibria of selenium in soils: a theoretical development; Soil Science, Vol. 144, p. 141, 1987.

[29] Baes C.F., Mesmer R.E., The hydrolysis of cations; Wiley-Interscience Publication, 1976.

[30] Maes A., personal communication, in ref. 21.

[31] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Maes N., Wang L., Aertsens M., Put M., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactivewaste; Tasks 2.1 to 4.6 & Operation and Maintenance of the URF/ Tasks 2.1, 2.8; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the First Semester of 1998. Contract CCHO-98/332 KNT 90 981042, Report SCK/CEN R-3380, 1999.

[32] Lieser K.H., Bauscher C.H., Technetium in the hydrosphere and in the geosphere; Radiochimica Acta, Vol. 42, p. 205, 1987.

[33] Aja S.U., Wood S.A., Williams-Jones A.E., The aqueous chemistry of Zr and the solubility of some Zr-bearing minerals; Applied Geochemistry, Vol.10, p. 603, 1996.

[34] Put M., Monsecour M., Fonteyne A., Mobility of the dissolved organic matter in the interstitial Boom Clay water; Radiochimica Acta, Vol. 58/59, p.315, 1992.

[35] Dierckx A., Aertsens M., De Cannière P., Moors H., Van Gompel M., Ravestyn L., Put M., Wang L., Maes A., Vancluysen J., Verdickt W., Warwick P., Hall A., Pashley V., Vanderlee J., Madé B., Transport of radionuclides due to complexation with organic matter in the Clay formations (TRANCOM-Clay); EC Contract FI4W-CT95-0013, Progress report covering the period January-December 1996, SCK/CEN Report R- 3142, 1997.

[36] Dierckx A., Aertsens M., De Cannière P., Moors H., Van Gompel M., Ravestyn L., Put M., Transport of radionuclides due to complexation with organic matter in the Boom Clay (TRANCOM-Clay); CEC Contract FI4WCHAPTER

- [37] Dierckx A., Aertsens M., De Cannière P., Moors H., Van Gompel M., Ravestyn L., Put M., Wang L., Maes A., Vancluysen J., Verdickt W., Warwick P., Hall A., Pashley V., Vanderlee J., Madé B., Transport of radionuclides due to complexation with organic matter in the Clay formations (TRANCOM-Clay); EC Contract FI4W-CT95-0013, Progress report covering the period January-June 1997, SCK/CEN Report R-3181, 1997.
- [38] Dierckx A., Hall A., De Cannière P., Warwick P., Put M., Stability of <sup>125</sup>I and <sup>14</sup>C labelled Boom Clay organic matter; *Radiochim.Acta*, 82, p. 379, 1998.
- [39] Kim J., Delakowitz B., Zeh P., Probst P., Lin T., Ehrlicher U., Ivanovich C., Longworth M., Hasler G., Gardiner S.E., Fritz M., Klotz P., Lazik D., Wolf M., Geyer S., Alexander S., Read J.L., Thomas J., Colloid migration in groundwaters: geochemical interactions of radionuclides with natural colloids; RCM 00394, Technical University of Munich, Germany, 1994.
- [40] Put M., Dierckx A., Aertsens M., De Cannière P., Mobility of the dissolved organic matter through intact Boom Clay cores; *Radiochim.Acta*, 82, p. 375, 1998.
- [41] Randall A., Warwick P., Carlsen L., Lassen P., Fundamental studies on the interactions of humic materials; CEC Contract N° FI2W/CT91/081, Final Report, Report EUR 16685 EN, 1996.
- [42] Pirlet V., The investigation of the neptunium complexes formed upon interaction of HLW glass and Boom Clay media. Progress Report I, October 1996 – June 1997; Report SCK/CEN R-3202, 1997.
- [43] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Maes N., Wang L., Aertsens M., Put M., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactive waste; Tasks 2.1 to 4.6 & Operation and Maintenance of the URF/ Task 2.11; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the First Semester of 1999. Contract CCHO-98/332 KNT 90 981042, SCK/CEN Report R-3422, 2000.
- [44] Marivoet, J., Volckaert G., Labat S., De Cannière P., Dierckx, A., Kursten B., Lemmens A., Lolivier P., Mallants D., Sneyers A., Valcke E., Wang L., Wemaere I., Values for the near field and clay parameters used in the performance assessment of the geological disposal of radioactive waste in the Boom Clay Formation at the Mol site; task 6.1, Volume 1, Report SCK-CEN R-3344, 1999
- [45] Yoshida H., Monsecour M., Basham I.R., Use of microscopic techniques in migration studies on Boom Clay; *Radiochimica Acta*, Vol. 52/53, p.133, 1991.
- [46] Brown P., Haworth A., Sharland S., Tweed C., HARPHRQ: a geochemical speciation program based on PHREEQE; Nirex Safety Studies Report NSS R.188, 1991.
- [47] Kim J., Chemical behaviour of transuranic elements in natural aquatic systems, in *Handbook on the physics and chemistry of the actinides*, Vol. 4, A.J. Freeman et C. Keller Eds, North-Holland, p. 567, 1986.

- [48] Chopin G.R., Allard B., Complexation of actinides with naturally occurring organics compounds. In Handbook on the physics and chemistry of the actinides. (Ed. Freeman and Keller) Elsevier Science Publishers B.V., 1985.
- [49] Czerwinski K.R., Rhee D.S., Scherbaum F., Buckau G., Kim J., Moulin V., Tits J., Laszak I., Moulin C., Decambox P., De Ruty O., Marquardt C., Franz C., Herrmann G., Trautmann N., Dierckx A., Vancluysen J., Maes A., Bidoglio G., Eliet V., Grenthe I., Effects of humic substances on the migration of radionuclides: complexation of actinides with humic substances; CEC Contract N°FI2W/CT91/083, Final Report, Report EUR 16843 EN, 1996.
- [50] Rai, D., Identification and modelling of carbonato complexes of tetravalent actinides; Paper presented at the Workshop on Solubility Actinides in relation with Nuclear Waste Matrices, SCK⊗CEN Mol, Belgium, May 20-21, 1999, SCK⊗CEN Report BLG 810, 1999.
- [51] Heath T.G., Ilet D.J., Tweed C., Williams S., Radionuclide solubilities in Boom Clay-Task 1 Report, AEA TECHNOLOGY, 1997.
- [52] Baker S., Baston G.M.N., Boulton K.A., Brownsword M., Ilett D.J., Pilkington N.J., Tweed C.J., Williams S.J., Radionuclide solubilities in Boom Clay – Phase II, Part 1: Interim Report, Report AEAT-5511, 1999.
- [53] Noynaert L., Volckaert G., De Cannière P., Meynendonckx P., Labat S., Beaufays R., Put M., Aertsens M., Fonteyne A., Vandevort F., The CERBERUS Project, Final Report, ONDRAF/NIRAS Report Nirond 97-03, 1997.
- [54] De Cannière P., Dierckx A., Moors H., Wang L., Aertsens M., Lolivier P., Put M., Fonteyne A., Van Gompel M., Geological disposal of conditioned high-level and long-lived radioactive waste; Tasks 1.2 to 5.2 & Operation and Maintenance of the URF/Task 2.8; Progress Report to NIRAS/ONDRAF for the First Semester of 1995. Contract CCHO-95/268 KNT 9094610, SCK⊗CEN Report R-3080 Volume 2 (of 3), 1995.
- [55] Van der Lee J., Chess – another speciation and surface complexation computer code. Technical report, HM/RD/93/39, Ecole des Mines de Paris, Centre 'Informatique Géologique', Laboratoire d'Hydrogéologie Mathématique, Fontainebleau, France.
- [56] Wang L., De Cannière P., Lolivier P., Zhou W., Interaction of radionuclides with Boom Clay components: toward a mechanistic model; in Feasibility and Acceptability of Nuclear Waste Disposal in the Boom Clay Formation; SCK⊗CEN Report BLG-726, 1997 (Editor: A. Dierckx and V. Labiouse, Waste and Disposal Unit, SCK⊗CEN, Boeretang 200, B-2400 Mol).
- [57] Dierckx A., Maes A., Henrion P., De Cannière P., Potentiometric titration of humic substances extracted from Boom Clay; in The Role of Humic Substances in the Ecosystems and in Environmental Protection, Editors Drozd J., Gonet S.S., Senesi N., Weber J., p. 573 (1997), Proceedings of the 8th Meeting of the International Humic Substances Society, Wroclaw, Poland, September 9-14, 1996.

