



ÚJV
divize 2400
oddělení 2402

12/2020

Metodika migračních zkoušek s radionuklidy v laboratoři

Schválená certifikovaná metodika

Autorský kolektiv:

Filip Jankovský, Milan Zuna, Václava Havlová (ÚJV Řež, a.s.),
Jakub Jankovec (Progeo spol. s.r.o.)

Tato metodika byla zpracována jako výsledek řešení projektu TAČR TH02030543 „Vývoj nástrojů pro studium transportu kontaminantů v puklinovém prostředí“

Účinnost metodiky: 07/2021





© **ÚJV Řež, a. s.**, Hlavní 130, Řež, 250 68 Husinec, Česká republika

Údaje v tomto dokumentu nesmí být kopírovány ani předány dalším stranám bez písemného souhlasu ÚJV Řež, a. s.



Evidenční číslo dokumentu: **CM TAČR 2402/2021/01**
Revize: 0
Autor: RNDr. Filip Jankovský, Mgr. Milan Zuna, PhD.,
RNDr. Václava Havlová, PhD.,(ÚJV)
Ing. Jakub Jankovec, PhD. (Progeo, s.r.o.)
Vedoucí oddělení: RNDr. Václava Havlová, PhD.
Ředitel divize/úseku: Ing. Radek Trtílek
Číslo zakázky: 17D0015
Číslo projektu: TAČR TH02030543
Číslo smlouvy: 2017TH02030543

Dedikace: Tato metodika byla zpracována jako výsledek řešení projektu TAČR TH02030543 „Vývoj nástrojů pro studium transportu kontaminantů v puklinovém prostředí“



Obsah

Abstrakt	6
1. Cíl metodiky	8
2. Vlastní popis metodiky	10
2.1. Příprava experimentu.....	10
2.1.1. Seznam přístrojů a pomůcek.....	10
2.1.2. Příprava fyzikálního modelu s přirozenou puklinou	11
2.1.3. Charakterizace horninového vzorku a pukliny	14
2.1.3.1. Charakterizace vnitřní struktury pukliny.....	14
2.1.3.2. Geochemické charakteristiky vzorku a puklinové výplně	15
2.1.3.3. Stanovení koeficientu transmisivity (průtočnosti)	17
2.1.4. Migrační experimenty se stabilními stopovači	20
2.1.5. Migrační experimenty s radionuklidy	21
2.2. Měření a vyhodnocení výsledků	22
2.2.1. Koeficient transmisivity (T)	22
2.2.2. Průnikové experimenty se stabilními stopovači	26
2.2.3. Průnikové experimenty s radioaktivními stopovači.....	27
2.2.4. Vyhodnocení dat ze stopovacích experimentů	30
2.2.5. Matematické modelování	33
3. Srovnání novosti postupů	36
4. Popis uplatnění metodiky	38
5. Seznam použité související literatury	39
6. Seznam publikací, které předcházely metodice	43



Seznam zkratek

AAS	atomová absorpční spektrometrie
BTC	průniková křivka (breakthrough curve)
GeoPET	pozitronová emisní tomografie (uzpůsobená pro horninové vzorky)
HPLC	vysokoučinná kapalinová chromatografie (angl. high-performance liquid chromatography)
ISE	iontově selektivní elektroda
LCL	lokální kubický zákon
PMMA	polymethylmetakrylát
RAO	radioaktivní odpad
RN	radionuklid
SEM	skenovací (řádovací) elektronový mikroskop
SPECT	jednofotonová emisní výpočetní tomografie (single-photon emission computed tomography)
SW	software
μCT	rentgenová výpočetní mikrotomografie (microCT)

Seznam obrázků

Obr. 1 Část vrtného jádra s puklinou použitá pro výrobu fyzikálního modelu	12
Obr. 2 Podstavy naformátovaného jádra s přirozenou puklinou (ideální rozměry 78 x 90 mm)	12
Obr. 3 Vlevo: příprava vzorku pro fixaci epoxidem, vpravo: zpevněný vzorek	13
Obr. 4 Vlevo: upínací zařízení pro zalévání vzorku pryskyřicí, vpravo: vzorek po vytvrdnutí pryskyřice	13
Obr. 5 Vlevo: hotový fyzikální model PVP-1 opatřený šroubovacími víky, vpravo: optimalizovaný fyzikální model s minimalizovaným mrtvým objemem	14
Obr. 6 Ilustrativní zobrazení příčného a podélného řezu mikro-CT záznamu vzorku s puklinou	15
Obr. 7 Vlevo: Segmentovaná puklina měřeného vzorku programem Avizo, vpravo: Rychlostní mapa šíření kontaminantu v puklině v programu MODFLOW/MT3D	15
Obr. 8 Technický náčrt experimentální cely pro měření transmisivity	18
Obr. 9 Vlevo: pohled do vnitřního prostoru experimentální cely s napnutou pryžovou membránou a porézní destičkou, vpravo: experimentální cely s vloženým horninovým vzorkem s puklinou	19
Obr. 10 Optimalizovaná aparatura pro měření koeficientu transmisivity v laboratorních podmínkách	19
Obr. 11 Experimentální sestava pro stopovací experimenty se stabilními stopovači	20
Obr. 12 Vlevo a uprostřed: připojení fyzikálního modelu do měřicí sestavy, vpravo: detail průtočné cely s redukováným mrtvým objemem – měřicí on-line elektroda (např. ISE-Pb ²⁺).....	21
Obr. 13 Měřicí sestava s čerpadlem a sběračem frakcí pro měření v dynamickém módu	22
Obr. 14 Vlevo: multikamerový detekční systém na rotačním stolku s uspořádáním detektorů ve dvou patrech, vpravo: fixace fyzikálního modelu během migračního experimentu.....	22
Obr. 15 Ilustrativní grafické znázornění vývoje objemu v zásobních čerpadel GDS na vstupu a výstupu z experimentální cely	24
Obr. 16 Lineární část grafu vývoje objemu ve vstupním a výstupním čerpadle GDS.....	24
Obr. 17 Výčet vstupních hodnot potřebných pro stanovení koeficientu transmisivity	25



Obr. 18 Ukázka průběhu průnikové křivky z neaktivního stopovacího testu (KBr; mol.l ⁻¹) při průtoku 0,1 ml.min ⁻¹	26
Obr. 19 Ukázka průběhu průnikové křivky z neaktivního testu (KI; mol.l ⁻¹) při průtoku 0,017 ml.min ⁻¹	27
Obr. 20 Ukázka průběhu průnikové křivky ¹⁸⁸ Re na výstupu ze vzorku s přirozenou puklinou vyjádřená v jednotkách A/A ₀	28
Obr. 21 Ilustrativní obrázek vývoje průniku ¹⁸⁸ Re horninovým vzorkem v čase pod úhlem 0°	29
Obr. 22 Příklad 3D rekonstrukce pukliny získané při dynamickém experimentu s průnikem ¹⁸⁸ Re (dole zobrazeny řezy X,Y,Z).....	30
Obr. 23 Ideální průniková křivka. t ₁ : čas prvního objevení stopovače, t _p : čas maximální koncentrace, t(R/2): čas, kdy prošla polovina množství stopovače (Goldscheider, 2008).....	31
Obr. 24 Průniková křivka stopovací zkoušky (zjednodušeno podle Fielda (2002))	31

Seznam tabulek

Tab. 1 Příklad vývoje objemu v zásobních čerpadel GDS pomocí softwaru GDSLAB při nastaveném tlakovém gradientu během měření transmisivity	23
Tab. 2 Příklad výsledných hodnoty transmisivity a rozevření pukliny zkoumaných vzorků	25



Abstrakt

Předkládaná metodika migračních zkoušek s radionuklidy v laboratoři je členěna do kapitol, které se postupně věnují nejprve popisu přípravy experimentu, dále metodice měření až po vyhodnocení získaných dat.

Prvním krokem činností je výroba fyzikálního modelu s přirozenou puklinou. Dále je pozornost zaměřena na popis charakterizace horninového vzorku a samotné pukliny např.: hydraulické vlastnosti (transmisivita), vnitřní struktura pukliny (rozevření), geochemické vlastnosti horninové matrice a puklinové výplně. Posledním přípravným krokem před stopovacím experimentem s radionuklidy je provedení testu se stabilním stopovačem pro vhodné nastavení okolních podmínek. Experimentální sestava umožňuje využít jak stabilní stopovače (např. I, Br, Cl), tak i radioaktivní stopovače, které svým použitím přibližují experimentální výsledky reálné situaci migrace radioaktivních kontaminantů v horninovém prostředí.

Vyvinutou instrumentaci a postupy je možno využít zejména pro stanovení parametrů pukliny pro popis transportních procesů kontaminantů, včetně radionuklidů, ale také např. pro verifikaci modelových případů pro vývoj transportních softwarů, kdy je možno se zabývat definováním neurčitosti při transportních výpočtech či citlivostní analýzou. Data popisující parametry pukliny i chování radionuklidů v puklinových systémech krystalických hornin pak představují nutný vstup do výpočtů, hodnotících dopad migrace radionuklidů na člověka a životní prostředí.

Abstract

The presented methodology of migration tests with radionuclides in the laboratory is divided in chapters, which are devoted to the description of the instrumentation, the measuring systems, then the measurement methodology and finally the evaluation of the obtained data.

The first step of the activities is the production of a physical model with the natural fracture. Attention is then focused on the description of equipment for fracture characterization, eg: hydraulic properties (transmissivity), internal structure of the fracture (aperture), geochemical properties of rock matrix and fracture filling. The last preparatory step is to perform an inactive tracer test to properly define the boundary conditions for the final migration experiment with radionuclide.

The experimental set-up allows the use of both natural tracers (eg. I, Br, Cl) and radioactive tracers. The experimental results simulate the real situation of migration of radioactive contaminants in the rock environment.

The developed instrumentation and procedures can be used mainly to determine fracture parameters for the description of transport processes of contaminants, including radionuclides, but also for verification of transport if uncertainties need to be addressed or sensitivity analyses need to be addressed. The data describing the parameters of the fracture and the behaviour of radionuclides in the fracture systems of crystalline rocks then represent a valuable input to the calculations evaluating the effect of the migration of radionuclides on humans and the environment.



Základní pojmy

Stopovací zkouška

Zkouška, při níž se zjišťuje existence hydraulické komunikace a efektivní rychlost pohybu podzemní vody tak, že se do vrtu nebo jiného objektu vloží určité množství indikátoru (stopovací látky, stopovače) a v pozorovacích objektech v předpokládaném směru proudění se sleduje přítomnost indikátoru a časové změny jeho koncentrace. Stopovací zkoušky jsou základním nástrojem hydrologie pro zjištění směru odtoku, rychlosti a disperzivity. Stopovací zkoušku lze provádět i na vzorcích hornin v laboratoři.

(https://www.geovedy.cz/cs/files/hydrogeologicke_pojmy.pdf)

V této metodice jsou uvedené pojmy definovány následovně:

- **Dynamický mód stopovací zkoušky**

On-line detekce šíření radionuklidu puklinou při nastaveném konstantním průtoku v průběhu celého experimentu.

- **Statický experiment**

On-line detekce prostorového rozložení aktivity sorbovaných radionuklidů v puklině (např. po dynamickém experimentu).

- **Stopovač**

Látka, používaná ke stopovacím zkouškám.

- **Stabilní stopovač**

Látka, používaná ke stopovacím zkouškám tvořená pouze stabilními izotopy daného prvku. Detekce je odvozena od typu látky (např. iontově selektivní elektroda, AAS, ICP-MS apod.)

- **Radioaktivní stopovač**

Látka, používaná ke stopovacím zkouškám tvořená pouze radioaktivními izotopy daného prvku. Detekce je odvozena od typu radionuklidu (např. kapalinová scintilační spektrometrie, gama-spektrometrie apod.)

- **Měření on-line**

Kontinuální záznam měřené veličiny (např. vodivost, aktivita) v průběhu experimentu v laboratoři.

- **Měření off-line**

Sbírání diskrétních frakcí kapaliny na výtoku (případně i na vstupu) v průběhu experimentu a následná analýza veličiny na odpovídajícím přístroji dle typu studované látky (např. AAS, ICP-MS, kapalinový scintilační spektrometr) v laboratoři.

- **Měření in-situ**

Měření v terénu či v podzemní laboratoři. Možné jsou oba typy měření (on-line i off-line).



1. Cíl metodiky

Antropogenní činnosti kromě produktů a vymožeností pro člověka s sebou přinášejí také produkci odpadů či cizorodých látek, které mohou významným způsobem ovlivnit člověka i životní prostředí. Radioaktivní odpady se od ostatních odpadů odlišují zejména tím, že po určité době přestávají být radioaktivní v důsledku samovolné přeměny radionuklidů na stabilní izotopy jednotlivých prvků. Na druhou stranu i velmi malé množství některých radionuklidů, které se dostanou do životního prostředí, může být velmi nebezpečné a ohrozit zdraví člověka či negativně ovlivnit životní prostředí (Vokál, 2012). Skutečnou nebezpečnost radionuklidů je nutno počítat s uvážením jejich mobility, tj. schopnosti proniknout do životního prostředí. Vzhledem k legislativním požadavkům na prokazování bezpečnosti při činnostech se zdroji radioaktivního záření je procesům transportu a zadržení v horninovém prostředí věnována široká pozornost, především většinou na mezinárodní bázi, jako byly např. projekty EU FP6 FUNMIG - Fundamental processes of radionuclide migration, FP7 CROCK - Crystalline rock retention processes (účast ÚJV Řež, a.s.) nebo v pracích Andersson a Persson (1985), Autio et al. (1998), Bear a Berkowitz (1987), Bodin et al. (2003a,b), Byegard et al. (1998), Detwilet et al. (2000), Gustafson et al. (2009), Harbaugh (2005), Hölttä (2002), Idemitsu et al. (1992), Ittner et al. (1990)m, Jakob (2004), Lever a Woodwark (1990), Lofgren et al. (2007), Mejiaz et al. (2009), Missana et al. (2006), Moreno et al. (1989, 1997), Neretnieks (1990), Poteri (2009), Roux et al. (1998), Skagius (1986), Tanaka et al. (2014), Tullborg a Larson (2006) a celá řada dalších prací. Tato metodika a i další práce, prováděné v rámci projektu TH02030543, představují pilotní práce tohoto druhu v ČR.

Transport radionuklidů ze zdroje směrem k životnímu prostředí je ovlivněn celou řadou faktorů, ke kterým patří vlastnosti migrující rozpuštěné látky (radionuklidy, těžké kovy), vlastnosti horniny, složení podzemní vody, vlastnosti horniny ve větším měřítku (hydraulická konduktivita, kinematická pórovitost, regionální a lokální hydraulické gradienty, výskyt poruchových zón, nepropustné polohy apod.). Difúzní transport je ovlivněn především efektivní a celkovou pórovitostí. Advektivní proudění podzemní vody v puklině je základním faktorem ovlivňujícím migraci rozpuštěných látek v puklinovém prostředí krystalických hornin. Avšak vycházet z toho, že hlavní transportní cesty lze stanovit pouze na základě simulací proudění v dané oblasti by mohlo být zkreslující. Při jejich stanovení je nutné brát v úvahu i migrační a retenční procesy, jako jsou sorpce v průtočné zóně (průtočné pukliny, průtočné póry), difúze do horninové matrice a do slepých pórů, sorpce ve slepých pórech a podobně – viz např. Lever a Woodwark (1990), Lofgren et al. (2007), Autio et al. (1998), Tullborg a Larson (2006) atd.

Transport radionuklidů či jejich analogů v horninovém prostředí lze sledovat pomocí extrapolace výsledků laboratorního studia, in-situ experimentů, modelování či studia přírodních analogů. Zásadní problém při hodnocení transportu radionuklidů v geologických formacích z hloubky úložiště do biosféry je časové měřítko. Doba setrvání v přirozené bariéře je pro mnoho radionuklidů řádově tisíce nebo dokonce miliony let. Dlouhodobé stopovací testy se obvykle provádí po dobu nejvýše několika let. Krátkodobé zkoušky mohou trvat hodiny až několik týdnů nebo měsíců.