- [58] Dierckx A., Put M., De Cannière P., Wang L., Maes N., Aertsens M., Maes A., Vancluysen J., Verdickt W., Gielen R., Christians M., Warwick P., Hall A., Van der Lee J., TRANCOM-CLAY, Transport of Radionuclides due to Complexation with Organic Matter in Clay formations, CEC Contract N° FI4W-CT95-0013, Final Report, SCK/CEN Report R-3388, 1999.
- [59] Panak P., Klenze R., Kim J., A study of ternary complexes of Cm(III) with humic acid and hydroxide or carbonate in neutral pH range by time-resolved Laser fluorescence spectroscopy; *Radiochimica Acta*, Vol. 74, p. 141, 1996.
- [60] Baker S., Baston G.M.N., Green A., Heath T.G., Pilkington N.J., Tweed C., Williams S.J., Radionuclides solubilities in Boom Clay – Task 2 and Task 3 report, AEA Technology Report AEAT-3313, 1998.
- [61] Altmann S., Bruno J., Using thermodynamic Sorption Models for Guiding Radioelement Distribution Coefficient (kd) Investigations, A Status Report,
- [62] Langmuir D., The use of laboratory adsorption data and models to predict radionuclide releases from a geological repository: a brief history; in *Scientific Basis for Nuclear Waste Management XX*, Mat. Res. Soc. Proc., Vol. 465, p. 769, 1997.
- [63] Volckaert G., De Cannière P., Wibin J., Marivoet J., Evaluation of the potential influence of organic complexation on the performance of a geological repository in clay; *Proceedings of a NEA Workshop on Binding models concerning natural organic substances in performance assessment*, Bad Zurzach, Switzerland, 14-16 Sept. 1994, p.33, 1995.
- [64] Dierckx A., De Cannière P., Put M., Aertsens M., Organic matter and migration; The Boom Clay Seminar, Alden Biezen, December 8-9, 1997, SCK/CEN report BLG-758, 1997.
- [65] Dierckx A., Put M., Maes N., De Cannière P., Moors H., Van Gompel M., Van Ravestyn L., Transport of radionuclides due to complexation with organic matter in the Boom Clay (TRANCOM-Clay); CEC Contract FI4WCT95- 0013, 5th Extensive progress report covering the period January-June 1998, SCK/CEN Report R-3261, 1998.
- [66] Moors H., Maes N., Dierckx A., De Cannière P., Put M., Determination of the apparent molecular diffusion coefficient of ionic species in water saturated porous media by electrokinetic amplification, paper presented at the 3rd European Engineering Geology Conference on Geo-engineering of Hazardous and Radioactive Waste Disposal, Newcastle upon Tyne, UK, 10- 14 September 1997; to be published in the proceedings of the conference as a special issue of *Engineering Geology* (ed. G.M. Reeves).
- [67] Maes N., Moors H., Dierckx A., De Cannière P., Put M., The assessment of electromigration as a new technique to study diffusion of radionuclides in clayey soils; *Journal of Contaminant Hydrology*, 36, p. 231, 1999.
- [68] Maes N., Moors H., De Cannière P., Aertsens M., Put M., Determination of the diffusion coefficient of ionic species in Boom Clay by electromigration: feasibility study; *Radiochim. Acta*, 82, p. 183, 1998.

- [69] Marivoet, J., Volckaert G., Labat S., De Cannière P., Dierckx A., Kursten B., Lemmens A., Lolivier P., Mallants D., Sneyers A., Valcke E., Wang L., Wemaere I., Values for the near field and clay parameters used in the performance assessment of the geological disposal of radioactive waste in the Boom Clay Formation at the Mol site; task 6.1, Volume 2, Report
- [70] Jefferies N.L., Tweed C., Wisbey S.J., The effects of changes in pH within a Clay surrounding a cementitious repository; in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI, Mat. Res. Soc. Proc., vol. 112, p. 43, 1988.
- [71] Haworth A., Sharland S.M., Tasker P.W., Tweed C., Evolution of the ground water chemistry around a nuclear waste repository; in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XI, Mat. Res. Soc. Proc., vol. 112, p. 425, 1988.
- [72] Savage D., Review of the potential effects of alkaline plume migration from a cementitious repository for radioactive waste, implications for performance assessment; Environment Agency (UK), R&D Technical Report P60, 1997.
- [73] Bayens B., Maes A., Cremers A., Aging effects in Boom Clay; Radioactive Waste Management and the Nuclear Fuel Cycle, Vol. 6 (3-4), p. 409, 1985.
- [74] Valcke E., Sneyers A., Van Iseghem P., The behaviour of bituminized waste products in the near field, Long-term performance studies, SCK·CEN Report R-3278, 1998.
- [75] Mitchell J.K., Fundamentals of soil behaviour; Ed. John Wiley & Sons, Second Edition, 1993.
- [76] Horseman S.T., Higgo J.J.W., Alexander J., Harrington J.F., Water, gas and solute movement through argillaceous media; OECD, NEA Report CC-96/1, 1996.
- [77] Marivoet J., Volckaert G., Sneyers A., Wibin J., First performance assessment of the disposal of spent fuel in a Clay layer; CEC Contract FI2W-CT90-0016, Luxembourg, Report EUR 16752, 1996.
- [78] Baudoin P., Gay D., Certes C., Serres C., Alonso J., Lührmann L., Martens K.-H., Dodd D., Marivoet J., Vieno T., Spent fuel performance assessment, SPA Project, EC Contract No FI4W-CT96-0018, Topical Reports 1-2-3, Report DOC XII/109/99-EN, 1999.
- [79] Greenfield B.F., Moreton A.D., Spindler M.W., Williams S.J., Woodwark D.R., The effects of the degradation of organic materials in the near field of a radioactive waste repository; in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XV, Mat. Res. Soc. Proc., Vol. 257, p. 299, 1992.
- [80] Greenfield B.F., Hurtus M.H., Pilkington N.J., Spindler M.W., Williams S.J., The degradation of cellulose in the near field of radioactive waste repository; in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVII, Mat. Res. Soc. Proc., Vol. 333, p. 705, 1994.
- [81] Greenfield B.F., Linklater C.M., Moreton A.D., Spindler M.W., Williams S.J., The effects of organic degradation products on actinide disposal; Actinide Processing: Methods and Materials, Edited by B. Mishra, TMS, p.289, 1994.
- [82] Greenfield B.F., Holtom G.J., Hurtus M.H., O' Kelly N., Pilkington N.J., Rosevear A., Spindler M.W., Williams S.J., The identification and degradation of isosaccharinic acid, a cellulose

degradation product; in Scientific Basis for Nuclear Waste Management XVIII, Mat. Res. Soc. Proc., Vol. 353-Part 2 , p. 1151, 1995.

[83] Van Loon L.R., Glaus, M.A., Experimental and theoretical studies on alkaline degradation of cellulose and its impact on the sorption of radionuclides; Paul Sherrer Institut, PSI Report No. 98-07, 1998.

[84] Valcke E., Sneyers A., Boven P., The effect of organic degradation products on the sorption of Pu and Am on Boom Clay, contract CCHO 95/268 and CCHO 90/123, task 1.5., progress report second semester of 1998, report SCK/CEN R-3363, 1999.

[85] Valcke E., Sneyers A., Van Iseghem P., The effect of cellulose degradation products on the solubility of Pu and Am in Boom Clay; Poster presented at ICEM'99, The 7th International Conference on Radioactive Waste Management and Environmental Remediation, Nagoya, 26-30 September 1999.

## **9. APPROCCIO FRANCESE PER LO STUDIO SUI FENOMENI DI TRASPORTO DEI RADIONUCLIDI IN MATRICE GRANITICA**

### **9.1 Introduzione**

Le valutazioni prestazionali del confinamento sono stati effettuati da ANDRA [1] su siti di granito generici. Le funzioni di sicurezza e l'evoluzione dei differenti componenti del deposito attraverso l'analisi delle FEPs , e rappresentano la più probabile evoluzione per mezzo dello "scenario evolutivo normale" (SEN) che tiene conto delle variabilità e delle indeterminazioni selezionando parametri e modelli conservativi.

I calcoli sono di tipo prestazionale e non di impatto in quanto non avendo individuato un sito preciso non avrebbe senso calcolare valutare la sicurezza del deposito sulla base dell'impatto in termini di dose che dipende da parametri specifici del sito.

Nell'ambito degli studi generici sul granito, per comprendere le funzioni individuali di ognuno dei componenti principali del deposito sono stati scelti indicatori intermedi mobili:

- relativi alle quantità di acqua passante attraverso vari parti del deposito usati per valutare le prestazioni della funzione sulla prevenzione della circolazione d'acqua;
- le quantità di radionuclidi in certi punti chiave del deposito nelle differenti fasi della sua evoluzione sono usate per valutare le prestazioni di confinamento dei vari componenti e contribuire a identificare gli elementi di robustezza globale.

### **9.2. Scelta della rappresentazione per i modelli di calcolo**

Per rappresentare il normale scenario evolutivo è importante ottenere risultati utilizzabili e un certo livello di rappresentatività dei fenomeni; ciò consiglia l'uso di modelli e parametri semplici per ridurre le ambiguità interpretative dovute alla complessità dei modelli ed assicura una rappresentazione del deposito che non sia troppo conservativa e dunque risultati più realistici. I modelli e i parametri usati, sebbene strettamente aderenti alla fenomenologia, conservano un certo margine di sicurezza per tener conto delle incertezze; se necessario, queste ultime possono essere stimate con più accuratezza mediante un'analisi di sensibilità.

#### **9.2.1 I modelli dei siti geologici**

Per poter utilizzare il lavoro di ricerca condotto su un sito generico è necessario definire le condizioni nel quale la formazione granitica è stata modellata. Allo scopo di tener conto della variabilità delle proprietà delle varie formazioni di granito queste ultime sono state classificate dal punto di vista tipologico in base alle caratteristiche d'interesse per la progettazione del deposito riscontrate ed alla loro variabilità. In Francia sono state individuate 3 tipologie principali di formazioni granitiche, indicate come M1, M2 e M3.



I modelli geologici sviluppati sono consistenti e riflettono con un certo grado di realismo il contesto geologico esaminato; essi non hanno lo scopo di confrontare possibili localizzazione di siti o dare una rappresentazione complessiva di tutte le configurazioni che possono essere trovate ma quello di esaminare il ruolo delle differenti caratteristiche sull'idrogeologia e il trasferimento di radionuclidi nell'analisi di sicurezza.

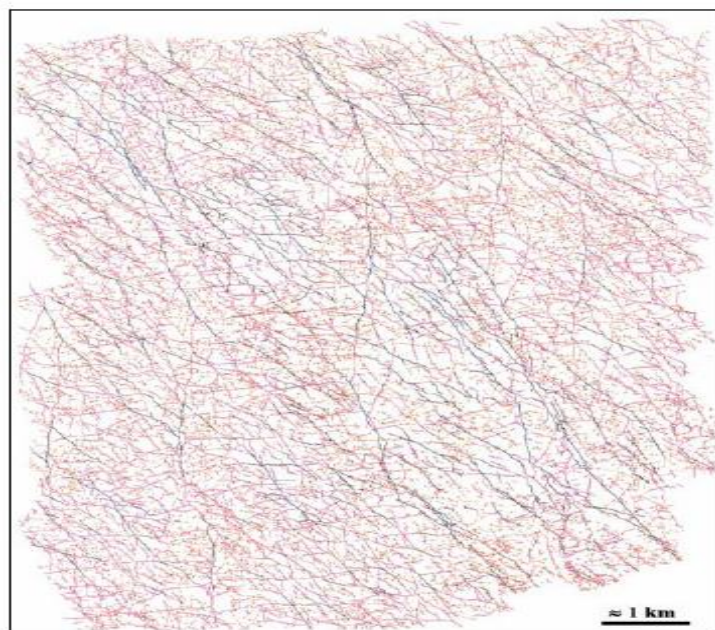
Le formazioni granitiche classificate di tipo M1, quelle selezionate per lo studio [1] e tipiche dell'area orientale del Massiccio Centrale Francese, hanno una grande area superficiale (molte migliaia di km<sup>2</sup>) e sono situate in zone con topografia superficiale relativamente contrastata; dal punto di vista morfostrutturale hanno forma a volta e sono caratterizzate da flussi idrogeologici su lunghe distanze tra le zone sotterranee e con fuoriuscita superficiale.

Come roccia di riferimento si usa il *granito monzonotico*, sebbene tutte le varietà di granito abbiano una permeabilità molto bassa; i valori di trasporto e ritenzione sono considerati per la roccia compatta e le proprietà mineralogiche utilizzate sono medie tra quelle tra vari dei tipi di graniti. Il modello di fratturazione per fratture di grandi e medie dimensioni (> 50-70 m) è stabilito in modo deterministico per un'area adeguata (8 x 11 km) ed è basato su dati geofisici ottenuti da misure di conducibilità elettrica, che sono legati al tipo di fratture presenti.

Esso distingue 4 tipi di fratture, che corrispondono a differenti dimensioni e modalità di fratturazione:

- fratture di primo ordine (alta conducibilità);
- fratture di secondo ordine (media conducibilità), organizzate in connessione con quelle del primo ordine;
- fratture di terzo e quarto ordine (debole conducibilità).

Le fratture, come illustrato in figura 9.1, tendono ad assumere un orientamento preferenziale dovuto alle deformazioni tettoniche e al raffreddamento del magma.



**Fig. 9.1** Modello bidimensionale delle fratturazioni basato su dati geofisici

Il modello di fratturazione near-field introduce le fratture di piccole dimensioni (comprese tra 5 e 50-70 m) nel modello del sito per mezzo di un modello statistico stabilito usando un software di generazione di fratture basato sui dati relativi alla distribuzione di elementi nelle piccole fratture riscontrata sperimentalmente. Essendo la distribuzione stocastica, possono essere effettuati vari campionamenti successivi allo scopo di pesare l'effetto di un singolo campionamento, ciò in quanto in questa analisi è stato utilizzato un unico ristretto campionamento.

La generazione della rete delle fratture riproduce correttamente la distribuzione delle dimensioni sebbene la sua distribuzione sia probabilmente più omogenea che nella realtà e non permette di riprodurre i clustering osservati in alcune formazioni e che tendono ad aumentare la densità di fratture in certi settori e diminuirla in altri con significative conseguenze sul connettività locale.

### **9.2.2 Modello idrogeologico**

Il processo del modello idrogeologico del sito include 2 fasi:

- modellizzazione idrogeologica su scala regionale allo scopo di comprendere il funzionamento idraulico dell'intera formazione e dei suoi dintorni in maniera semplificata, tramite cui è possibile ipotizzare la posizione del deposito come riferimento per i calcoli. Dal punto di vista metodologico fissa le condizioni al contorno dei modelli idrogeologici nel near field e far field del deposito nella formazione, dati i grandi volumi da considerare, il modello regionale non può tener conto in dettaglio della fratturazione della formazione; l'approccio adottato è quello di considerarlo come se fosse un mezzo poroso continuo (CPM);
- modellazione idrogeologica del granito nel near field o far field del deposito per rappresentare i percorsi idraulici che potrebbero convogliare i radionuclidi sulla superficie attraverso la rete di fratture del granito e fornisce i parametri necessari al trasporto e al calcolo della ritenzione. In questa fase si impiegano modelli interni che permettono alle fratture di essere esplicitamente rappresentate nella forma di reti discrete di fratture (DFN) poste in un più grande modello CPM che permette di seguire fino alla superficie i percorsi.