Stanovení transportních parametrů puklin (např. rozevření, míra sorpce na puklinové minerály apod. či ověření modelových simulací se zahrnutím retenčních parametrů (sorpce, difúze) je



v reálném prostředí horninového masivu poměrně problematické, a to i např. z důvodu neznalosti podmínek, které panují hluboko v horninovém masivu.

Předmětem řešení projektu TH02030543 je tedy vytvořit fyzikální modely horninového prostředí (instrumentované horninové vzorky), na nichž by při definovaných okrajových podmínkách bylo možné provádět migrační experimenty s různými typy kontaminantů (např. radionuklidy, nanomateriály, těžké kovy), tyto migrační experimenty predikovat matematickými nástroji, jejich výsledek verifikovat na základě výsledků experimentů a následně definovat míru neurčitostí při získávání dat z těchto experimentů pro hodnocení bezpečnosti.

Cílem této metodiky je tedy vyvinout instrumentaci, laboratorní postup a vyhodnocení, kterým je možno sledovat parametry transportu v přirozené puklině v krystalické hornině s využitím radioaktivních stopovačů tak, aby bylo možné stanovit parametry pukliny a chování radionuklidů v puklině a výsledky využít zejména jako vstupy pro posouzení vlivu radionuklidů na člověka (bezpečnostní hodnocení) při jejich transportu směrem do životního prostředí. Doposud byl např. pro bezpečnostní hodnocení umístění HÚ ve vybrané lokalitě (Trpkošová et al. 2018) používán konzervativní přístup, kdy byla puklina v bezpečnostním výpočtu zjednodušena a byly použity pouze odhady vlastností pukliny (např. rozevření) a parametry, charakterizující pouze vlastnosti samotné mateční horniny, nikoli parametry pro minerální puklinové výplně. Jejich získáním se simulace procesů v horninovém prostředí stane realističtější.

Současně je možno instrumentaci a postupy využít pro verifikaci modelových případů pro transportní software, kdy je možno se zabývat neurčitostmi stanovení či citlivostní analýzou.

Metodika sestává z následujících kroků:

1. Příprava fyzikálního modelu
2. Charakterizace horninového vzorku a pukliny
3. Instrumentace laboratorní sestavy pro stopovací experimenty
4. Průnikové experimenty se stabilním stopovačem
5. Průnikové experimenty s radioaktivním stopovačem
6. Vyhodnocení



2. Vlastní popis metodiky

2.1. Příprava experimentu

2.1.1. Seznam přístrojů a pomůcek

Pro charakterizaci horninového vzorku a pukliny:

- Řezání a formátování vzorků: přesná laboratorní pila např. CUTLAM 1.1, diamantový kotouč 254 mm (LAMPLAN SA)
- Hustota/porozita: laboratorní váhy s automatickým záznamem např. AND GH-25, Preciza GH-252
- Sušárna: např. Memmert
- Propustnost: laboratorní čerpadla (GDS), isokratické HPLC čerpadlo např. LCP5020
- Difúzní cely: pracovní postup ÚJV PP 213-04
- Laboratorní odstředivka: např. MPW-352/R/RH (MPW Med. Instruments)
- Měření aktivity: automatický gama čítač Wizard 2480 (PerkinElmer)
- kapalínový scintilační spektrometr Hidex 300SL (HIDEX)
- Anaerobní rukavicové boxy: Jacomex GP concept, MB200B (MBraun)
- RTG analýza: práškový rtg difraktometr např. Bruker D8 Advance v Bragg-Brentanově (ČGS)
- Rentgenový výpočetní mikrotomograf (μ CT) (např. Nikon XTH225ST)
- Software pro zpracování dat z μ CT měření (např. Avizo)
- Aparatura pro měření koeficientu transmisivity na horninovém vzorku s puklinou
- 2 ks laboratorních čerpadel udržujících konstantní tlak při měření transmisivity (např. GDS) spolu se softwarem pro měření a záznamenávání jeho výsledků (např. GDSLAB)

Pro měření sorpce:

- Drcení vzorků: čelistový drtič např. BB 200 (Retsch)
- Sítování: analytický síťovací stroj např. AS 300 (Retsch)
- Mletí vzorků: planetární kulový mlýn např. PM 200 (Retsch)
- Laboratorní odstředivka: např. MPW-352/R/RH (MPW Med. Instruments)
- Odběr vzorků: sběrač frakcí např. ECF2096 (ECOM)
- Čerpadla: peristaltické čerpadlo např. Masterflex Console Drive Model No. 752-57 smontované s hlavicí Easy Load II L/S Model No. 77201-60
- Měření aktivity: automatický gama čítač např. Wizard 2480 (PerkinElmer)
- kapalínový scintilační spektrometr např. Hidex 300SL (HIDEX)
- další pomocný laboratorní materiál např. membránové mikrofiltry 0,45 μ m (fy Milipore, Macherei-Nagel), mikropipety, PP centrifugační nádoby, zařízení na přípravu deionizované vody DEMIWA 5 ROSA, měření elektrochemických parametrů WTW 3630 včetně měřících elektrod aj.)



Pro migrační experimenty:

- Fyzikální model (horninový vzorek s puklinou uzpůsobený pro provádění stopovacích experimentů při nízkých průtocích)
- Isokratické HPLC čerpadlo pro nízké průtoky (např. INGOS)
- 2 ks tlakových čidel (např. JSP) spolu s měřicí a záznamovou ústřednou (např. MS6 - Comet)
- Kombinovaná iontově selektivní elektroda (např. THETA 90) spolu s měřicí a záznamovou ústřednou (např. GRYF) pro on-line detekci koncentrace stopovače
- Sběrač frakcí s trojcestným ventilem (např. GILSON)
- Analýza koncentrace nebo aktivity stopovače (např. AAS, ICP-MS, LSC, Gama Counter)
- On-line měření a 3D vizualizaci šíření radioaktivního stopovače (např. GeoPET, SPECT, Multikamerový detekční systém (PUV2021-38650)) a příslušný 3D rekonstrukční software
- Matematický modelovací program (např. MODFLOW/MT3D)

2.1.2. Příprava fyzikálního modelu s přirozenou puklinou

Výroba fyzikálního modelu s přirozenou puklinou je prvním krokem v celé metodice. Pro provádění migračních testů se používá neporušený horninový vzorek vrtného jádra, který je po naformátování instalován do experimentální cely. V takto zhotoveném fyzikálním modelu lze provádět experimenty s různými stopovacími látkami, a to i s radioaktivními, při současném dodržení radiační bezpečnosti pracovníků a celého pracoviště a zajištění požadavků pro optimální průběh experimentu.

Rozměry vzorku vycházejí z požadavků na studované parametry horninového vzorku (délka transportní cesty, reakční transport apod.), použité instrumentaci a podmínek/požadavků měřících technik např. GeoPET, μ CT (např. Kulenkampff et al. 2008, 2016, 2018; Lippmann et al. 2017; Svensson et al. 2019).

Navržená a ověřená experimentální cela je tvořena dutým válcem z polymethylmetakrylátu (PMMA) o vnitřním průměru 90 mm, do kterého je umístěn příslušný horninový vzorek s přirozenou puklinou. Po odvrtání jádra (nejlépe průměr 78 mm) a selekci vhodného úseku s neporušenou puklinou (Obr. 1), je vzorek naformátován do požadovaných rozměrů s délkou např. 10 cm (Obr. 2).

Dále je nutné utěsnit podélné spáry pukliny tmelem s optimálními vlastnostmi pro zamezení penetrace pryskyřice do pukliny během následného zalévání (Obr. 3). Takto upravený horninový vzorek je umístěn do PMMA válce opatřeného na obou koncích šroubením pro připevnění vík. Následně je tato sestava umístěna do upínacího zařízení, ve kterém se jednak vzorek vycentruje a zároveň se izolují podstavy vzorku od vniknutí pryskyřice (Obr. 4 vlevo). Používaná pryskyřice se vybírá hlavně s ohledem na její viskozitu a teplotu při tuhnutí. Aplikaci pryskyřice je někdy vhodné provádět po částech, zejména v případě, kdy je nutné vyplnit větší prostor mezi vzorkem a PMMA válcem. Po vytvrdnutí pryskyřice je vzorek důkladně očištěn od přebytečné pryskyřice (Obr. 4 vpravo), aby cela po utažení přírub dokonale těsnila. Systém je navržen s ohledem na bezpečnost a s minimálním mrtvým objemem. Víka obsahují dvě drážky pro kruhová těsnění (průměr např.

6,8 cm a 9,2 cm). Obě víka jsou opatřena závitovými prostupy, které jsou osazeny fitinkami pro připojení vstupních a výstupních hadiček během stopovacích experimentů (Obr. 5 vlevo).

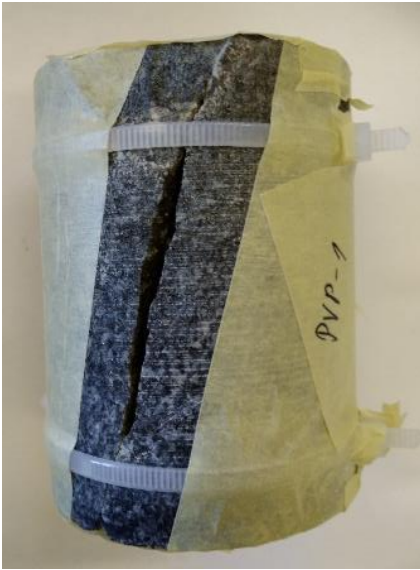
V rámci optimalizace (minimalizace mrtvého objemu mezi víky a horninovým vzorkem) je též možné nahradit příruby souvislou vrstvou pryskyřice, ve které je následně zhotoven bodový vstup a výstup do pukliny pro napojení hadiček pomocí vytvořeného závitů (Obr. 5 vpravo). Podrobný postup přípravy vzorku s přirozenou puklinou je součástí zapsaného užitého vzoru č. 34977 „Zařízení pro provádění dynamických transportních experimentů ve formě stopovacích zkoušek při nízkých průtocích horninovým vzorkem s přirozenou puklinou“ (Jankovský et al. 2021).



Obr. 1 Část vrtného jádra s puklinou použitá pro výrobu fyzikálního modelu



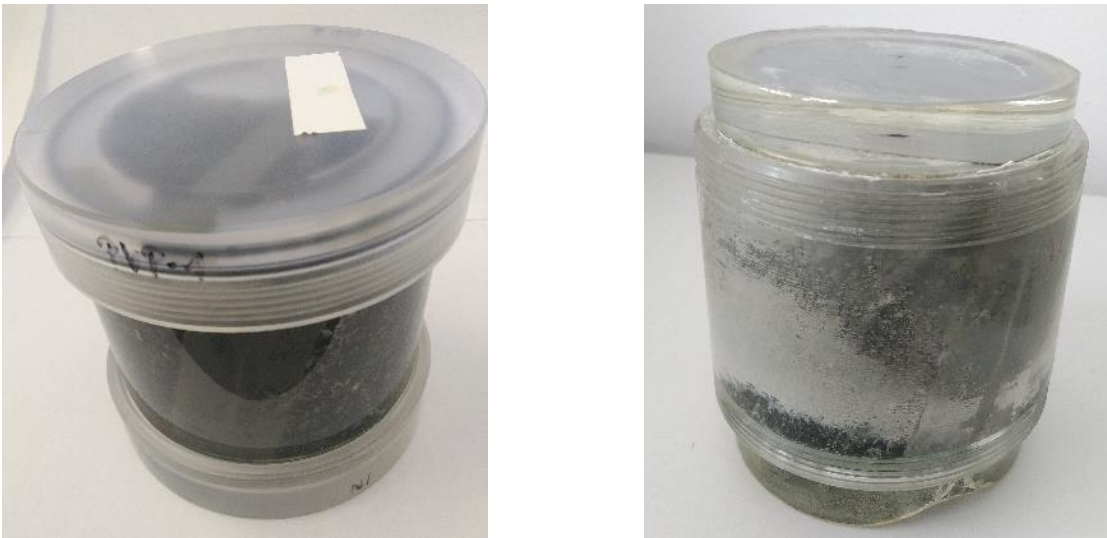
Obr. 2 Podstavy naformátovaného jádra s přirozenou puklinou (ideální rozměry 78 x 90 mm)



Obr. 3 Vlevo: příprava vzorku pro fixaci epoxidem, vpravo: zpevněný vzorek



Obr. 4 Vlevo: upínací zařízení pro zalévání vzorku pryskyřicí, vpravo: vzorek po vytvrdnutí pryskyřice



Obr. 5 Vlevo: hotový fyzikální model PVP-1 opatřený šroubovacími víky, vpravo: optimalizovaný fyzikální model s minimalizovaným mrtvým objemem

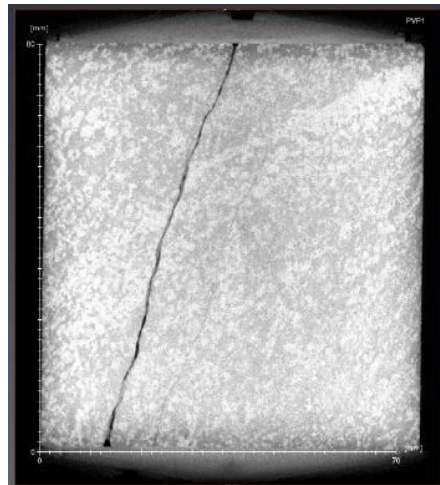
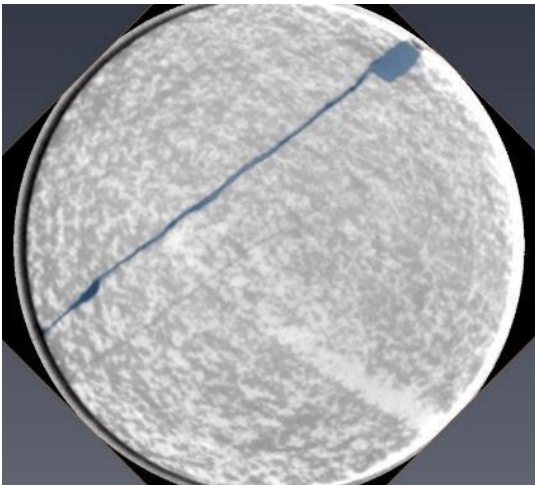
2.1.3. Charakterizace horninového vzorku a pukliny

2.1.3.1. Charakterizace vnitřní struktury pukliny

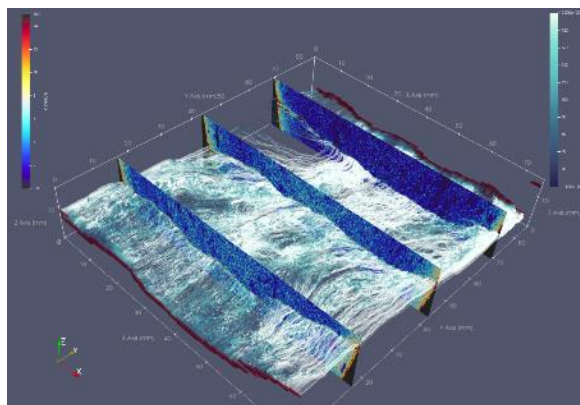
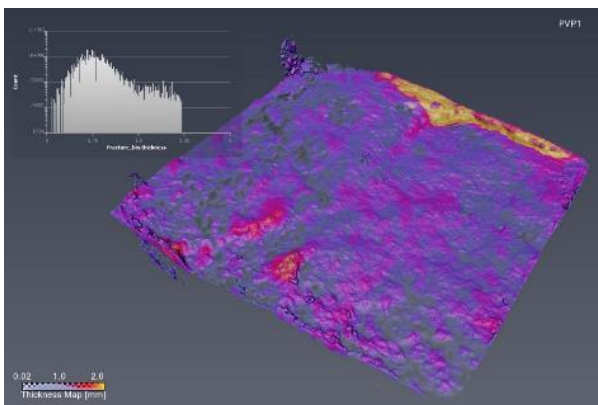
Charakterizace vnitřní struktury pukliny představuje základní krok pro vytvoření geometrického modelu pukliny, který následně slouží pro vyhodnocení (simulaci) experimentálních výsledků pomocí matematických modelovacích nástrojů (viz kap. 2.2.5).