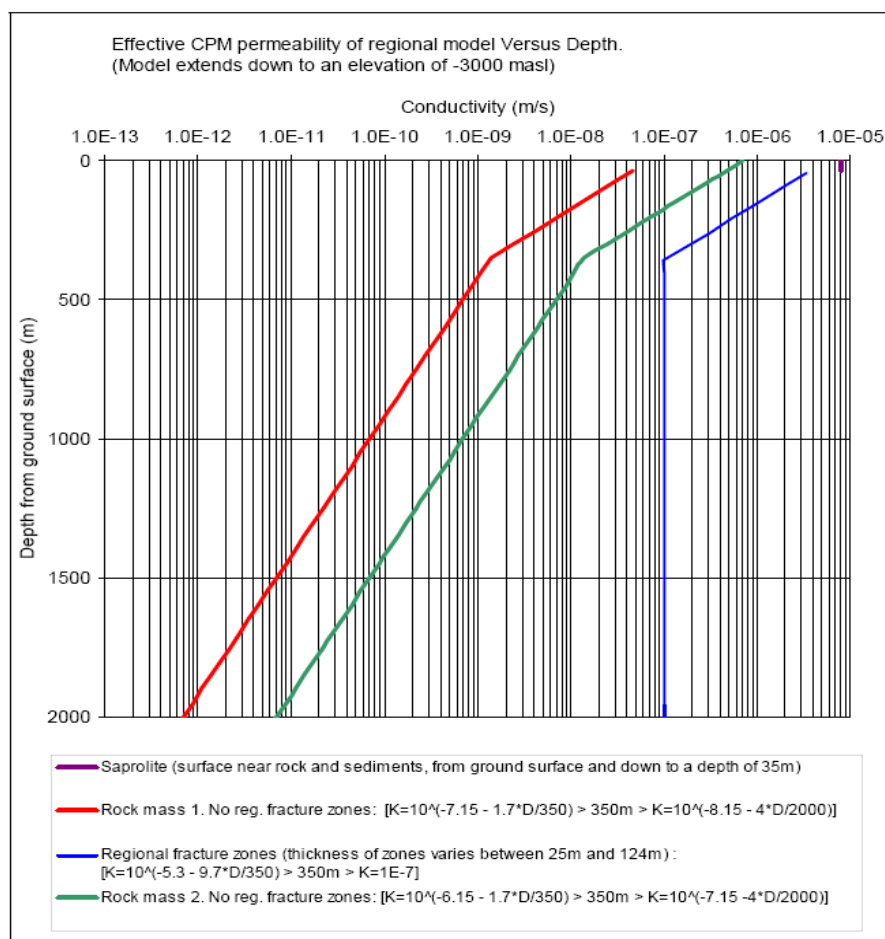
La dimensione del modello regionale determina un approccio di tipo CPM nel quale l'influenza della fratturazione è integrata all'interno dei parametri idraulici delle differenti unità geologiche del modello; inoltre a causa delle simulazioni di trasporto a lungo termine i calcoli idraulici vengono effettuati in condizioni di stato stazionario in accordo con una formazione di granito completamente satura che non subisce modifiche durante il periodo di tempo considerato nei modelli (1 milione di anni).

Nell'ambito di uno studio generico, l'impatto dell'evoluzione geodinamica non è considerato.

Il modello è sufficientemente grande (circa 30 x 30 km per M2, più grande per M1 circa 80 x 60 km) da coprire l'intera formazione e i suoi dintorni fino ai confini idrogeologici significativi (linee spartiacque e fiumi più importanti).

I dati idrogeologici utilizzati per parametrare i vari componenti del modello geologico sono i seguenti:

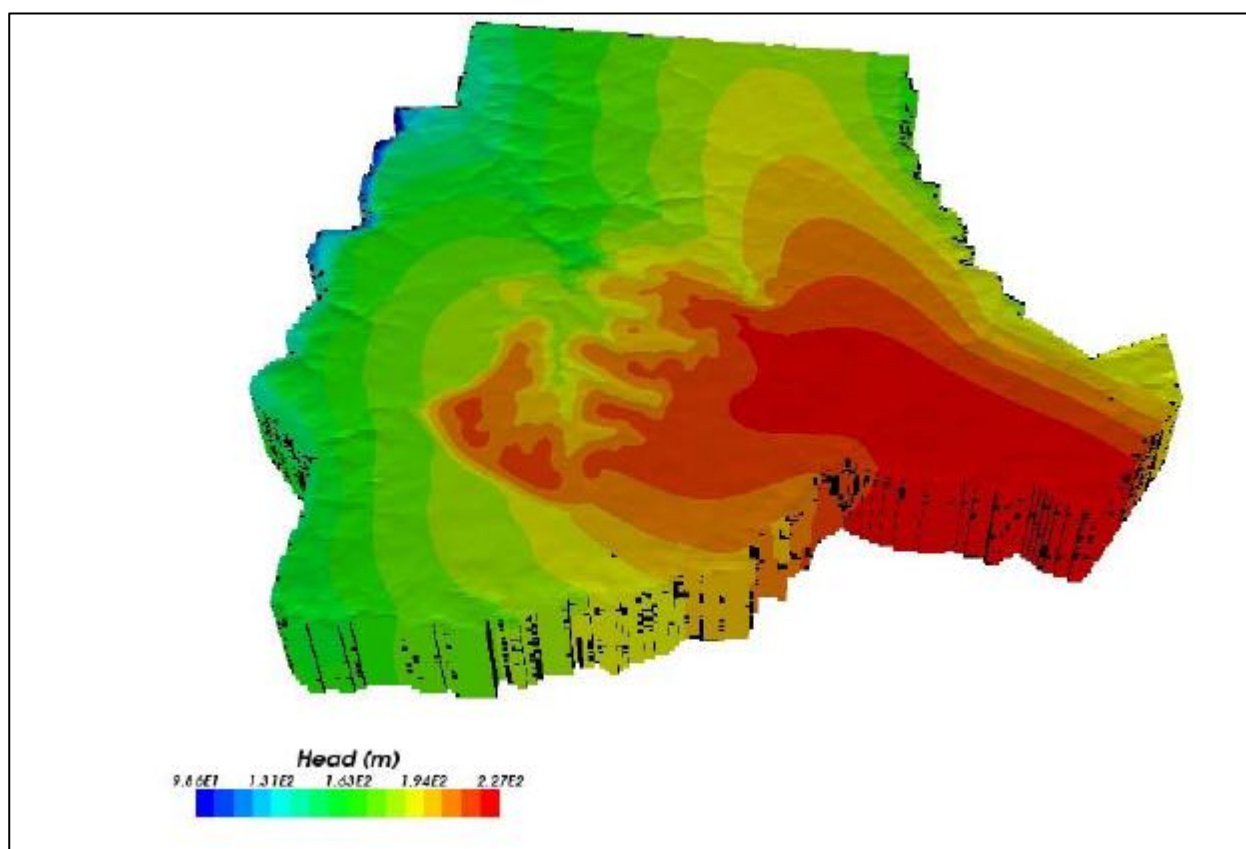
- *permeabilità equivalente dei differenti tipi di roccia alla profondità di 500 m*, Le permeabilità delle differenti unità della formazione sono assunte essere equivalenti con l'eccezione di zone con leucograniti più permeabili. La permeabilità dei terreni metamorfici circostanti è equivalente o a quello del granito o a quello delle zone di leucogranito per le zone più permeabili; le permeabilità vengono date come tensori il cui maggior componente è orientato in parallelo all'asse principale.
- *Permeabilità delle grandi fratture*: alta permeabilità ( $K=10^{-7}$  m/s) considerata equivalente per tutte le strutture assegnata a faglie regionali di 10 o più chilometri.
- *Leggi di evoluzione della permeabilità come funzione della profondità*. Le permeabilità dei differenti componenti del modello regionale, in base a dati di riferimento internazionali, evolve con la profondità con una inflessione a 350 metri, per le grandi faglie la permeabilità non diminuisce ulteriormente (vd. Fig. 9.2)
- *Porosità cinematica*. Sono stati adottati valori uguali a  $10^{-4}$  per volumi rocciosi e  $5 \cdot 10^{-4}$  in caso di zone di faglia.