Záznam vnitřní struktury vzorku a charakterizace pukliny lze provádět např. pomocí rentgenové výpočetní mikrotomografie (μ CT) (např. Nikon XTH225ST, HZDR, Lipsko). Typické rozlišení měření se s ohledem na velikost vzorku (např. 7,9 x 8,0 cm) a využití zařízení, pohybuje okolo hodnoty 50 μ m. Pro měření horninových vzorků s puklinou pomocí μ CT, je potřeba veškerou instrumentaci fyzikálních modelů provádět bez použití kovových součástí. Zároveň je vhodné, aby byl měřený fyzikální model plně saturovaný kapalinou (např. syntetickou podzemní nebo demineralizovanou vodou). Pro transformaci měřených CT dat do modelové sítě a vytvoření odpovídajícího geometrického modelu pukliny je třeba řady dílčích kroků, které jsou popsány podrobně ve zprávě Jankovský et al. (2020).

Ilustrativní náhled hustotních map měřeného vzorku v příčném a podélném řezu je uveden na Obr. 6. Výsledná segmentovaná puklina vzorku pomocí programu Avizo spolu s histogramem četnosti rozevření je znázorněna na Obr. 7 vlevo. Segmentovaná puklina je následně převedena do pravoúhlé strukturované diskretizační sítě pro následné modelování transportního procesu (např. v programu MODFLOW/MT3D), jak je uvedeno na Obr. 7 vpravo.



Obr. 6 Ilustrativní zobrazení příčného a podélného řezu mikro-CT záznamu vzorku s puklinou



Obr. 7 Vlevo: Segmentovaná puklina měřeného vzorku programem Avizo, vpravo: Rychlostní mapa šíření kontaminantu v puklině v programu MODFLOW/MT3D

2.1.3.2. Geochemické charakteristiky vzorku a puklinové výplně

Důležitým faktorem pro studium transportních parametrů je složení horninové matrice a samotné pukliny. Rozhodujícími parametry určujícími pokles a retardaci koncentrace radionuklidu v roztoku při průchodu horninovým vzorkem jsou následující procesy:

- rozpustnost daného prvku
- sorpce na horninovou matrici a puklinovou výplň
- disperze/difúze do horninové matrice

Pro popis těchto procesů musíme znát ještě další vedlejší parametry. Z vlastností horniny, které jsou důležité pro migraci látek v hornině, je možno specifikovat následující:

- mineralogické a geochemické složení horniny/puklinové výplně
- porozita horninové matrice
- hustota horniny
- rozevření (apertura) pukliny
- hustota a délka puklin
- transmisivita



- distribuce napětí v hornině
- hydraulická vodivost horniny
- složení podzemní vody

Pro stanovení těchto parametrů je využíváno celé řady metod a přístupů. Pro studium sorpčních parametrů horniny je vhodné odebrat vzorek, který leží v těsné blízkosti zájmového úseku vrtného jádra určeného pro výrobu fyzikálního modelu s přirozenou puklinou, např. odřezky z formátování vzorku. Hornina je následně nadrcena a rozšívána na vybrané frakce. Část vzorku je po kvartaci využita pro geochemické analýzy, vsádkové (batch) sorpční experimenty a vybrané části s puklinou pro detailní charakterizaci pukliny (např. SEM analýza výbrusu). Sorpční chování je následně kvantifikováno pomocí vyhodnoceného parametru sorpční distribuční koeficient (Kd), který odráží schopnost sorpce daného stopovače na pevnou fázi (horninovou matici, puklinovou výplň).

Dalším nezbytným krokem je určení chemismu a sorpční charakteristiky puklinové výplně. Pukliny jsou běžně vyplněny např. jílovými minerály, kalcity, chlority aj. sekundárními minerály, jejichž charakter často ovlivňuje sorpční vlastnosti studované poruchy.

Dalším vhodným parametrem je vyhodnocení kationtové výměnné kapacity horninového materiálu (CEC) a může poskytnout relevantní informace o sorpci radionuklidů na granitické horniny, např. informace o mechanismu sorpce radionuklidů nebo o dominantních sorbentech ve struktuře horninové matrice. CEC a obsazení kationtů na výměnných místech je možné stanovit např. na základě certifikované metodiky č. j. SÚJB/ONRV/15452/2014 (Červinka, 2014).

Další vhodný parametr je specifický povrch, který lze měřit pro jednotlivé frakce horniny a puklinové výplně. Měření distribuce pórů a specifického povrchu je možné provádět např. na přístroji Micromeritics 3Flex a ASAP 2020. Tento typ přístroje je převážně využíván pro měření adsorpční izotermy N₂ (adsorpční izoterma – závislost adsorbovaného množství složky na jejím tlaku nad pevnou látkou za konstantní teploty). Z této závislosti se pak získává specifický povrch mezopórů pomocí např. metody BET. Pro měření malých povrchů (kolem 1 m² g⁻¹) se využívá jako adsorpční plyn krypton.

Další ovlivnění transportního procesu je způsobeno alterovanou horninou na kontaktu poruchové zóny (puklina/hornina), která přispívá k vyšší difúzi roztoků do horninové matrice a tím zvyšuje retardaci stopovače. Pro získání difúzních parametrů jsou využívány difúzní experimenty např. dle pracovního postupu ÚJV PP 2402.03. Stanovení celkové pórovitosti jednotlivých vzorků je nezbytné pro vyhodnocení efektivních difúzních koeficientů (De). Pórovitost hornin je možno studovat celou řadou metod. Jednou z nich je např. metodika stanovení pórovitosti metodou nasycení vodou a osychání Melnyk a Skeet (1986). Tuto metodiku je možno využít jako srovnávací postup ke klasickému postupu měření metodou rtuťové porozimetrie (Havlová et al. 2018). Sofistikovanější metoda studia pórového prostoru je např. pomocí metody C-14 PMMA, která spočívá v nasycení vzorků polymethylmethakrylátovou pryskyřicí, označenou C-14 (Voutilainen et al. 2019). Alterovanou zónu je možné dále studovat např. pomocí SEM analýzy (Tachi et al. 2018) a 3D vizualizace pórového prostoru např. pomocí konfokální mikroskopie (Zuna et al. 2017).



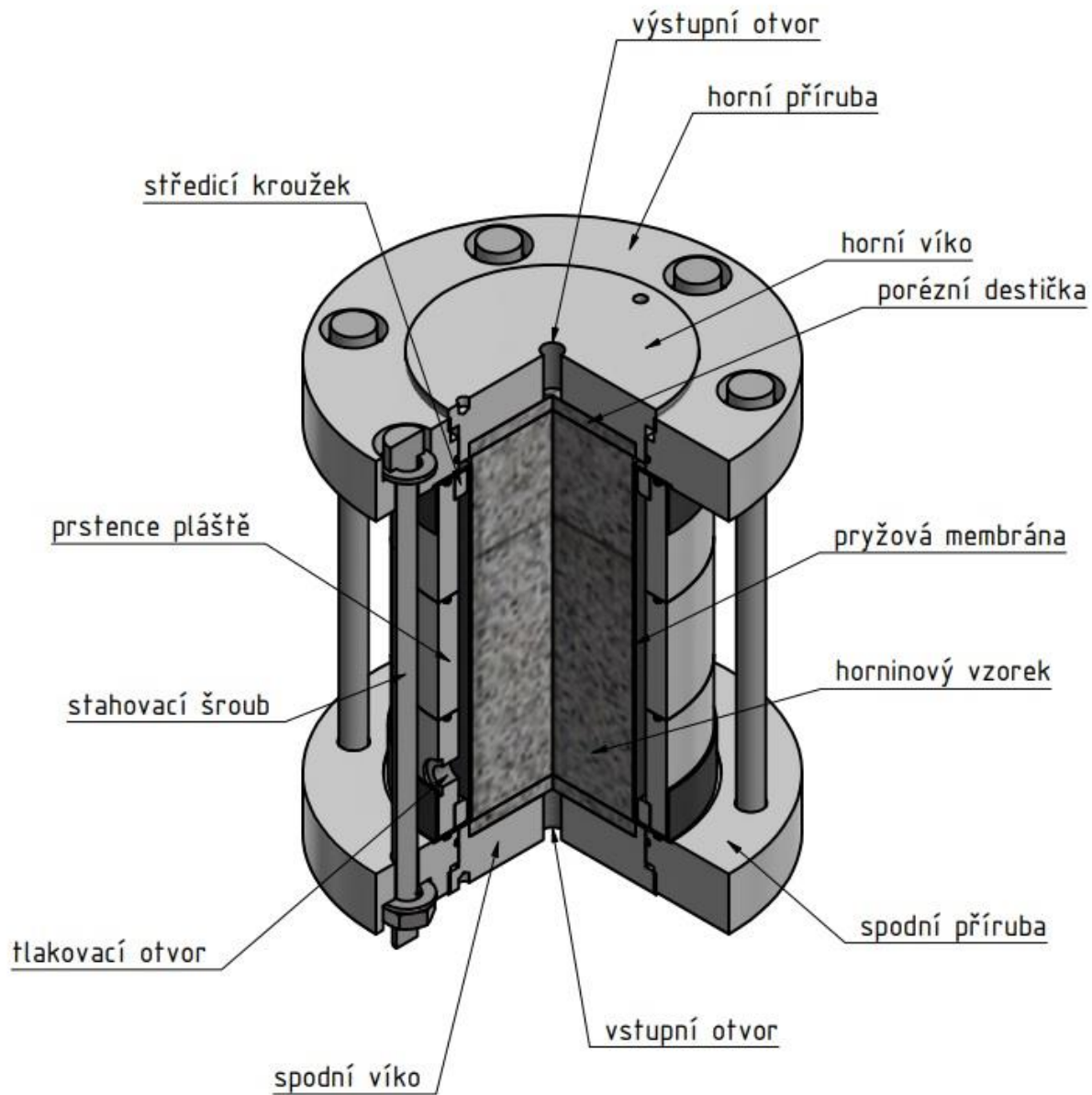
Detailní popis stanovení všech těchto parametrů a jejich vyhodnocení je nad rámec této metodiky. Použité postupy a metody je možné nalézt např. Klajmon et al. 2017; Zuna et al. 2017; Havlová et al. 2018. Získané parametry a hodnoty jsou následně využívány pro optimalizaci a validaci matematických modelů (viz kap. 2.2.5).

2.1.3.3. Stanovení koeficientu transmisivity (průtočnosti)

Před finálním vytvořením fyzikálního modelu je účelné zjistit, do jaké míry je zkoumaný vzorek propustný pro vodu. K tomuto účelu se používá optimalizovaná aparatura pro měření koeficientu transmisivity (T). Jeho výsledná hodnota charakterizuje míru schopnosti horninového tělesa propouštět vodu. Vyjadřuje se v $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ a je měřítkem využitelnosti zvodnělého kolektoru pro jímání vody. Koncept vyrobené aparatury vychází z normy ČSN EN ISO 17892-11 (Část 11: Stanovení propustnosti).

Zmíněné zařízení je tvořeno experimentální celou (Obr. 8), ve které je napnuta membrána z butylové pryže, jejíž konce jsou převlečeny přes okraje válce. Na válec jsou z obou stran nasazeny příruby, které jsou k sobě staženy přes nasazenou membránu závitovými tyčemi, čímž dojde k utěsnění válce. Podtlakem, který je v komoře vytvořen pomocí připojené vývěvy, dojde k roztažení membrány, do které je poté možno jednoduše vložit horninový vzorek s puklinou (Obr. 9). Vývěva je následně odpojena, čímž dojde k uchycení vzorku do membrány. Aby nedošlo k zaškrcení membrány, je nutné před a za horninový vzorek vložit dostatečně dlouhá mezikruží z pevného materiálu. Aparatura je poté z obou stran naplněna vodou. Do komory je pomocí připojené tlakové lahve zaveden stlačený vzduch. K podstavám aparatury jsou připojena laboratorní čerpadla (GDS), která jsou schopna udržovat stálý tlak vody a zároveň měřit proteklý objem s vysokou přesností a citlivostí. Kompletní aparatura je zobrazena na Obr. 10. Popis aparatury je uveden ve zprávě Jankovský et al. (2019).

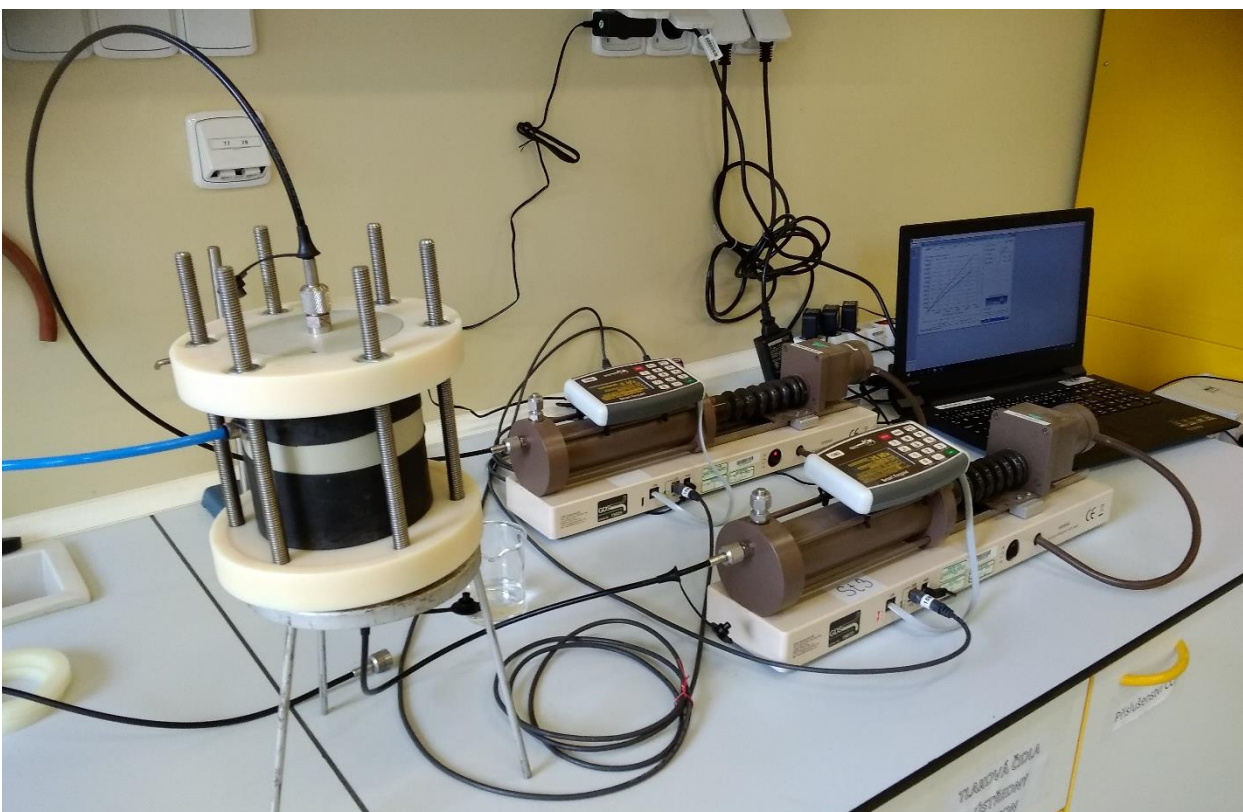
Schéma experimentální cely pro měření transmisivity



Obr. 8 Technický náčrt experimentální cely pro měření transmisivity



Obr. 9 Vlevo: pohled do vnitřního prostoru experimentální cely s napnutou pryžovou membránou a porézní destičkou, vpravo: experimentální ceta s vložených horninovým vzorkem s puklinou