## 9.2 Evoluzione della permeabilità della formazione granitica con la profondità

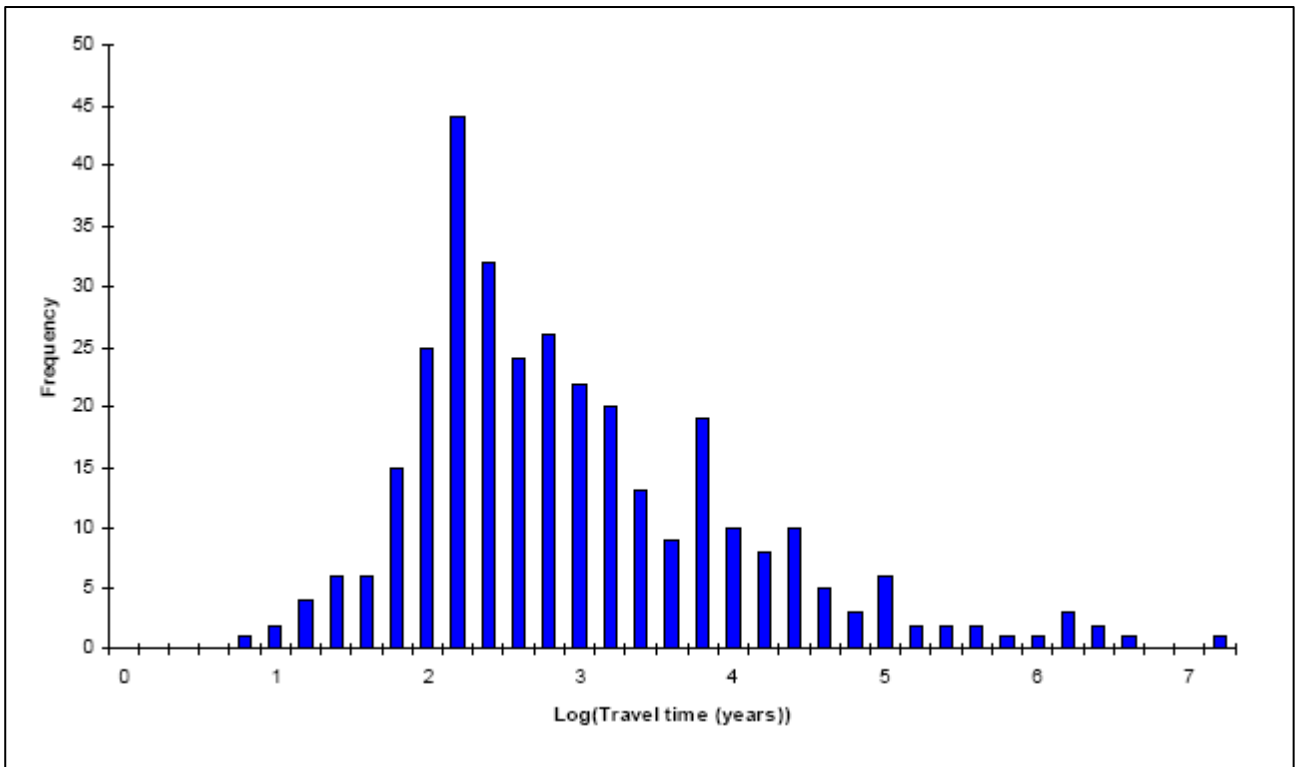
Le condizioni limite superiori seguono una legge di riempimento/drenaggio dipendente sulla differenza in livello tra la quota piezometrica calcolata e l'input meteorologico, che percola per circa il 25 % di 750 mm/anno (drenaggio verso la superficie se positiva, riempimento della formazione se negativa). L'estensione laterale del modello è scelta per permettere l'uso di limiti senza flusso sulle facce verticali: grandi corsi d'acqua e linee spartiacque, il fondo del modello è assunto privo di flusso (-3.000 m).

Il modello regionale è la base per i calcoli dei cammini idraulici tra il deposito e le potenziali sorgenti naturali per differenti possibili locazioni in base a criteri definiti dal progettista, sono condizioni favorevoli ad esempio lunghi cammini idraulici, lunghi tempi di trasferimento o flussi d'acqua ridotti. I calcoli portano alla produzione di modelli 3D della piezometria (in figura 9.3) e velocità di Darcy.

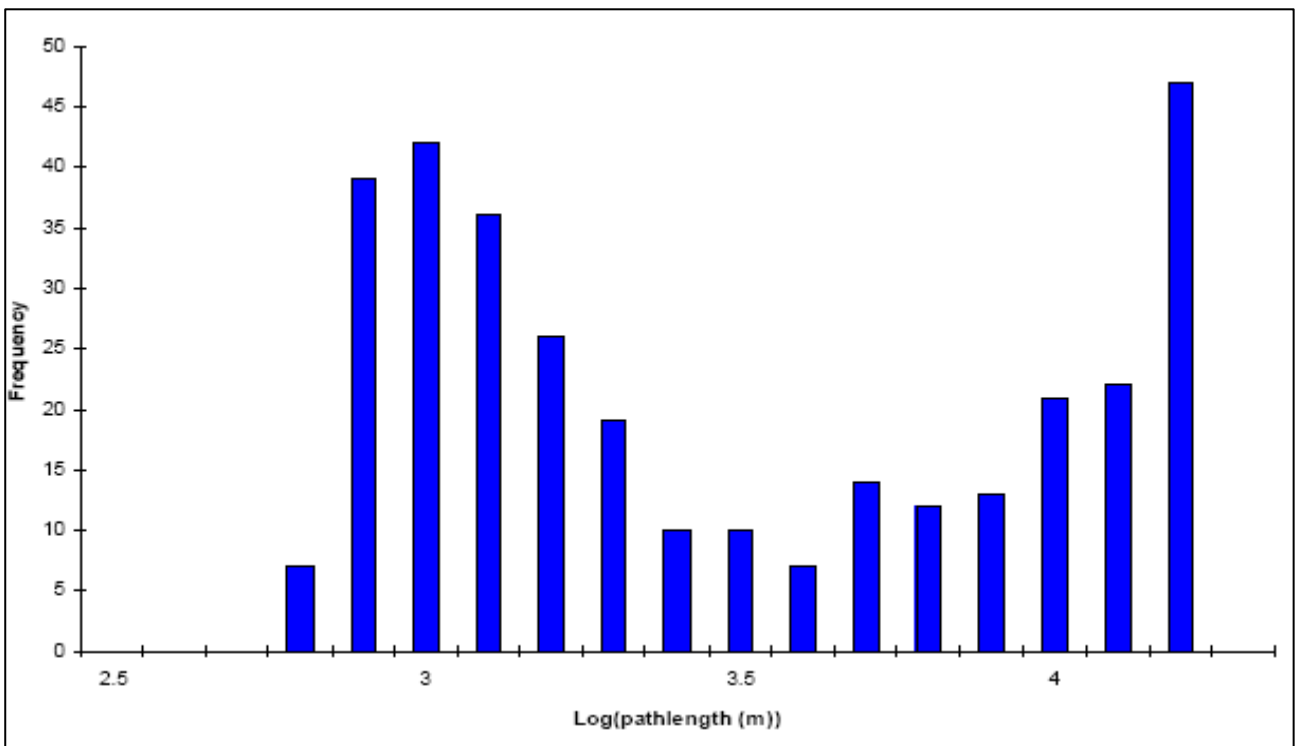


**Fig. 9.3 Superficie piezometrica calcolata**

La tecnica di traccia delle particelle dai sotterranei nel sistema permette di determinare la distribuzione di cammini idraulici passanti attraverso un deposito nella formazione e rende possibile confrontare le posizioni dei depositi. In figura 9.10 a e b è riportato il risultato di una simulazione effettuata con 8000 particelle alla profondità di 500 m su una griglia quadrata di 200 m di lato; in un grafico a barre sono riportate le frequenze ottenute verso il tempo di percorrenza e la lunghezza di percorso.