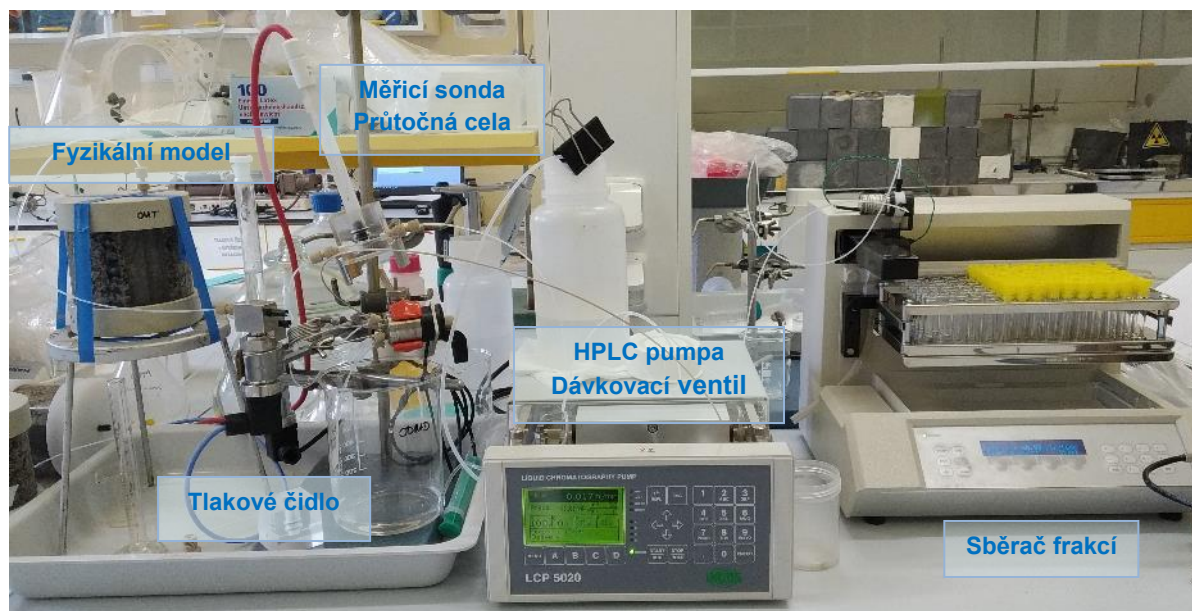
Obr. 10 Optimalizovaná aparatura pro měření koeficientu transmisivity v laboratorních podmínkách

2.1.4. Migrační experimenty se stabilními stopovači

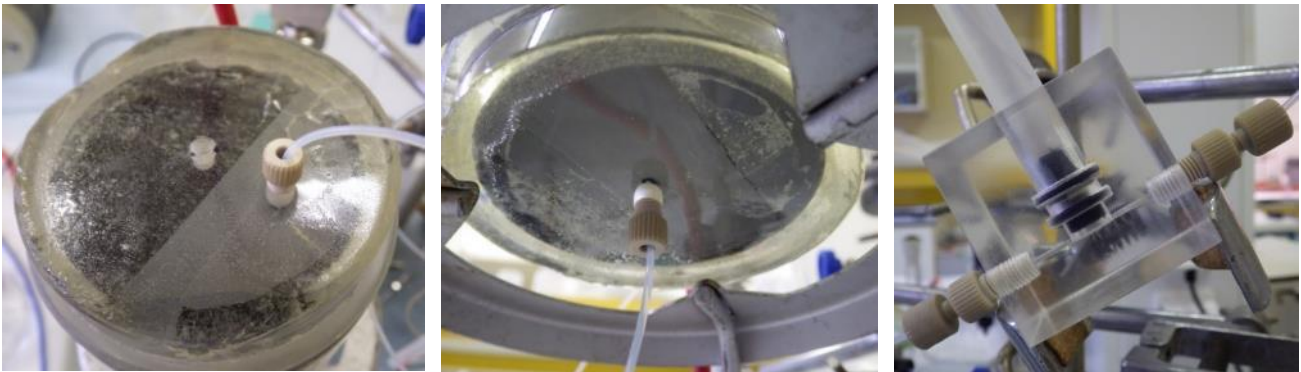
Stopovací zkoušky se stabilními stopovači se používají pro optimalizaci nastavení podmínek experimentu s radionuklidy (např. koncentrace a množství stopovače, průtok, odebírané množství vzorku, tlakový gradient aj.).

Optimalizovaná laboratorní sestava (Obr. 11) umožňuje provádět stopovací testy při velice nízkých průtocích (od 1 ml.hod⁻¹). Veškeré rozvody pro přívod média a stopovací látky do vzorku jsou vyrobeny z vysokotlakých hadiček (PEEK) s minimální sorpcí o vnitřním průměru max. 0,5 mm (Obr. 12). Další součástí sestavy je přesné HPLC čerpadlo (např. LCP 5020 od firmy INGOS), ke kterému je připojen šesticestý ventil s dávkovací smyčkou dle zvoleného objemu stopovače (např. model C1 od firmy VICI). On-line záznam tlaku je zajištěn tlakovými čidly (např. DMP 331 od firmy JSP) připojenými k měřicí ústředně (např. MS6R od firmy Comet) a umístěnými na vstupu a výstupu z fyzikálního modelu.

Průniková křivka koncentrace stopovače je měřena on-line pomocí vhodné kombinované iontově selektivní elektrody (např. od firmy THETA 90), která je umístěna ve speciálně zkonstruované průtočné cele vyznačující se minimálním mrtvým objemem (Obr. 12 vpravo). Uvedené elektrody měří on-line koncentraci vybraných aniontů (např. I⁻, Br⁻) nebo kationtů (např. Pb²⁺) na výstupu ze vzorku a vyjadřují se v příslušných jednotkách (mol.l⁻¹ nebo mg.l⁻¹). Experimentální sestavu lze pro odběry malých objemů vzorků a následné off-line analýzy vybraných iontů doplnit o sběrač frakcí s trojcestným ventilem, viz Obr. 11 (např. FC 203B od firmy GILSON). Koncentrace vybraných kationtů (mol.l⁻¹; např. Na⁺, K⁺, Pb²⁺) je možné laboratorně stanovovat např. pomocí atomové absorpční spektrometrie (např. SavantAA od firmy GBC Scientific Equipment) a anionty (např. Cl⁻, I⁻, Br⁻) pomocí kapilární elektroforézy (např. 7100 CE od firmy Agilent).



Obr. 11 Experimentální sestava pro stopovací experimenty se stabilními stopovači



Obr. 12 Vlevo a uprostřed: připojení fyzikálního modelu do měřicí sestavy, vpravo: detail průtočné cely s redukováným mrtvým objemem – měřicí on-line elektroda (např. ISE-Pb²⁺)

2.1.5. Migrační experimenty s radionuklidy

Výběr vhodného stopovače (radionuklidu) závisí na požadavcích daného typu experimentu (např. transport, reakční transport - sorpce, difúze aj.). Pro simulaci advektivního transportu v puklině je vhodnější použití konzervativních nesorbujících se stopovačů, které simulují proudění vody (např. HTO či aniontových forem RN). Pro studium reaktivního transportu je možné použít radioizotopů slabě se sorbujících (např. ²²Na, ²⁴Na, ⁸⁵Sr) nebo silně se sorbujících (např. ^{154,155}Eu, ²³⁸Pu, ⁶⁰Co) prvků.

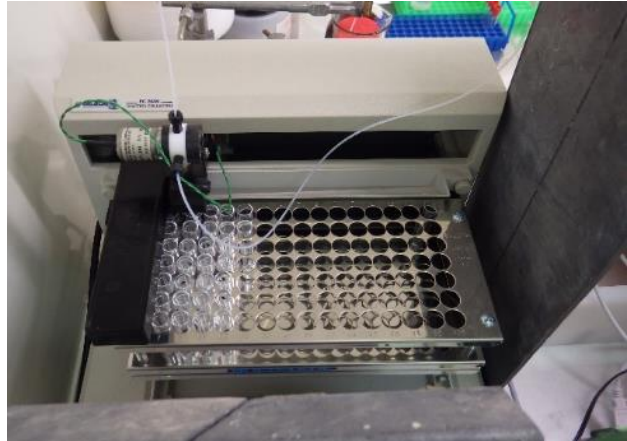
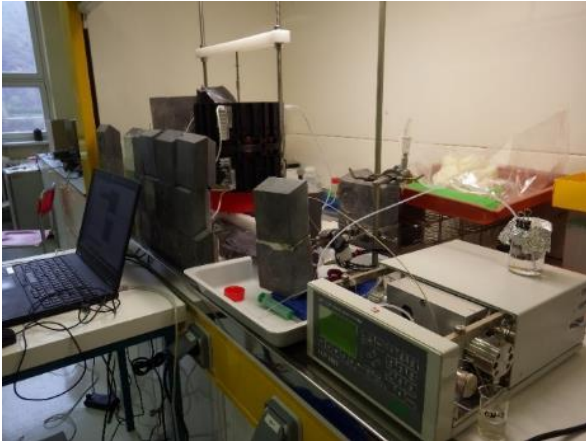
Pro experimenty na horninových vzorcích je také výhodné využít krátkodobé radionuklidy (např. ¹⁸⁸Re, ¹⁶⁶Ho, ¹⁸F), především s ohledem na opakovatelnost měření za stejných podmínek (vyměření aktivity), produkci RAO (krátkodobé radionuklidy vedou k minimalizaci tvorby RAO) a možnost využití vyšších aktivit.

Navržená experimentální sestava pro migrační experimenty s radionuklidy vychází z instrumentace popsané v předchozí kap. 2.1.4. Optimalizovaný sběrač frakcí je uzpůsobený pro odběry vzorků v definovaných časovaných intervalech. Při použití radionuklidu emitujícího záření beta (např. HTO - ³H ve formě tritiové vody) se odebrané vzorky po přidání scintilačního koktejlu analyzují pomocí LSC (kapalinového scintilačního spektrometru, např. HIDEX 300 SL od firmy HIDEX Oy).

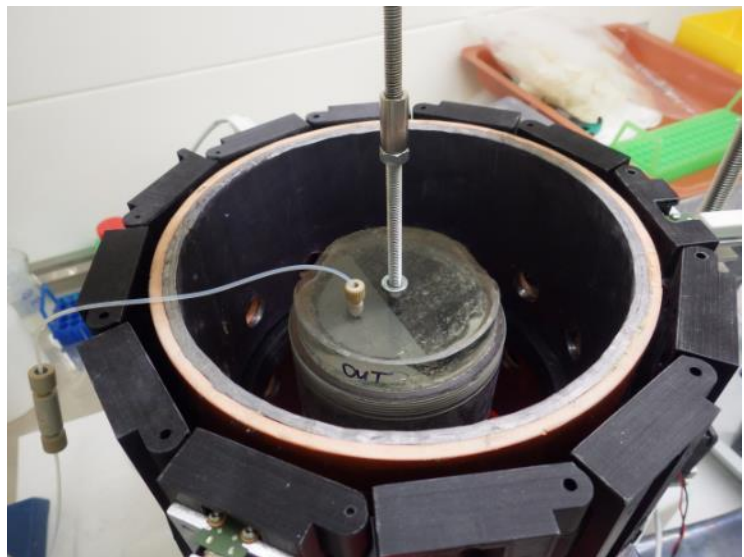
Při použití radionuklidu emitujícího záření gama (např. ¹⁸⁸Re) jsou odebrané vzorky měřeny pomocí gama čítače s NaI(Tl) detektorem (např. Wizard 2480 Automatic Gama Counter). Naměřené výsledky v jednotlivých odběrech jsou využity pro konstrukci průnikové křivky, které mohou být použity nezávisle či kombinovat s on-line záznamem (např. pomocí iontově selektivní elektrody ISE).

Uvedená měřicí sestava může být navíc doplněna o multikamerový detekční systém umístěný na rotačním stolku (Obr. 13 a Obr. 14), který byl vyvinut v rámci MPO projektu „Využití krátkodobých RAdiostopovačů a vývoj jejich DEtekčních METod pro popis procesů, ovlivňujících transport kontaminantů v životním prostředí“ (RADEMET, FV30430). Příhlaška užitečného vзору „Komplexní systém pro sledování migrace radionuklidů v horninovém prostředí“ je na Úřadu průmyslového vlastnictví vedena pod číslem PUV2021-38650. Ten umožňuje on-line detekci migrace radionuklidu puklinou. Data z měření je možné následně zpracovat pomocí 3D rekonstrukčního softwaru pro studium rozložení aktivit v horninovém vzorku, tj. vizuálního sledování transportní

cesty v puklině. Celý postup měření a vyhodnocení dat je detailně popsán ve zprávě Zuna et al. (2020).



Obr. 13 Měřicí sestava s čerpadlem a sběračem frakcí pro měření v dynamickém módu



Obr. 14 Vlevo: multikamerový detekční systém na rotačním stolku s uspořádáním detektorů ve dvou patrech, vpravo: fixace fyzikálního modelu během migračního experimentu

2.2. Měření a vyhodnocení výsledků

2.2.1. Koeficient transmisivity (T)

Pro stanovení koeficientu transmisivity pukliny je použita aparatura, jejíž funkce je popsána v kap. 2.1.3.3. Výsledky měření jsou využity pro nastavení podmínek migračního experimentu a pro modelování transportních procesů (hraniční podmínky).

Postup měření a vyhodnocení dat vychází z normy ČSN EN ISO 17892-11. Pomocí dvojice čerpadel je nastaven optimální hydraulický spád, který je pro každý horninový vzorek unikátní a

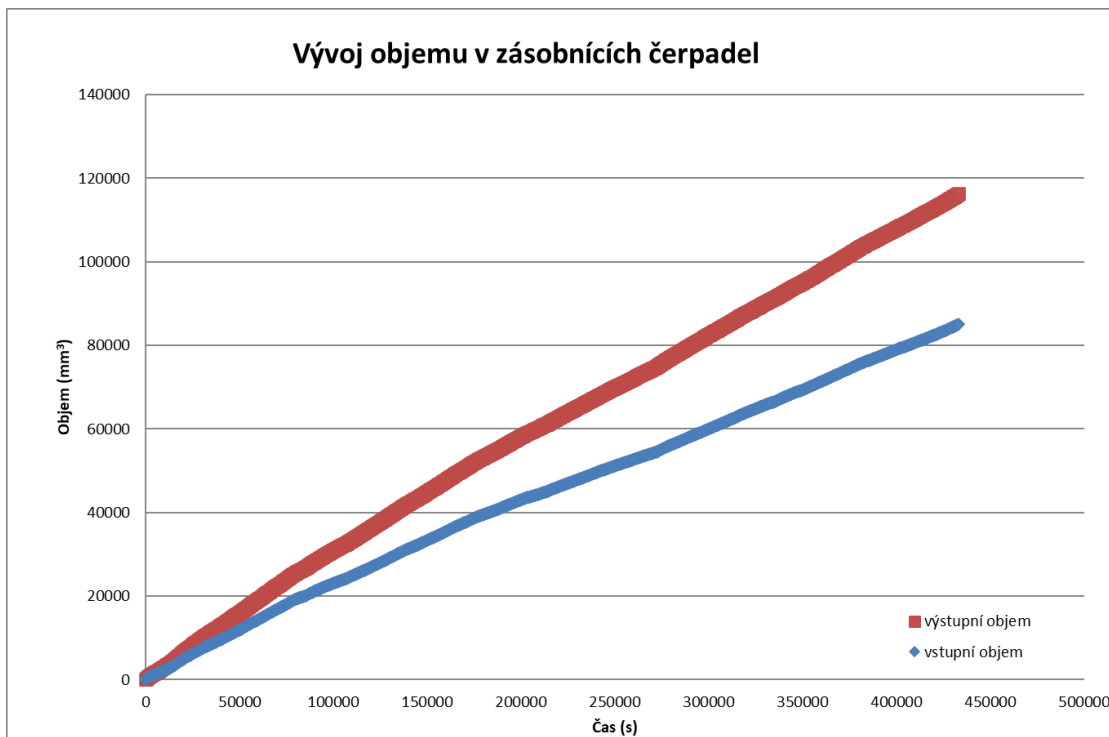


úzce souvisí s mírou rozevření pukliny. Tlak vzduchu v komoře musí být dostatečně velký na to, aby nedocházelo k podtékání tlakové vody mezi membránou a měřeným vzorkem. Během experimentu jsou průběžně v čase pomocí softwaru GDSLAB zaznamenávány hodnoty objemu vody v obou čerpadlech a tlak vody před a za experimentální celou (Tab. 1). Ilustrativní grafické znázornění vývoje objemu v zásobních čerpadel GDS na vstupu a výstupu z experimentální cely je uvedeno na Obr. 15.