**Fig. 9.10 a - Frequenza del tempo di percorrenza**



**Fig. 9.10 b - Frequenza della lunghezza di cammino**

Dopo aver definito il deposito mediante un modello idrogeologico regionale di tipo CPM si identificano i cammini idraulici tra il deposito e la superficie, che costituiscono la base dei

fenomeni dei calcoli di trasporto, mediante modelli idrogeologici che tengono conto della distribuzione delle fratture.

Nel near field del deposito (nell'ordine dei km<sup>2</sup> o frazioni) i modelli idrogeologici di tipo DNF considerano esplicitamente le proprietà idrauliche delle fratture la cui rappresentazione viene così semplificata:

- il pattern adottato prende la forma di 2 bordi di frattura piatti, omogenei e paralleli che definiscono i confini di uno spazio aperto molto stretto disponibile per il movimento convettivo dell'acqua, il parametro usato è la trasmissività delle fratture.
- Le proprietà della roccia al bordo delle fratture determinano facilmente fenomeni di trasmissione per diffusione tra gli spazi vuoti e la roccia: i parametri coinvolti sono i coefficienti di diffusione e la porosità della roccia alterata. Alla scala della rete di fratture (DFN) la connettività tra 2 fratture è sempre assunta perfetta, ciò assicura un approccio in generale conservativo in termini di permeabilità totale della formazione.

Le principali limitazioni dell'approccio DFN sono dovute al grande numero di fratture da considerare individualmente e simultaneamente nei calcoli idraulici. Dal punto di vista digitale, deve essere trovato un compromesso tra l'estensione del volume modellato e le dimensioni delle fratture più piccole prese in considerazione che sono anche molto numerose. Così, parte del far-field (decine di km<sup>2</sup>) può essere gestito mediante un approccio DFN (near-field e far-field) inserito in un modello CPM su scala maggiore (far-field).

### **9.3 Rappresentazione del trasporto in granito**

La rappresentazione della migrazione dei radionuclidi nel granito è basata sulla determinazione dei cammini determinati dai modelli idrogeologici su differenti scale, i calcoli coinvolgono:

- fenomeni di convezione e dispersione associata generati dai gradienti idraulici;
- fenomeni di diffusione nella roccia sui piani di frattura (pareti della roccia);
- fenomeni di ritenzione da adsorbimento sui minerali delle fratture e della stessa roccia granitica.

La rappresentazione di questi fenomeni nella complessità di una rete di fratture implica la semplificazione della geometria dei cammini e delle superfici di scambio tra l'acqua e i piani di frattura, i modi di semplificazione adottati sono basati sui risultati ottenuti in numerosi esperimenti effettuati nei laboratori sotterranei in particolare ad Aspö in Svezia.

I parametri di trasporto per i calcoli sono determinati sulla base dei risultati di questi esperimenti e considerano, tramite i vari modelli geologici del sito, la potenziale variabilità delle caratteristiche mineralogiche delle fratture e i tipi di granito rappresentati.

La variabilità riguarda in particolare la natura e l'intensità dell'intasamento delle fratture dovuto a minerali idrotermici come alle proprietà diffusive delle rocce vicino alle fratture, in tabella 9.1 sono riportati a titolo di esempio i dati utilizzati per il granito di tipo M1.

**Tabella 9.1 Valori dei parametri adottati per il granito di tipo M1**

Granite M1 (matrix)	Density: 2,650 kg/m <sup>3</sup>						
	Maximum thickness of diffusion [m]			Effective diffusion De [m <sup>2</sup> /s]		Diffusion porosity ω <sub>d</sub>	
	Near-Field Fracturing Reference	Intermediate Fracturing Reference	Far-Field Fracturing Reference	Reference	Sensitivity	Reference	Sensitivity
<sup>14</sup> C	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-14</sup>	2.10 <sup>-15</sup>	0.006	0.002
<sup>36</sup> Cl	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-14</sup>	2.10 <sup>-15</sup>	0.006	0.002
<sup>79</sup> Se	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-14</sup>	2.10 <sup>-15</sup>	0.006	0.002
<sup>93</sup> Mo	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-14</sup>	2.10 <sup>-15</sup>	0.006	0.002
<sup>99</sup> Tc	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006
<sup>126</sup> Sn	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006
<sup>129</sup> I	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-14</sup>	2.10 <sup>-15</sup>	0.006	0.002
<sup>135</sup> Cs	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006
<sup>229</sup> Th	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006
<sup>233</sup> U	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006
<sup>237</sup> Np	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006
<sup>241</sup> Am	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006
<sup>241</sup> Pu	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006
<sup>245</sup> CM	0.02	0.05	0.2	2.10 <sup>-13</sup>	2.10 <sup>-14</sup>	0.02	0.006

De, d : Test Values  
Maximum thickness accessible to diffusion: Test value (expert)  
Anionic exclusion is taken into account for Carbon 14, Chlorine 36, Selenium 79, Iodine 129 and Molybdenum 93.

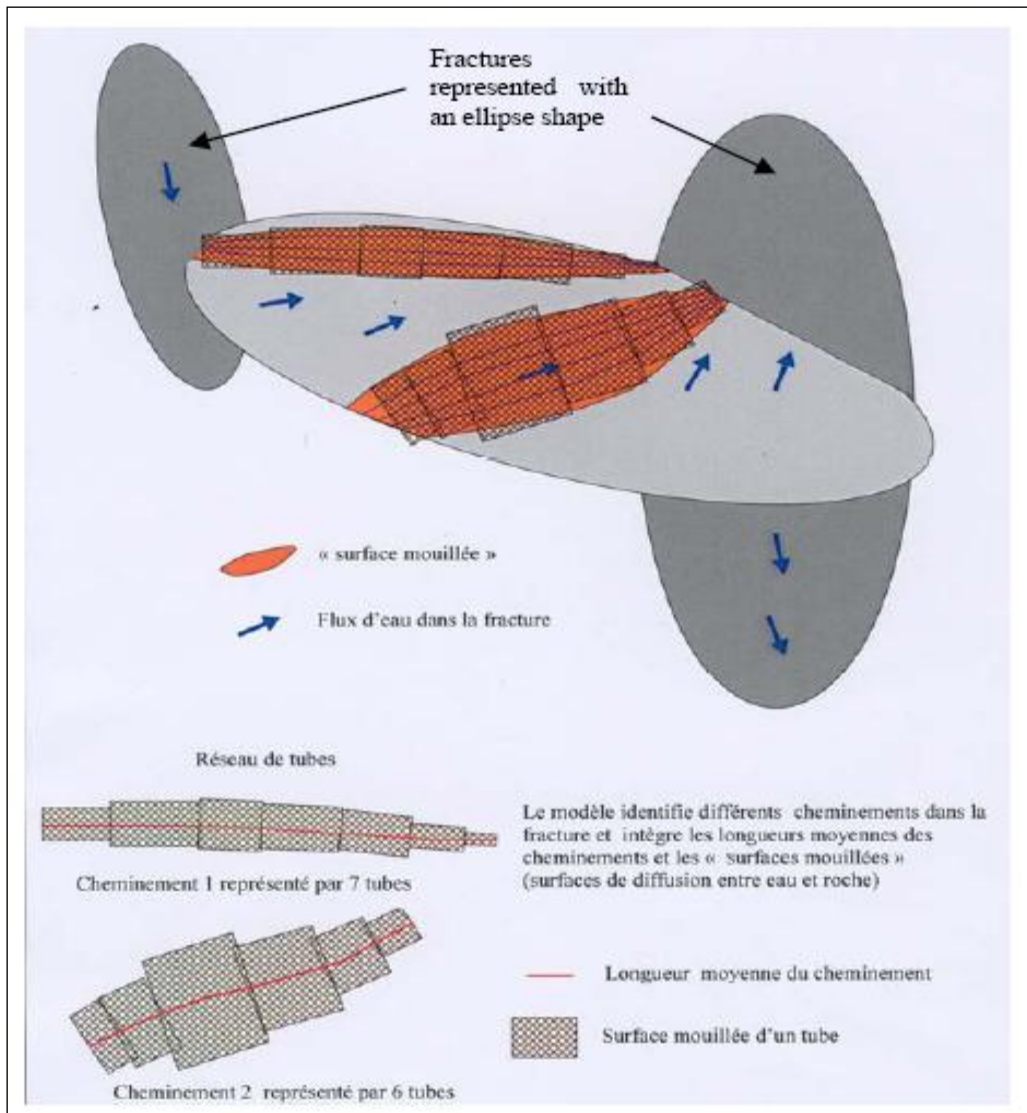
Il modello “a tubo” adottato, in genere, per la simulazione del trasferimento di radionuclidi in una rete di fratture è basato sulle osservazioni che irregolarità nella geometria di una frattura e le connessioni tra fratture portano a flussi di acqua che sono generalmente incanalati nelle fratture (vedi figura 9.11).