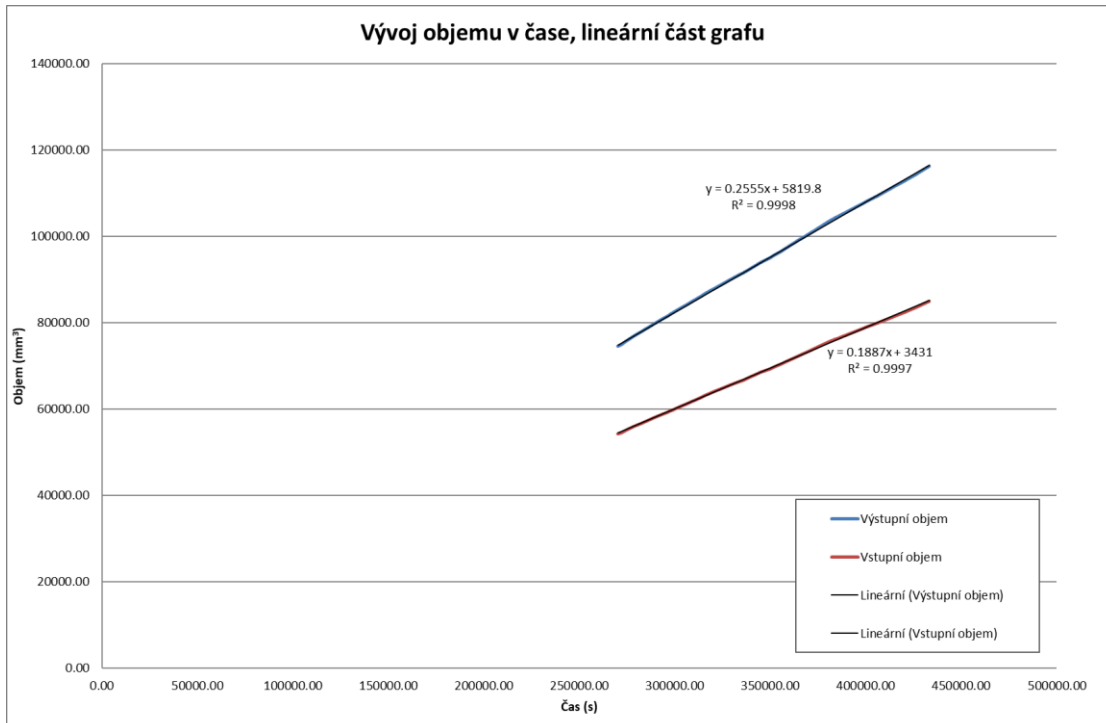
Při vyhodnocování změřených dat je nutné sledovat tvar vstupní a výstupní křivky, které jsou během experimentu vynášeny do grafu softwarem GDSLAB. Pro výpočet se používá pouze lineární část grafu (Obr. 16). Na Obr. 17 je uveden výčet hodnot, které jsou nutné pro stanovení koeficientu transmisivity pukliny, případně související hodnoty jejího rozevření.

Tab. 1 Příklad vývoje objemu v zásobních čerpadel GDS pomocí softwaru GDSLAB při nastaveném tlakovém gradientu během měření transmisivity

Čas od zahájení testu (s)	Tlak na výstupu (kPa)	Objem na výstupu (mm ³)	Tlak na vstupu (kPa)	Objem na vstupu (mm ³)
0	0	14	74	12
300	0	181	74	103
600	0	336	74	204
900	0	440	75	287
1200	0	568	74	385
1500	0	676	74	470
1800	0	789	74	572
2100	0	902	75	655
2400	0	992	74	735
2700	0	1076	75	797
3000	0	1154	75	856
3300	0	1236	75	915
3600	0	1317	74	965



Obr. 15 Ilustrativní grafické znázornění vývoje objemu v zásobnících čerpadel GDS na vstupu a výstupu z experimentální cely



Obr. 16 Lineární část grafu vývoje objemu ve vstupním a výstupním čerpadle GDS



Transmisivita pukliny T ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) se vypočítá podle vztahu:

$$T = \frac{Q \times H}{L \times l}$$

kde Q je průtok vody vzorkem ($\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$), H je rozdíl tlakových výšek vody před a za vzorkem (m), L je délka pukliny (m), l je „těživa“ pukliny (m).

Z naměřených hodnot lze stanovit také odpovídající rozevření pukliny h (m), a to podle vztahu:

$$h = \left(\frac{12 \times Q \times L \times \mu}{g \times H \times l \times \rho} \right)^{\frac{1}{3}}$$

kde μ je dynamická viskozita vody ($\text{N} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-2}$), g je tíhové zrychlení ($\text{m} \cdot \text{s}^{-2}$), ρ je hustota vody ($\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$).

	na vstupu	průměr	na výstupu
Množství proteklé vody ΔV	30772 mm^3	36196.38 mm^3	41621 mm^3
Časový interval Δt	162900 s		
Průtok Q	1.89E-10 $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	2.222E-10 $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	2.555E-10 $\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$
Rozdíl vstupního a výstupního tlaku	75 kPa		
Rozdíl tlakových výšek H	7.65 m		
Délka pukliny L	0.0895 m		
Těživa pukliny l	0.0715 m		
Teplota provádění zkoušky T	21 °C		
Dynamická viskozita vody μ při T	9.775E-04 $\text{N} \cdot \text{s} \cdot \text{m}^{-2}$		
Hustota vody ρ při T	998.0 $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$		
Rozevření pukliny h	3.33E-06 m	3.52E-06 m	3.69E-06 m
Transmisivita T	3.09E-11 $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	3.64E-11 $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$	4.18E-11 $\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$
Nejistota měření	5.4E-12		

Obr. 17 Výčet vstupních hodnot potřebných pro stanovení koeficientu transmisivity

Příklady výsledných hodnot transmisivity a odpovídajícího rozevření pukliny zkoumaných vzorků jsou uvedeny v Tab. 2. Nejistota měření odpovídá rozdílu průměrné hodnoty transmisivity a hodnoty spočtené ze vstupní nebo výstupní křivky.

Tab. 2 Příklad výsledných hodnoty transmisivity a rozevření pukliny zkoumaných vzorků

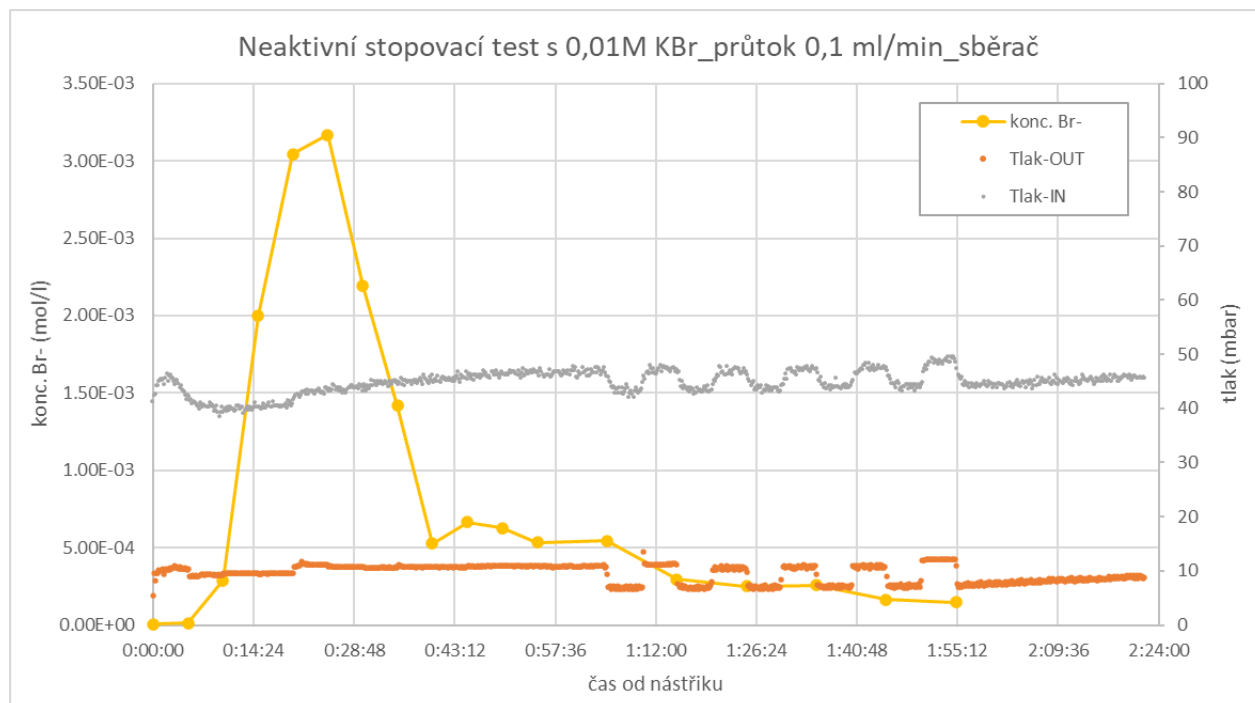
vzorek	transmisivita ($\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$)	nejistota měření	rozevření pukliny (mm)
FM-1	3.24E-08	3.78E-10	3.38E-02
FM-2	3.64E-11	5.40E-12	3.52E-03
FM-3	2.69E-12	9.10E-14	1.46E-03

2.2.2. Průnikové experimenty se stabilními stopovači

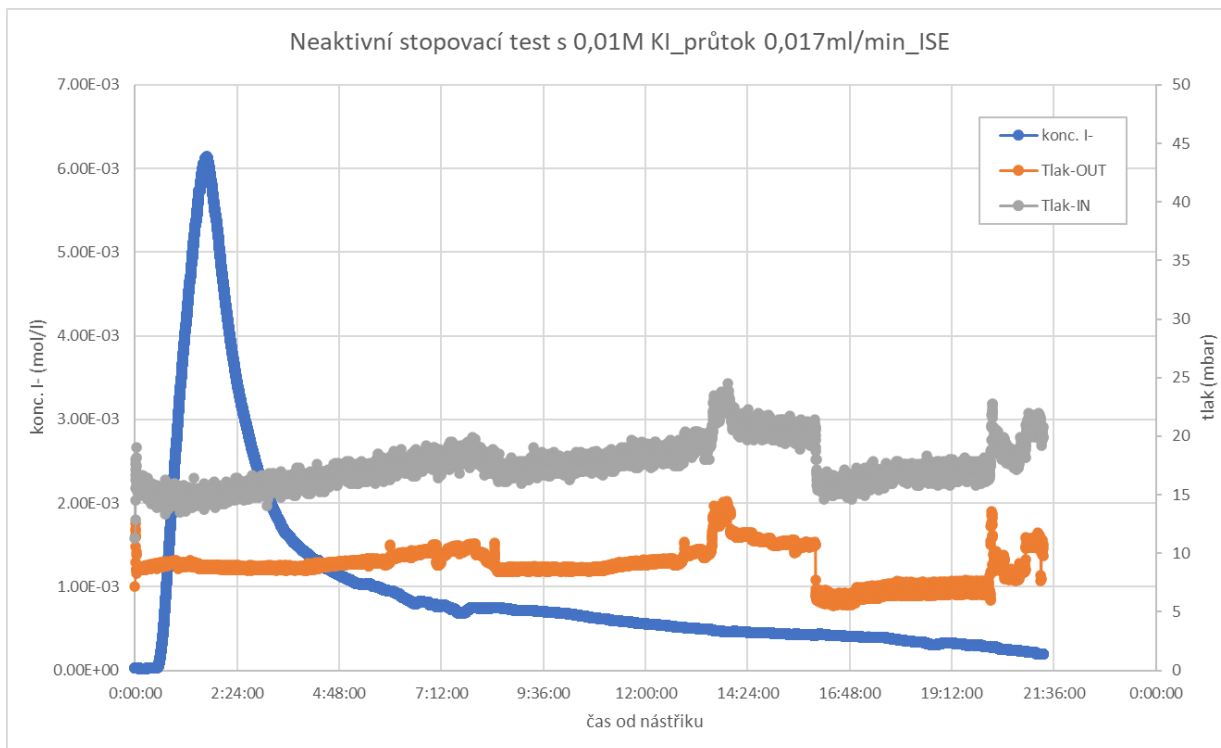
Dávkování stopovače při migračních experimentech je typicky zajištěno pomocí HPLC čerpadla s připojeným ventilem s dávkovací smyčkou požadovaného objemu. Před provedením samotných experimentů s radionuklidy, se nejprve uskuteční testy se stabilními stopovači pro optimální nastavení okolních parametrů (optimální průtok, dávkovací objem, tlakové poměry, koncentrace/aktivita stopovače, objem a čas trvání injektáže, čas proplachování aj.). Pro kontrolu bilance je vhodné přesné měření (vážení) objemu roztoku na vstupu a výstupu z experimentu. V průběhu testu se do ústředny zaznamenává tlak na vstupu a výstupu, průtok, on-line průniková křivka koncentrace stopovače (např. I⁻, Br⁻, Pb²⁺) a může být též prováděn odběr vzorků na výstupu pomocí naprogramovaného sběrače frakcí.

Důležitá je frekvence vzorkování, aby byla výsledná průniková křivka dostatečně reprezentativní. Při nedostatečné frekvenci může totiž dojít k chybě, kterou je např. tzv. aliasing, v překladu chyba ve vzorkování. Programovatelný sběrač frakcí umožňuje optimalizovat odběry v závislosti na průběhu průnikové křivky (např. objemy odebraného vzorku, frekvence odběru - různé časy odběru v závislosti na rychlosti nárůstu koncentrace stopovače tj. rychleji v nástupní části píku naopak pomaleji při konečné fázi proplachu).

Příklady výstupních průnikových křivek (BTC) společně s průběhem tlaků (vstup/výstup) ze stopovacích experimentů při různých průtocích jsou zobrazeny na Obr. 18 a Obr. 19. Při běžně aplikovaném minimálním průtoku při stopovacích experimentech (1 ml.hod⁻¹) dosahuje tlak na vstupu do vzorku cca 30 mbar a na výstupu cca 10 mbar. Při maximálním použitém průtoku (0,5 ml.min⁻¹) dosahuje tlak na vstupu cca 300 mbar a na výstupu cca 20 mbar.



Obr. 18 Ukázka průběhu průnikové křivky z neaktivního stopovacího testu (KBr; mol.l⁻¹) při průtoku 0,1 ml.min⁻¹



Obr. 19 Ukázka průběhu průnikové křivky z neaktivního testu (KI; mol.l⁻¹) při průtoku 0,017 ml.min⁻¹

2.2.3. Průnikové experimenty s radioaktivními stopovači

Nastavení parametrů experimentu (např. dávkovaná aktivita zdroje, dávkovaný objem, doba injektáže, průtok, frekvence sběru a objem vzorků, doba proplachu aj.) je provedeno na základě výsledků měření se stabilními stopovači (viz kap. 2.2.2).

Pro aktivní migrační experimenty jsou do pukliny pomocí dávkovacího ventilu injektovány roztoky vybraných radionuklidů (např. ¹⁸⁸Re, ¹⁶⁶Ho, ³H, ¹³¹I). Pro ředění zdrojových roztoků se používá např. syntetická podzemní voda, přírodní podzemní voda nebo demineralizovaná voda (Červinka a Gondolli 2016). Objemová aktivita injektovaného stopovače závisí na účelu prováděného experimentu. V případě, že výstupem měření je pouze průniková křivka, tak dostatečná objemová aktivita injektovaného stopovače je cca 1 MBq.ml⁻¹. Za předpokladu, že je součástí měření též on-line vizualizace časoprostorového šíření radioaktivního stopovače puklinou, tak se vstupní objemová aktivita pohybuje v řádu X00 MBq.ml⁻¹ (zvýšená aktivita je nutná z důvodu atenuace záření při prostupu horninou). Na výstupu jsou vzorky odebírány v pravidelných časových intervalech pomocí sběrače frakcí. Současně je změřena aktivita zdroje A₀ (počáteční aktivita).

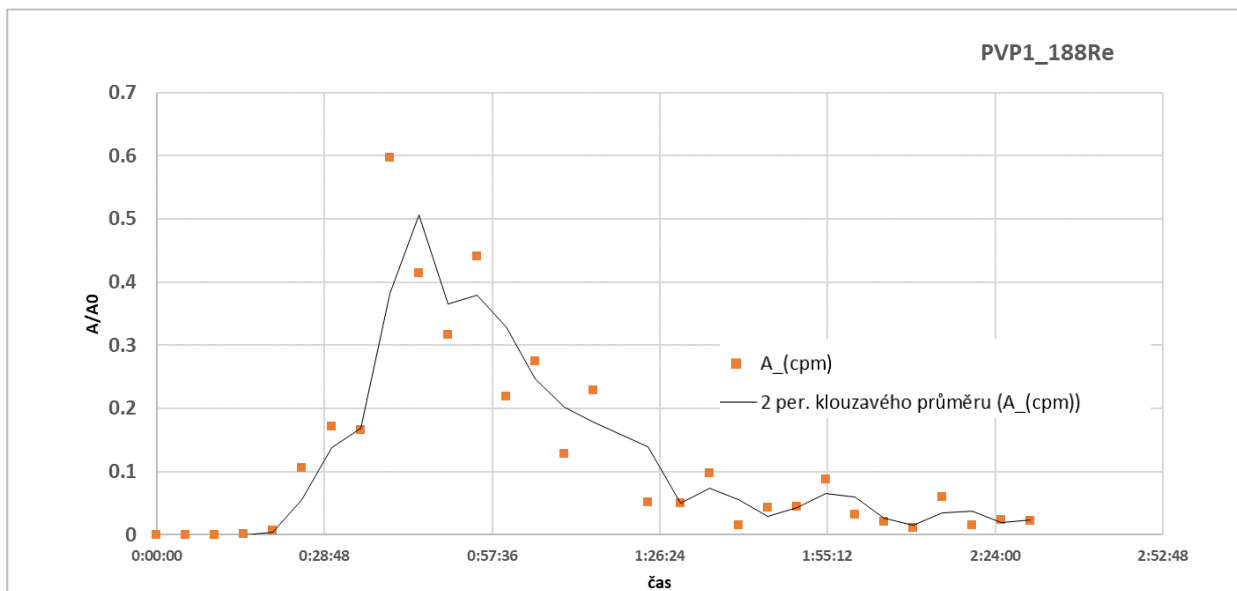
Odebrané vzorky pro off-line stanovení aktivity jsou analyzovány podle druhu emitujícího záření na LSC (beta zářič, + přídavek scintilačního koktejlu) nebo gama counteru (gama zářič).

Výsledná průniková křivka aktivity stopovací látky je vyjádřena v příslušných jednotkách (cpm nebo Bq.ml⁻¹). Vhodnou formou vyjádření výsledků měření je poměr naměřené aktivity ve vzorcích / počáteční aktivitě zdroje (A/A₀), viz Obr. 20. Na základě injektované aktivity a měření proteklé aktivity na výstupu je spočtena celková bilance, která může být ovlivněna procesy retardace (viz kap. 2.2.4).

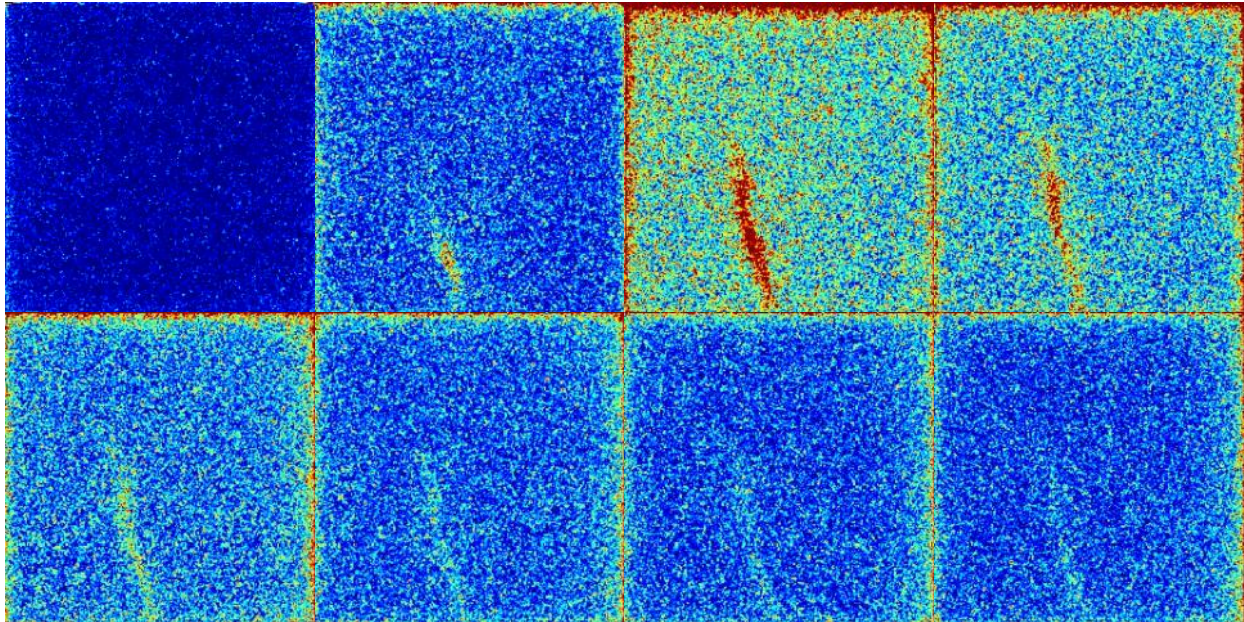
Pro on-line měření a 3D vizualizaci časoprostorového šíření radionuklidu puklinou je možné využít např. GeoPET (Kulenkampff et al. 2008, 2016, 2018), SPECT (Zoul et al. 2019) nebo komplexní systém pro sledování migrace radionuklidů v horninovém prostředí PUV2021-38650 (Zuna et al. 2021). U dynamických experimentu je nutné sladit aktivitu zdroje, rychlost průtoku s časem snímání obrazu a počtem projekcí. Během dynamických experimentů je současně prováděn odběr vzorku na výstupu, popř. zajištěn on-line monitoring, pro výpočet celkové bilance experimentu. Po provedených dynamických experimentech je následně možné studovat sorpci daného radionuklidu v puklině (statické experimenty) s 3D rekonstrukcí obrazu (Zuna et al. 2021; Zoul et al. 2019).

V průběhu stopovací zkoušky byl využit multikamerový systém, který umožňuje vytvořit prstenec s maximálně 12 kamerami na patro. Pro výpočet prostorového rozložení aktivity je zapotřebí minimálně 24 projekcí. Postupy měření a hodnocení výsledků jsou uvedeny ve zprávě Zuna et al. (2021).

Pro ilustraci je na Obr. 21 uvedeno zobrazení vývoje měření detektory Timepix3 v čase, kde je patrný průnik ^{188}Re horninovým vzorkem. Zobrazovaným parametrem je počet pulzů na pixel. Před samotným měření je provedena kalibrace na umělé puklině ve statickém módu. Příklad 3D rekonstruované pukliny z experimentálně naměřených dat je uveden na Obr. 22. Z jejího průběhu lze usuzovat, zda na studovaném vzorku s puklinou dochází k migraci radionuklidu v rámci jejího celého povrchu, nebo je přednostně vázána na průtočné kanály s relativně vyšším rozevřením (channeling). Tuto informaci lze následně použít při zpřesnění vytvářeného modelu.

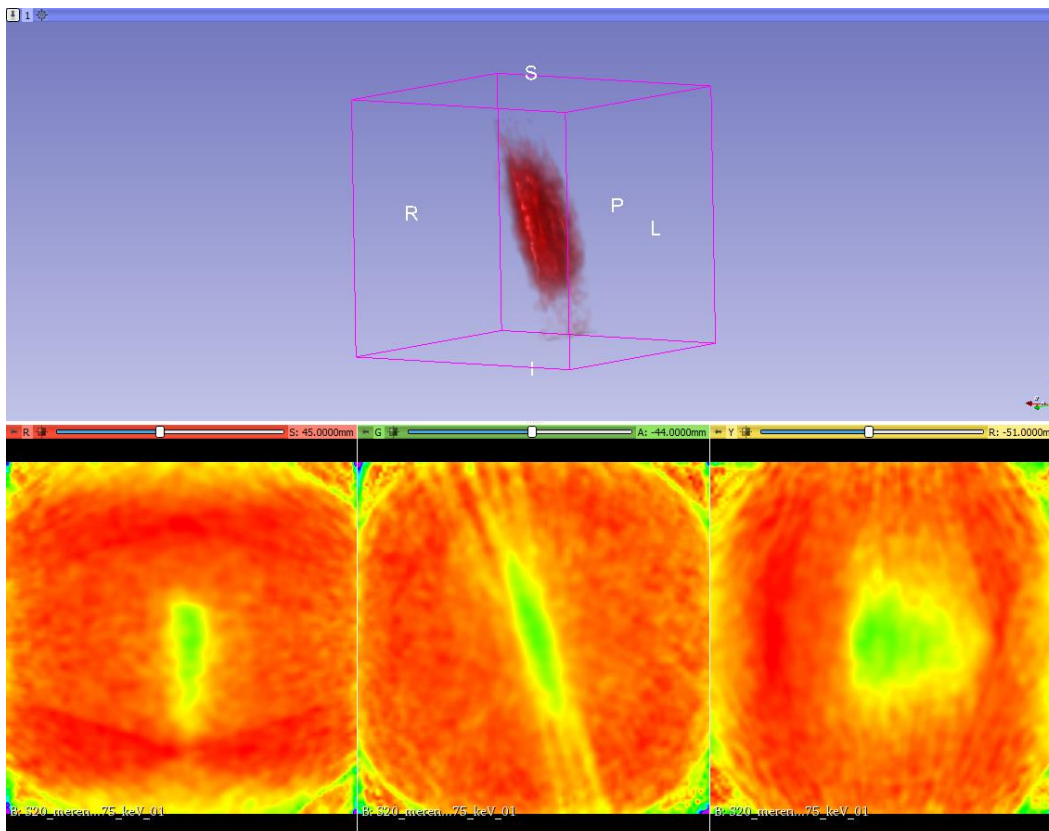


Obr. 20 Ukázka průběhu průnikové křivky ^{188}Re na výstupu ze vzorku s přirozenou puklinou vyjádřená v jednotkách A/A_0



Obr. 21 Ilustrativní obrázek vývoje průniku ^{188}Re horninovým vzorkem v čase pod úhlem 0°

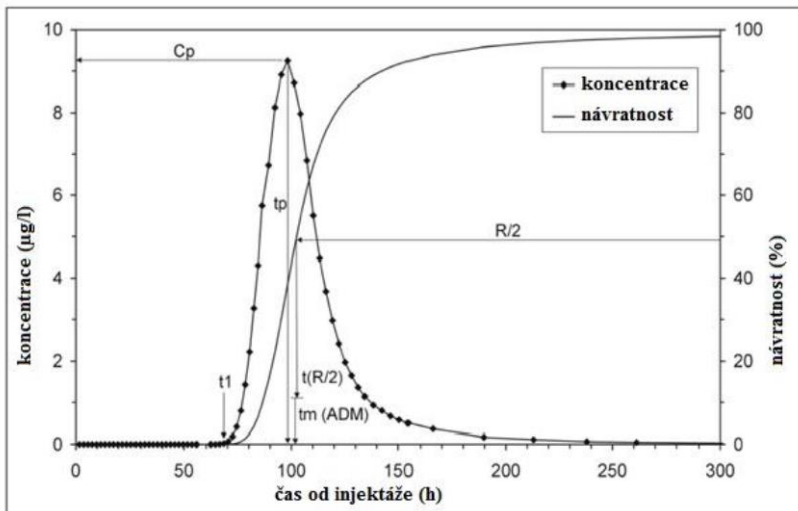
Vyhodnocení 3D prostorové distribuce v horninovém vzorku je prováděno např. pomocí 3D rekonstrukčního softwaru, který umožňuje získat 3D rekonstrukci rozložení aktivity v horninových vzorcích. Software byl vytvořen jako multiplatformní grafická aplikace v jazyce Python. Pro výpočty objemů využívá implementaci rekonstrukční metody SIRT (The simultaneous iterations reconstruction technique) v knihovně ASTRA. Rekonstrukční metoda byla vybrána na základě poznatků získaných během řešení projektu. Knihovna ASTRA podporuje distribuované výpočty na grafické kartě NVIDIA s použitím technologie CUDA (Zuna et al. 2021).



Obr. 22 Příklad 3D rekonstrukce pukliny získané při dynamickém experimentu s prúníkem ^{188}Re (dole zobrazeny řezy X,Y,Z).

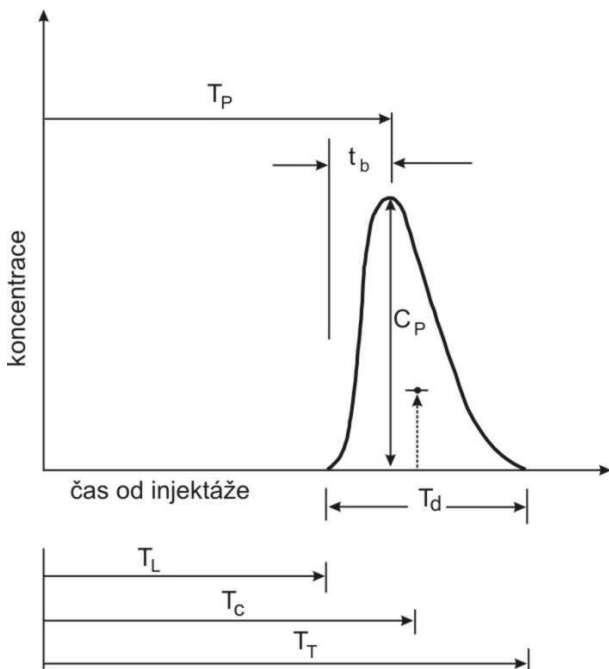
2.2.4. Vyhodnocení dat ze stopovacích experimentů

Po ukončení stopovací zkoušky jsou získaná data vyhodnocena. Při kvantitativní zkoušce je hlavním výsledkem prúníková křivka. Na Obr. 23 je ideální prúníková křivka. Z ní je možné získat údaje o postupových časech, koncentraci a návratnosti stopovače (vysvětlení pojmu viz dále v textu).



Obr. 23 Ideální průniková křivka. t_1 : čas prvního objevení stopovače, t_p : čas maximální koncentrace, $t(R/2)$: čas, kdy prošla polovina množství stopovače (Goldscheider, 2008).

Z tvarů průnikové křivky (Obr. 24) lze získat další parametry, které charakterizují prostředí mezi místem injektáže a místem sledování/odběru. Dále lze při kvantitativních zkouškách spočítat např. rychlosti proudění, objem systému, omočený profil, míru rozptylu a zředění stopovače, šíření mraku stopovače, disperzivitu a další (Field 2002; Smart 1988; Käss et al. 1998; Goldscheider 2008).



Obr. 24 Průniková křivka stopovací zkoušky (zjednodušeno podle Fielda (2002))



Křivka vyjadřuje průběh koncentrace stopovací látky v čase na jednom měřeném bodě. V případě použití radioaktivních stopovačů je nejprve nutné povést korekci na poločas rozpadu daného radionuklidu (Knoll 2000).

V grafu je na časové ose naznačeno odečítání jednotlivých časových úseků: T_L je časový úsek od injecktáže po první objevení stopovače v místě sledování, T_P je časový úsek po maximální koncentraci (C_P), t_b je čas od prvního objevení po maximální koncentraci, T_d je čas od prvního objevení stopovače po vyznění koncentrace, T_C (střední doba zdržení) definuje časový úsek od injecktáže po těžiště průnikové křivky a vypočte se podle vztahu:

$$T_C = \frac{\int_0^{\infty} tC(t)Q(t)dt}{\int_0^{\infty} C(t)Q(t)dt}$$

kde C odpovídá koncentraci stopovače, Q vydatnosti vody/průtok

T_T je čas od injecktáže po vyznění koncentrace. Na rozdíl od předchozích je tento čas obtížné určit, protože koncentrace stopovače se po maximální koncentraci obvykle asymptoticky blíží pozadí a tento parametr je tak silně ovlivněn přesností měření stopovače nad úrovní pozadové koncentrace. Přímá migrační vzdálenost x_s je vzdálenost mezi body injecktáže a sledování.