I tubi sono rappresentazione semplificate dell’incanalamento che soddisfano le limitazioni degli strumenti di calcolo.

L’intero flusso di acqua passa attraverso i tubi del modello, data la bassa velocità di movimento dell’acqua, i radionuclidi possono migrare attraverso diffusione nella roccia alterata ai bordi delle fratture: la superficie di contatto tra l’acqua e il granito (superficie bagnata) è il parametro di riferimento per stimare l’estensione della diffusione.

I cammini idraulici nelle fratture sono trasposti nei calcoli di trasporto nella forma di una serie di tubi elementari monodimensionali ognuno dei quali alloca un flusso equivalente Q e superficie bagnata A. Il rapporto A/Q è denominato F (in genere espresso in anni/m) dà una misura dell’area superficiale disponibile per interazione con gli angoli delle fratture e il tempo disponibile perché questa interazione prenda posto, cioè l’equivalente di “resistenza al trasporto”; esso può anche

essere integrato in modo tale che molti tubi o l'intero cammino sia rappresentato. Ci sono 2 valori di F per ogni valore di cammino, uno per il near-field e l'altro per il far-field.



**Fig. 9.11 Modello dei tubi di flusso di acqua e radionuclidi in una frattura**

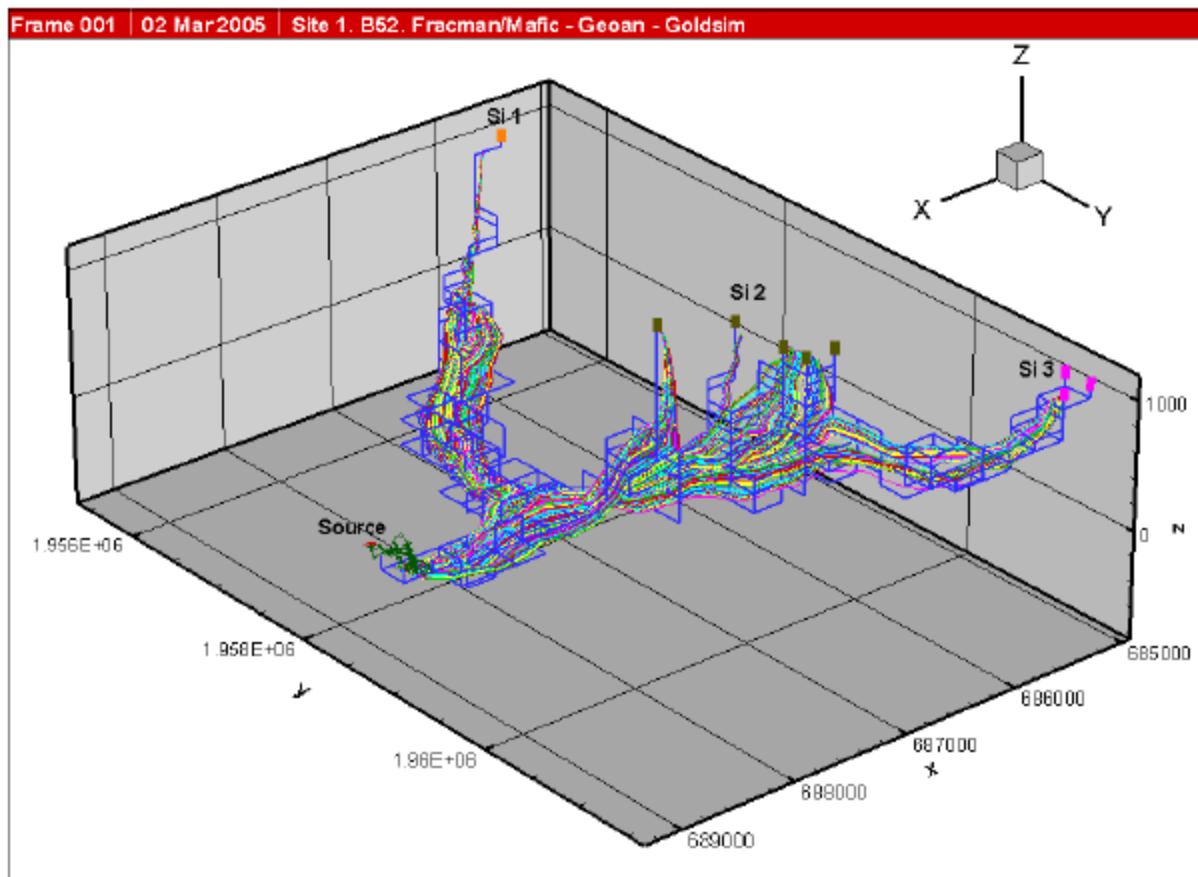
I coefficienti di diffusione del granito sono generalmente più alti ai bordi delle fratture che nella roccia compatta, ciò favorisce la ritenzione dei radionuclidi. I parametri di ritenzione adottati per i calcoli tengono conto della mineralogia del granito ai bordi.

La migrazione dei radionuclidi lungo i cammini è rappresentata fino in prossimità alla superficie di granito, in termini di prestazioni, l'inventario dei radionuclidi è valutato al loro ingresso nella superficie alterata del granito (approssimativamente 100 m sotto la superficie). In valutazioni generiche questa scelta rende possibile trascurare incertezze specifiche del sito relative all'ambiente superficiale.

I modelli di trasporto corrispondono a volumi inseriti come modelli idraulici. Vicino alla sorgente di radionuclidi, che corrisponde all'inizio dei cammini, essi assumono i parametri determinati mediante il modello DFN near-field. Nel far-field, in dipendenza dai siti, i percorsi sui quali sono



basati i calcoli di trasporto sono determinati o da un modello DFN poi un modello CPM o direttamente dal modello CPM (vedi figura 9.12).



**Fig. 9.12** Rete di tubi rappresentanti i cammini far-field, le linee verdi vicino alla sorgente si riferiscono a cammini DFN, le altre a cammini CPM terminanti su vari punti della superficie

#### 9.4 Modello architettonico

Ogni componente è rappresentato nelle sue principali caratteristiche relative al trasporto di radionuclidi e l'incertezza su tali caratteristiche, che può essere piccola o considerevole in base alle conoscenze acquisite, riguardo il comportamento del materiale esaminato e l'influenza che tutti gli altri componenti del deposito possono avere su di esso. Per caratterizzare la possibile variabilità di ogni processo o caratteristica è utile utilizzare almeno due diversi modelli o parametri, questi ultimi possono essere qualificati (fenomenologici, conservativi, pessimistici) in base all'approccio sulla gestione delle incertezze adottato, come illustrato nei paragrafi seguenti.