Maximální rychlost stopovače v_L se získá vydělením migrační vzdálenosti a času prvního objevení. Střední rychlost stopovače v_C je rovna podílu migrační vzdálenosti x_s a střední doby zdržení T_C :

$$v_C = \frac{\int_0^{\infty} \frac{x_s}{t} C(t)Q(t)dt}{\int_0^{\infty} C(t)Q(t)dt}$$

Pecletovo číslo P_e se stanoví podle vztahu:

$$P_e = \frac{\bar{v}x_s}{Dx_s}$$

Pecletovo číslo vyjadřuje míru relativního příspěvku mechanické disperze a difuze na transport rozpuštěné látky ve srovnání s transportem v rámci advekce.

- $P_e < 0,4$ při transportu převládá difuze a disperze.
- $P_e 0,4 - 6,0$ přechod difuze a advekce.
- $P_e > 6,0$ při transportu převládá advekce stopovače.

Návratnost stopovače je podíl celkového zachyceného množství stopovače a množství, které bylo do systému injektováno. V případě zachycení veškerého injektovaného stopovače je návratnost 100 %, ale v reálných případech bývá tato hodnota nižší. Nízké hodnoty návratnosti stopovače indikují buď nekonzervativní chování stopovače, nebo skutečnost, že stopovač proudil i mimo sledované profily.



Naměřená data jsou zpracována vztažením k počáteční injektované koncentraci/aktivitě, což umožňuje srovnávání s jinými experimenty, ať s radioaktivními (po přepočtu na poločas přeměny k času injektáže) či stabilními stopovači. Počáteční injektovaná koncentrace/aktivita (C_0/A_0) je měřena nejméně v šesti replikách. Měření aktivních roztoků a vyhodnocení jsou v závislosti na měřeném radionuklidu prováděna dle norem např. ISO 9698:2019, ISO 11929-1:2019, Knoll 2000. Nejistota vstupní koncentrace/aktivity je určena pomocí 95% intervalu spolehlivosti. Z rozboru nejistot veličin vstupujících do měření koncentrace/aktivity stopovače na výstupu (např. hmotnost, objem apod.) bylo zjištěno, že největší příspěvek představuje stanovení koncentrace/aktivity stopovače. Nejistoty stanovení koncentrace/aktivity vyplývají z použité metody (např. AAS, gama counter) a jsou stanoveny jako kombinované nejistoty (QUAM:2012.P1; JCGM 100:2008).

Pro stanovení T_L , časového úseku od injektáže po první objevení stopovače v místě sledování, jsou zohledněny meze detekce a stanovitelnosti. Pro určení času T_L a T_d je využita hodnota meze stanovitelnosti L_Q , která není definována statisticky, ale konvenčně jako hodnota obsahu složky (koncentrace analytu), při které je nejistota stanovení vyjádřená jako relativní směrodatná odchylka rovna předem určené hodnotě (doporučení IUPAC 10 %). Pak platí $L_Q = k_Q \cdot \sigma_Q$, kde L_Q je mez stanovitelnosti, k_Q je koeficient, jehož převrácená hodnota je rovna zvolené hodnotě relativní směrodatné odchylky tedy nejčastěji $k_Q = 10$ a σ_Q je směrodatná odchylka v bodě meze stanovitelnosti. Pro data s normální distribucí a s konstantním rozptylem je směrodatná odchylka v bodě meze stanovitelnosti rovna směrodatné odchylce slepého pokusu $\sigma_Q = \sigma_B$ a hodnota meze stanovitelnosti je pak zhruba trojnásobkem hodnoty meze detekce (dle metodiky Eurachem 2011, DIN 32645:2008).

Stanovení meze detekce vycházející ze směrodatné odchylky výsledků měření slepého vzorku/blanku je nejčastěji používaným postupem. Jako slepý vzorek uvažujeme zdrojový roztok použitý pro průnikový experiment bez přídavku stopovací látky (blank). Pro výpočet meze detekce y_{MD} ze směrodatné odchylky měření slepého vzorku/blanku s_0 se užívá např. konvence rozpracovaná Kaiserem v minulém století a používaná zejména v oblasti spektroskopických metod, tedy: $y_{MD} = \bar{y}_0 + 3 \cdot s_0$. Mez detekce je vypočítána jako součet průměrného signálu slepého vzorku (\bar{y}_0) a trojnásobku směrodatné odchylky slepého pokusu (s_0). Tento způsob zabezpečí pro jednotlivé měření odlišení vzorku od slepého pokusu (blanku) s 99,9% pravděpodobností (Eurachem 2011; JCGM 100:2008). Specifické výpočty detekčních limitů jsou prováděny dle normy ISO 11929.

2.2.5. Matematické modelování

Výše uvedené transportní parametry, stanovené na základě experimentů v laboratorním měřítku na vzorcích o rozměrech v řádu jednotek centimetrů nemají přímou analogii v parametrech používaných v rámci klasických hydrogeologických úloh. Proto je třeba data naměřená v rámci stopovacích experimentů použít jako vstupy pro modelové vyhodnocení. To je realizováno za použití různých softwarových nástrojů (např. Modflow-MT3D, Flow123d) pomocí kterých jsou stanoveny hodnoty transportních parametrů aplikovatelných v dalších úlohách.



Výstupy modelového vyhodnocení experimentů ve formě parametrů puklinového prostředí lze pro zjednodušení rozdělit do tří vzájemně provázaných základních oblastí:

- **Stanovení rozevření pukliny na základě CT dat.** Pro stanovení rozevření pukliny a vytvoření jejího geometrického modelu je nutné provést charakterizaci horninového vzorku pomocí rentgenové výpočetní mikrotomografie (viz kap. 2.1.3.1). Pro transformaci měřených CT dat do modelové sítě je třeba řady dílčích kroků, které jsou popsány podrobně ve zprávě Jankovský et al. (2020) a proto bude dále uveden pouze stručný koncept. Vstupní hodnoty modelu přirozené pukliny jsou tvořeny voxely charakterizovanými polohou a specifickou hodnotou absorpance (vyjádřené v datech jako CT číslo). U té předpokládáme lineární závislost na množství záření pohlcující hmoty (tedy horniny či výplně pukliny) v prostoru daného voxelu. Kontinuální distribuce hodnot absorpance napříč vzorkem i puklinou ve spojitosti s úrovní šumu však neumožňuje přímé stanovení absolutních hodnot pórovitosti a v důsledku ani efektivního rozevření pukliny. Kalibrace hydraulických a transportních parametrů přirozené pukliny (jak jsou prezentovány dále), spočívá v nalezení intervalu hodnot absorpance (CT_{\min} ; CT_{\max}), kterému je přiřazena 100%, resp. nulová pórovitost modelových buněk. Z kalibračního intervalu pak lze (za účelem kvantifikace modelových parametrů) zpětně vypočítat příslušné **průměrné rozevření pukliny**.
- **Parametry popisující tlakové pole** – advekční složka proudění. Jako vstupní hodnoty slouží (mimo podkladových CT dat) hodnoty tlaku měřené pomocí tlakových čidel. Ta jsou osazena v bezprostřední vzdálenosti od vstupu a výstupu ze vzorku, aby byla minimalizována tlaková ztráta v zařízení měřící aparatury a umožňují stanovení tlakového gradientu mezi sondami, respektive jeho extrapolaci na prostor posuzovaného vzorku (viz kap. 2.2.2). Podstata kalibrace hydraulického modelu spočívá v minimalizaci rozdílu měřeného a modelového průtoku při známém gradientu tlakového pole ve vzorku. Toho je dosaženo variací transmisivity modelu, odvozené z rozevření pukliny definované intervalem ($CT_{\min \text{ hydro}}$; $CT_{\max \text{ hydro}}$). Vlastní **transmisivita** je z kalibrovaného rozevření pukliny stanovena na základě lokálního kubického zákona (LCL):

$$T = \frac{W\rho g e^3}{12\mu}$$

kde W je šířka elementu [m], ρ hustota tekutiny [$kg \cdot m^{-3}$], e rozevření pukliny [m] a μ viskozita tekutiny [$kg \cdot m^{-1} \cdot s^{-1}$].

Takto zjištěnou hodnotu transmisivity (resp. rozevření) pukliny fyzikálního modelu lze následně srovnat s experimentálním stanovením transmisivity popsané v kap. 2.1.3.3.

- **Transportní parametry.** Rychlost šíření stopovače (resp. kontaminace) simulovaným vzorkem je nepřímo úměrná modelové pórovitosti. Její prostorová distribuce a absolutní hodnoty v modelové reprezentaci přirozené pukliny je udána přepočtem měřených hodnot absorpance pomocí kalibračního intervalu. Výchozím kalibračním kritériem pro transportní simulace bylo dosažení co nejvyšší shody mezi modelovou a měřenou průnikovou křivkou stopovače na odtoku. Vzhledem k výpočetní náročnosti byla nejvyšší váha přiřazena **času**



dotoku maximální koncentrace k výstupní sondě, kterou tak lze považovat za primární kalibrační kritérium. Dalším transportním parametrem, jenž lze hodnotit na základě srovnání celkového tvaru a amplitudy simulovaných a měřených průnikových křivek, je hodnota **hydrodynamické disperze**, která je ovlivněna charakterem horninového vzorku (např. mineralogické složení matrice, puklinové výplně, stupněm narušení alterované zóny, difúzními parametry). Pro optimální kalibraci modelu je vhodné použít reálné výsledky získané při kompletní charakterizaci horninového vzorku (viz kap. 2.1.3.2).

Celkově lze konstatovat, že vyhodnocení experimentů pomocí modelových nástrojů umožňuje identifikaci problematických oblastí v realizaci aktivních migračních experimentů, což umožňuje jejich následné řešení. Dalším nenahraditelným výstupem matematických simulací je kvantifikace parametrů specifických pro jednotlivé vzorky (jako třeba hodnota rozevření pukliny, případně disperzní koeficient). Stávající modelové výsledky lze rovněž použít pro predikci chování dalších vzorků, v případě znalosti jejich základních parametrů.



3. Srovnání novosti postupů

V minulosti byly transportní procesy řízené advekcí studovány na přirozených puklinách v laboratorním prostředí za řízených podmínek pouze v zahraničních pracích, např. Missana et al. (2008), Vilks a Baik (2001) a Huber et al. (2012, 2013), Stoll et al. (2016), Zakhnini et al. (2013), Kulenkampff et al. (2016), Poteri a Höltta (2005), Vandergraaf et al. (1996, 1997), Park et al. (1997) a Schäfer et al. (2004), nikdy však na vzorcích přirozené pukliny pocházející z české proveniencí. Pokud bychom tedy chtěli použít data z těchto experimentů, vždy by bylo nutno přihlídnout k tomu, že jde o transpozici dat pro jiné horniny a porovnat, nakolik je tato hornina a podmínky experimentu podobné krystalickým horninám z Českého masivu. Postupy instrumentace a aplikace přirozených a radioaktivních stopovačů nebyly na vzorcích horninových jader s přirozenou puklinou z Českého masivu aplikovány.

Prezentovaná metodika, zahrnující charakterizaci vzorku, jeho přípravu pro experimentální sestavu, instrumentaci, měření propustnosti, neaktivní stopovací experiment pro optimalizaci experimentu, aktivní experiment, měření průniku stopovače a vyhodnocení, představuje první ucelený koncept sledování migrace potenciálních kontaminantů v puklinovém prostředí pro vzorky lokálních hornin.

Detailní charakterizace vzorků (např. pomocí μ CT, mineralogie, sorpční parametry, difuzní parametry aj.) a optimalizované migrační experimenty s radionuklidy jasně definují okrajové podmínky pro transportní modely. Definované podmínky následně umožňují provádět např. srovnávací experimenty s různými stopovači (těžké kovy, RN, nanočástice) a studium různých vlivů na jejich transport (např. vliv stopovače, jeho formu, koncentraci, vliv průtoku, tlakového gradientu apod.).

Experimentální sestava umožňuje využít jak stabilní stopovače (např. I, Br, Cl), tak i radioaktivní stopovače, které svým použitím přibližují experimentální výsledky reálné situaci migrace radioaktivních kontaminantů v horninovém prostředí.

Instrumentace systému umožňuje současně automatizovaný odběr vzorků pro off-line měření radioaktivních vzorků, kterým je tak zajištěna optimalizace radiační bezpečnosti při experimentu a vyloučení kontaminace přítomných pracovníků.

Nevýhodou daného typu experimentů je, že při použití dlouhodobých sorbujících se radionuklidů (např. ^{137}Cs , ^{85}Sr , ^{152}Eu) dojde k dlouhodobé kontaminaci vzorku, který pak nelze použít pro následné experimenty a se kterým je pak nutno nakládat jako s radioaktivním odpadem. Je tedy nutno dobře plánovat sekvenci experimentální testů na jedné puklině, případně použít krátkodobé analogy zvolených radionuklidů. Pro experimenty lze použít krátkodobé radionuklidy (např. ^{188}Re , ^{166}Ho), vyrobené v experimentálním reaktoru LV -15 (připravené v rámci projektu MPO TRIO FV30430), které se ukazují jako velmi přínosné pro studium transportních parametrů puklinových systémů, především s ohledem na jejich energie a krátké poločasy rozpadu. Současně dochází k omezení produkce RAO.

Využití nových metodik např. detekčního systému na bázi minidetektorů (miniaturizované spektrální kamery MiniPIX TPX3), umožňuje studium transportu v prostoru a následnou 3D rekonstrukci pro vizualizaci šíření stopovačů v puklinových systémech. Současně je také možné studovat sorpční vlastnosti přímo v puklinové zóně, čímž se více přibližujeme reálným podmínkám v přirozeném prostředí s možností aplikace modelování reaktivního transportu.



Využití metodiky přispěje významným způsobem k popisu procesů, které mohou přispět k popisu a predikci migrace kontaminantů ze zdroje kontaminace, k vyhodnocení jeho dopadu na člověka a životní prostředí a k plánování nápravných opatření, které povedou ke snížení jejich množství (zde za předpokladu, že základním transportním médiem je podzemní voda). Významná je možnost použití pro lokální horninové materiály, jejichž použití pak představuje výraznější příspěvek k realistické reprezentaci systému.



4. Popis uplatnění metodiky

Vypracovaná metodika je určena pro pracoviště specializující se na migrace radionuklidů v horninovém prostředí. Odběr přirozené pukliny z horninového masívu je technicky složitý (neboť dochází často k rozpadu pukliny) a tedy studium přirozených puklin je v zahraničí, a především na území ČR, doposud omezené. Vypracované postupy umožňují charakterizaci pukliny, jejich přípravu, testování a v neposlední řadě využití vyvinutých přístupů pro modelování transportu pro lokální vzorky hornin. Na základě modelových přístupů je částečně možné predikovat budoucí chování RN puklinových systémech.

Metodiku je tedy možné využít pro další studium transportních parametrů přirozených puklin za jasně definovaných podmínek. To umožní porovnání různých typů puklin v závislosti např. na mineralogickém složení pukliny a její výplně, charakteru puklin – drsnost, zakřivení, povrch. Data budou následně využita pro definování vstupních parametrů do modelů hodnocení dopadu migrace kontaminantů na člověka (např. pro vývoj hlubinného úložiště vyhořelého jaderného paliva nebo sledování starých ekologických zátěží s přirozenými radionuklidy).

Metodika dává prostor pro studium dalších vlivů jako je např. channeling, sorpce na vybrané puklinové materiály, upscaling aj.

Další uplatnění metodik a vypracovaných postupů je v budoucnu použitelné i pro testování postupů transportních experimentů v přirozeném horninovém prostředí v in-situ podmínkách, tj. pro přenos do reálného měřítka horninového masívu.



5. Seznam použité související literatury

- Andersson J.-E., Persson O. (1985): Evaluation of single-hole hydraulic tests in fractured crystalline rock by steady-state and transient methods. SKB Technical Report TR 85-12.
- Autio J., Siitari-Kauppi M., Timonen J., Hartikainen K., Hartikainen J. (1998): Determination of the porosity, permeability and diffusivity of rock in the excavation-disturbed zone around full-scale deposition holes using the ¹⁴C-PMMA and He-gas methods. *Journal of Contaminant Hydrology* 35, 19-29.
- Bear J., Berkowitz B (1987): *Groundwater Flow and Pollution in Fractured Rock Aquifers, Development of Hydraulic Engineering, Vol. 4, 1987.*
- Bertolazzi E., Manzini G. (2004): A finite volume method for transport of contaminants in porous media. *Applied Numerical Mathematics, Volume 49, Issues 3–4, Pages 291-305.*
- Bodin J., Delay F., de Marsily G (2003a): Solute transport in a single fracture with negligible matrix permeability: 1. fundamental mechanisms. *Hydrogeology Journal, Vol. 11, 418-433.*
- Bodin J., Delay F., de Marsily G. (2003b): Solute transport in a single fracture with negligible matrix permeability: 2. mathematical formalism. *Hydrogeology Journal, Vol. 11, 434-454.*
- Bradl H. Ed. (2002): *Heavy Metals in the Environment: Origin, Interaction and Remediation Volume 6.* London: Academic Press.
- Byegard J. et al. (1998): The interaction of sorbing and non-sorbing tracers with different Aspo rock types. SKB Technical Report TR 98-18.
- Černík M. a kol. (2010): *Chemicky podporované in situ sanační technologie.* Vydavatelství VŠCHT, ISBN 978-80-7080-767-5.
- ČSN EN ISO 17892-11: *Geotechnický průzkum a zkoušení – Laboratorní zkoušky zemin – Část 11: Stanovení propustnosti,* 2019.
- Detwiler R. L., Rajaram H., Glass R. J. (2000): Solute transport in variable-aperture fractures: an investigation of the relative importance of Taylor dispersion and macrodispersion. *Water Resources Research, Vol. 36, 7, 1611-1625.*
- DIN 32645:2008. *Chemical analysis - Decision limit, detection limit and determination limit under repeatability conditions - Terms, methods, evaluation.*
- Eurachem Leaflet 2011: *Metodický list 7 – Detekční schopnost analytické metody, mez detekce, mez stanovitelnosti.* ERACHEM CR 2011. <http://www.eurachem.cz/metodicke-listy.php>
- Field M. (2002): *The QTRACER2 program for Tracer Breakthrough Curve Analysis for Tracer Tests in Karstic Aquifers and Other hydrologic Systems.* – U.S. Environmental protection agency, hypertext multimedia publication in the Internet at <http://cfpub.epa.gov/ncea/cfm/recordisplay.cfm?deid=54930>.
- Goldscheider N., Meiman J., Pronk M., Smart C. (2008): Tracer tests in karst hydrogeology and speleology. *International Journal of Speleology, 37 (1), s. 27-40.*



- Gustafson G., Gylling B., Selroos J. O. (2009): The Äspö Task Force on groundwater flow and transport of solutes: bridging the gap between site characterization and performance assessment for radioactive waste disposal in fractured rocks. *Hydrogeology Journal*, Vol. 17, 1031-1033.
- Harbaugh A. W. (2005): MODFLOW-2005, The U.S. Geological Survey Modular Ground-Water Model - the Ground-Water Flow Process. Chapter 16 of Book 6. Modeling techniques, Section A. Ground Water. U.S. Department of the Interior and U.S. Geological Survey.
- Hölttä P. (2002): Radionuclide migration in crystalline rock fractures. Laboratory study of matrix diffusion. Doctoral Thesis, University of Helsinki.
- Idemitsu K., Furuya H., Hara T., Inagaki Y. (1992): Migration of cesium, strontium and cobalt in water-saturated Inada granite. *Journal of Nuclear Science and Technology*, 29, 454-460.
- ISO 11929-1:2019 Determination of the characteristic limits (decision threshold, detection limit and limits of the coverage interval) for measurements of ionizing radiation — Fundamentals and application — Part 1: Elementary applications
- ISO 9698:2019 Water quality — Tritium — Test method using liquid scintillation counting
- Ittner T., Torstenfelt B., Allard B. (1990): Diffusion of strontium, iodine and cesium in granitic rock. *Radiochimica. Acta* 49, 101-106.
- Jakob A. (2004): Matrix diffusion for performance assessment - experimental evidence, modelling assumptions and open issues. PSI Report Nr. 04-08.
- Jankovský F., Havlová V., Zuna M., Grecká M., Kůs P., Polívka P., Polák M., Jankovec J., Zeman O., Milický M., Gvoždík L., Hokr M., Balvín A., Parma P. (2019): Vývoj nástrojů pro studium transportu kontaminantů v puklinovém prostředí. Výzkumná zpráva za rok 2019. Příloha 1 Odborné zprávy projektu TH02030543. Zpráva Z 5306, ÚJV Řež, a.s., 2020.
- Jankovský F., Havlová V., Zuna M., Trpkošová D., Kůs P., Polívka P., Jankovec J., Polák M., Milický M., Hokr M., Balvín A., Rálek P., Parma P. (2020): Vývoj nástrojů pro studium transportu kontaminantů v puklinovém prostředí. Souhrnná výzkumná zpráva. Příloha 2 Odborné zprávy projektu TH02030543. Zpráva Z 5539, ÚJV Řež, a.s., 2021.
- Jankovský F., Zuna M., Kašpar V. (2021): Zařízení pro provádění transportních experimentů ve formě stopovacích zkoušek, užitný vzor č. 34962.
- JCGM 100:2008 Evaluation of measurement data — Guide to the expression of uncertainty in measurement. Překlad. Pokyn pro vyjadřování nejistoty měření (GUM). ÚNMZ, 2012. <https://www.unmz.cz/files/Sborn%C3%ADky%20TH/GUM%20-%20celek%20-DEF.pdf>
- Käss W. (1998): Tracing technique in geohydrology. Balkema, Rotterdam: 600 str.
- Knoll G.F (2000): Radiation detection and measurement : New York : J. Wiley , ISBN: 0471073385
- Kulenkampff J., Gründig M., Richter M., Enzmann F. (2008): Evaluation of positron-emission-tomography for visualisation of migration processes in geomaterials. *Physics and Chemistry of The Earth* 33, 937-942.



- Kulenkampff J., Stoll M., Gründig M., Mansel A., Lippmann-Pipke J., Kersten M. (2018): Time-lapse 3D imaging by positron emission tomography of Cu mobilized in a soil column by the herbicide MCPA. *Scientific reports* 8, 7091-7091.
- Kulenkampff J., Zakhnini A., Gründig M., Lippmann-Pipke J. (2016): Quantitative experimental monitoring of molecular diffusion in clay with positron emission tomography. *Solid Earth* 7, 1207-1215.
- Lever D. A., Woodwark D.R. (1990): Radionuclide transport by groundwater flow through geosphere. Current status 1989. Nirex Safety Series NSS/G 113. Harwell Lab., Didcot, UK.
- Li Z., Brusseau M.L. (2000): Nonideal transport of reactive solutes in heterogeneous porous media. 6. Microscopic and macroscopic approaches for incorporating heterogeneous rate-limited mass transfer. *Water Resour. Res.*, 36 (2000), pp. 2853–2867.
- Liang L., Ju L., Hu J., Zhang W., Wang X. (2016): Transport of sodium dodecylbenzene sulfonate (SDBS)-dispersed carbon nanotubes and enhanced mobility of tetrabromobisphenol A (TBBPA) in saturated porous media. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, Volume 497, 20 May 2016, Pages 205-213.
- Lippmann-Pipke J., Gerasch R., Schikora J., Kulenkampff J. (2017): Benchmarking PET for geoscientific applications: 3D quantitative diffusion coefficient determination in clay rock. *Computers and Geosciences*, 101, 21–27. <https://doi.org/10.1016/j.cageo.2017.01.002>.
- Löfgren M., Crawford J., Elert M. (2007): Tracer tests – possibilities and limitations Experience from SKB fieldwork: 1977-2007. SKB Technical Report R-07-99, Sweden.
- Mejías M., Renard P., Glenz D. (2009): Hydraulic testing of low-permeability formations. A case study in the granite of Cadalso de los Vidrios, Spain. *Engineering Geology* 107, 88-97.
- Melnik T. W., Skeet A. (1986): An improved technique for determination of rock porosity. –*Can. J. Earth Sci.* 23, 1068 – 1074.
- Missana T., M. García-Gutiérrez, Alonso U. (2006): On radionuclide retention mechanisms in fractured geologic media: *Journal of Iberian Geology*, Vol. 32, 55-77.
- Moreno L., Arve S., Neretnieks I. (1989): SKB WP-Cave Project. Transport of escaping radionuclides from WP-Cave repository to the biosphere. SKB Technical Report TR 89-05, Sweden.
- Moreno L., Gylling B., Neretnieks I. (1997): Solute transport in fractured media—the important mechanisms for performance assessment. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 25, 283–298.
- Poteri A (2009): Retention properties of flow paths in fractured rock. *Hydrogeology Journal*, Vol. 17, 1081-1092.
- QUAM:2012.P1 EURACHEM/CITAC Guide CG 4 Quantifying Uncertainty in Analytical Measurement
- Roux S., Plouraboué F., Hulin J. P. (1998): Tracer dispersion in rough open cracks. *Transport in Porous Media*, Volume 32, 1, 97–116, 1998.



- Skagius K. (1986): Diffusion of dissolved species in the matrix of some Swedish crystalline rocks. Ph.D. thesis, Royal Institute of Technology, Stockholm.
- Smart C. C. (1988): Artificial tracer techniques for determinativ of the structure of konduit aquifers. *Grand Water* č. 26, 445-453.
- Svensson U., Voutilainen M., Muuri E., Ferry M., Gylling B. (2019): Modelling transport of reactive tracers in a heterogeneous crystalline rock matrix. *Journal of Contaminant Hydrology*, 227. <https://doi.org/10.1016/j.jconhyd.2019.103552>.
- Tachi Y., Ito T., Akagi Y., Satoh H., Martin A.J. (2018): Effects of Fine-Scale Surface Alterations on Tracer Retention in a Fractured Crystalline Rock From the Grimsel Test Site. *Water Resources Research* 54: 9287-9305 <https://doi.org/10.1029/2018WR023145>.
- Tanaka Y., Miyakawa K., Fukahori D., Kiho K., Goto K. (2014): Survey of Flow Channels in Rock Mass Fractures by Resin Injection, 8th Asian Rock Mechanics Symposium, October 2014, Sapporo, Japan. 10p.
- Trpkošová D., Havlová, V., Dobrev, D., Husťáková, H., Gondolli, J., Klajmon, M., Miranda A. N. M., Večerník P., Bukovská Z., Rataj J., Frýbort J., Fejt F., Štamberg K., Vetešník, A., Vopálka D., Uhlík J., Gvoždík L., Královcová J., Říha J., Maryška J., Steinová J., Staš L. (2018b): Bezpečnostní rozbor dlouhodobé bezpečnosti hlubinného úložiště na lokalitě Kraví hora. Závěrečná zpráva. – MS SÚRAO ZZ 334/2018, Praha.
- Tullborg E.-L., Larson S.Å. (2006): Porosity in crystalline rocks – A matter of scale. *Engineering Geology* 84, 75-83.
- Voutilainen, M., Miettinen, A., Sardini, P., Parkkonen, J., Sammaljärvi, J., Gylling, B., Selroos, J.-O., Yli-Kaila, M., Koskinen, L., Siitari-Kauppi, M. (2019): Characterization of spatial porosity and mineral distribution of crystalline rock using X-ray micro computed tomography, C-14-PMMA autoradiography and scanning electron microscopy. *Applied Geochemistry*, 101, pp. 50-61. Zoul D., Zháňal P., Viererbl L., Kolros A., Zuna M., Havlová V. (2019): 3D reconstruction of inner structure of radioactive samples utilizing gamma tomography. *Radiation Protection Dosimetry*, Volume 186, 239-243, 2019.
- Zuna M., Dobrev D., Havlová V., Kůs P., Šoltés J., Assmann Vratislavská H., Jakůbek J., Doubravová D., Parma P., Palušák M. (2020): Využití krátkodobých RAdiostopovačů a vývoj jejich DEtekcňích METod pro popis procesů, ovlivňujících transport kontaminantů v životním prostředí (RADEMET). Technická zpráva řešení projektu za rok 2020. ÚJV 14892.
- Zuna M., Dobrev D., Jankovský F., Havlová V., Kůs P., Šoltés J., Vratislavská H.A., Jakůbek J., Doubravová D., Palušák M. (2020): Využití krátkodobých RAdiostopovačů a vývoj jejich DEtekcňích METod pro popis procesů, ovlivňujících transport kontaminantů v životním prostředí (RADEMET). Technická zpráva řešení projektu za rok 2021, TZ ÚJV Z5594.



6. Seznam publikací, které předcházely metodice

- Červinka R. (2014): Stanovení kationtové výměnné kapacity (CEC) a výměnných kationtů pomocí metody s Cu(II)triethylentetraminem. Certifikovaná metodika. Č.j. SÚJB/ONRV/15452/2014.
- Červinka R., Gondolli J. (2016): Výběr reprezentativních podzemních vod a příprava jejich syntetických ekvivalentů. TZ 41/2016. SÚRAO Praha, 122 str.
- Havlová V., Gvoždík L., Milický M., Sosna K., Najser J., Vojtěchovská A., Záruba J., Smutek J., Hausmanová L., Zeman O., Černý M. (2014): Výzkumná zpráva: Přenos hodnot migračních PArametřů granitických hornin z MIkroměřítko do REálného měřítko horninového masivu (PAMIRE). Příloha 1 Průběžné zprávy projektu za rok 2014. ÚJV Řež, a. s., ÚJV 14 420.
- Havlová V., Zuna M., Brázda L., Kolomá K., Galeková E., Rosendorf T., Jankovský F. (2018): Migrační procesy radionuklidů v prostředí krystalických hornin a migrační parametry hornin českého masivu – Závěrečná zpráva. SÚRAO TZ 333/2018.
- Huber, F., Enzmann, F., Wenka, A., Bouby, M., Dentz, M., Schäfer, T. (2012): Natural micro-scale heterogeneity induced solute and nanoparticle retardation in fractured crystalline rock. *Journal of Contaminant Hydrology* 133, 40-52.
- Huber, F., Trinchero, P., Molinero, J., Schäfer, T. (2013): Radionuclide migration in a single fracture from Åspö, Sweden: Experiments and reactive transport modeling. Final Workshop Proceedings of the Collaborative Project "Crystalline ROCK Retention Processes" (7th EC FP CP CROCK).
- Klajmon M., Červinka R., Havlová V., Kolomá K., Rukavičková L. (2017): Migrační procesy radionuklidů v prostředí krystalických hornin a migrační parametry hornin českého masivu. Tz 104/2017. SÚRAO Praha.
- Kulenkampf J., Gründig M., Zakhini A., Lipmann-Pipke J. (2016): Geoscientific process monitoring with positron emission tomography (GeoPET). *Solid Earth* 7, 1217-1231.
- Missana, T., García-Gutiérrez, M., Alonso, U. (2006): On radionuclide retention mechanisms in fractured geologic media: *Journal of Iberian Geology* 32, 55-77.
- Park, C., Vandergraaf, T., Drew, D., & Hahn, P. (1997): Analysis of the migration of nonsorbing tracers in a natural fracture in granite using a variable aperture channel model. *Journal of Contaminant Hydrology*, Vol. 26, 97-108.
- Poteri A., Hölttä P. (2005): Modelling of the laboratory experiments of solute transport through a natural rock fracture. University of Helsinki, Research report pro1/1008/05.
- Schäfer T., Geckeis H., Bouby M., Fanghaengel T. (2004): U, Th, Eu and colloid mobility in a granite fracture under near-natural flow conditions. *Water-Rock Interacion*, 703-707.



- Vandergraaf T.T., Drew D.J., Archambault D., Ticknor K.V. (1997): Transport of radionuclides in natural fractures: some aspects of laboratory migration experiments. *Journal of Contaminant Hydrology* 26, 83-95.
- Vilks, P., Baik, M.H. (2001): Laboratory migration experiments with radionuclides and natural colloids in a granite fracture. *Journal of Contaminant Hydrology* 47, 167-210.
- Zuna M., Havlová V., Večerník P., Brázda L., Kolomá K, Trpkošová D., Gvoždík L., Milický M, Sosna K., Staš L., Souček K., Svoboda J. (2017): Přenos hodnot migračních PArametřů granitických hornin z Mikroměřítko do REálného měřítko horninového masivu (PAMIRE). Příloha 2 Závěrečná zpráva projektu 2014 - 2017. TAČR TA402P098. ÚJV Řež, a. s., ÚJV Z4933.