#### 9.5 Definizioni relative ai modelli

Il termine "impatto" si riferisce ai risultati aspettati dai calcoli, generalmente una dose espressa in Sv Sievert, sebbene il concetto sia estendibile a tutti gli indici.

Modello fenomenologico o miglior stima:

- modello basato sulla più completa comprensione del fenomeno da modellare e la cui capacità di risposta per misure dirette e indirette è stata verificata. Questo tipo di modello può includere tutti i fenomeni rilevanti (nei casi più semplici) al livello più dettagliato o i parametri ambientali più significativi (ad es. pressione, temperatura, pH, ecc.) ad es. legge di Coulomb, di Ficks, di Darcy, ecc. ;
- oppure in confronto agli altri modelli disponibili può offrire il migliore tra la realtà che si presume di rappresentare e i risultati che genera nei calcoli di impatto, con l'intervallo di variabilità dei parametri adottato per gli studi, ad es. modelli soggetti a validazione sperimentale.

Non ci può essere un modello fenomenologico senza un significativo programma di ricerca sull'argomento considerato; per fenomeni scarsamente compresi o ancora non studiati in dettaglio o privi dei dati corrispondenti il modello non può essere definito poiché gli elementi richiesti per effettuare le scelte definite in precedenza non sono disponibili.

Un modello conservativo è un modello per il quale è possibile dimostrare che il suo uso, a parità di tutte le altre condizioni, tende a sovrastimare l'impatto sul deposito in confronto ai risultati ottenibili prendendo in considerazione tutti i fenomeni rilevanti nell'intervallo di variazione del parametro scelto.

Un modello pessimistico definisce un modello che non è basato sulla comprensione fenomenologica, comunque empirica, il quale è utilizzato esclusivamente per sovrastimare definitivamente l'impatto sul deposito.

## 9.6 Definizioni relative ai parametri

Il valore fenomenologico o miglior stima è quello considerato offrire il miglior match tra i risultati del modello ed i risultati misurati, a parità degli altri parametri. Questa scelta è fatta in principio senza riferimento all'impatto, se il ragionamento usato per determinare il valore fenomenologico non lascia margine di interpretazione o intervallo di incertezza, dovrebbe essere utilizzato il valore che massimizza l'impatto.

La scelta di un valore fenomenologico deve essere motivata in dettaglio da argomenti quali:

- un numero rappresentativo di misure, nel qual caso il valore scelto è basato su appropriate considerazioni statistiche (in genere il valore più probabile), prendendo in conto un margine di sicurezza quando applicabile;
- Un ragionamento fisico che dimostri che il valore scelto è il più rappresentativo, basato su dati affidabili;
- Un giudizio di esperti riconosciuti, esplicitamente indicanti esso come il valore più appropriato per il contesto dello studio.

Un valore pessimistico non è basato su una solida comprensione fenomenologica ma è scelto per convenzione per avere un impatto sicuramente maggiore di quello calcolabile usando valori possibili e possono rappresentare limiti fisici. Un valore pessimistico può anche essere uguale al valore conservativo più (o meno) un appropriato fattore di sicurezza che lo ponga significativamente oltre l'intervallo dei valori misurati. Similmente ai valori conservativi i valori pessimistici non possono essere definiti se le variazioni sull'impatto non sono monotoniche al variare del parametro.

I valori alternativi vengono utilizzati in situazioni dove la variazione nell'impatto non può essere caratterizzata in relazione alla variazione del parametro e non possono essere usati i valori conservativi e pessimistici, per esplorare i possibili intervalli di variazione del parametro e investigare l'effetto di valori contrastanti. La strategia per definire i modelli di calcoli di sicurezza basati su modelli concettuali seguono i seguenti principi:

- se il grado di incertezza relativa ai modelli o ai parametri è basso fino a moderato, i parametri o i modelli più scientificamente documentati sono scelti per i calcoli di riferimento. Se appare importante studiare l'impatto di uno o più valori sfavorevoli (conservativi o pessimistici), questo parametro è soggetto a uno studio di sensitività ;
- dove il grado di incertezza è alto, viene scelto il valore o modello conservativo o pessimistico, in base a quali modelli o valori sono disponibili
- inoltre è preferibile usare modelli semplici e robusti rispetto a quelli che sono più complessi o dipendenti dalle condizioni ambientali purché tale scelta non determini una sottostima dell'impatto;
- se la variazione nell'impatto determinato dalla direzione di variazione di un parametro o la scelta di modello non è univoca, un possibile approccio è testare modelli e parametri contrastanti come un mezzo di valutazione della incertezza totale.

Il concetto di incertezza bassa, moderata o alta è inevitabilmente soggettivo, sebbene in certi casi possa essere reso obiettivo mediante considerazioni statistiche come la dispersione dei valori sperimentali o il rateo di confidenza. Il verdetto sull'incertezza è discusso caso per caso dagli esperti proponenti i valori e i modelli.

In aggiunta allo scenario di calcolo attuale di riferimento, i calcoli di sensitività vengono effettuati per testare differenti gruppi di parametri diversi da quelli selezionati come i più rappresentativi. Queste sensibilità hanno lo scopo di considerare un'incertezza residuale e assumono i valori più sfavorevoli; esse rendono possibile valutare l'incertezza sulla sensibilità nel contesto dell'analisi di prestazione. Inoltre alcuni studi di sensibilità hanno lo scopo di testare un valore più favorevole di quello dato parametro di calcolo allo scopo di valutare l'utilità di studiare l'intervallo di variazione potenziale più accuratamente in una fase successiva degli studi.

## **9.7 Strumenti di calcolo usati per modellare il trasporto dei radionuclidi**

Per la simulazione delle reti di fratture, gli strumenti di calcolo utilizzati sono stati quelli sviluppati in ambito internazionale per gli studi su depositi in formazioni geologiche granitiche. In particolare il progetto "Connectflow" riguarda lo sviluppo di modelli di Discrete Fracture Network (DSN) e in Continuous Porous Media (CPM) allo scopo di assicurare la continuità delle diverse scale di modellizzazione utilizzate nella simulazione del trasporto, nel caso di CPM sono dello stesso tipo di quelli utilizzati nelle argille. Nella tabella 9.2 sono riportati i codici utilizzati per la simulazione dei rispettivi modelli.

**Tab. 9.2**

Modelli	Codici
Idrologia e tracciamento di particelle in mezzi continui porosi (CPM)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Connectflow (NAMMU component, 3D modelling, elementi finiti).</li> <li>• Geoan (3D modelling, differenze finite).</li> <li>• Porflow (3D modelling, differenze finite).</li> </ul>
Idrologia e tracciamento di particelle in reti di fratture discrete (DFN)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Connectflow (NAMMU component, 3D modelling, elementi finiti).</li> <li>• FracMan (generation of discrete fracture networks) and MAFIC (hydraulic resolution of the networks, 3D, elementi finiti).</li> </ul>
Trasporto in mezzi continui porosi (CPM)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• PROPER (COMP-23 component, modelling in segments of the engineered barrier, differenze finite).</li> <li>• Goldsim (volume modelling of engineered barriers).</li> <li>• Porflow.</li> </ul>
Trasporto in reti di fratture discrete (DFN)	<ul style="list-style-type: none"> <li>• PROPER (FARF-31 component, 1D modelling 1D stream tube concept).</li> <li>• PathPipe (conversion of networks of tubes for transport) and Goldsim (modelling in networks of 1D pipes).</li> </ul>

## **BIBLIOGRAFIA DEL CAPITOLO 9**

[1] Dossier 2005 – Safety analysis of a geological repository – GRANITE . ANDRA Agence Nationale pour la gestion de déchets radioactifs – FRANCE – December 2005