

SAPID
Veiligheidsaspecten met betrekking
tot radonproductie in terughaalbaar
opgeborgen radioactief afval in de
diepe ondergrond

E.R. VAN DER GRAAF

SAPID

Veiligheidsaspecten met betrekking tot radonproductie in terughaalbaar opgeborgten radioactief afval in de diepe ondergrond

E.R. VAN DER GRAAF
J.B. GRUPA

Memo's zijn werkrapporten en kunnen zonder kennisgeving uitgebreid, veranderd of teruggenomen worden. Ze zijn niet bedoeld voor verdere uitgifte of als referentie.

Versie		71358/nuc/JG/mb/9919
1	27 maart 1998: draft-eindrapportage	
Auteurs J.B. Grupa E.R. van der Graaf	Goedkeuring H. Th. Klippe	ECN Nucleair Onderzoek Nucleaire Technologie
Verificatie A.D. Poley	Vrijgave A.D. Poley	

VOORWOORD

Dit onderzoek is uitgevoerd in het kader van het programma voor onderzoek naar terughaalbare opberging van radioactief afval. Dit programma wordt gecoördineerd door de wetenschappelijke begeleidingscommissie Commissie Opslag Radioactief Afval (CORA). Het onderzoek wordt gefinancierd door het Ministerie van Economische Zaken (FAS nummer 62494). Het onderzoek is geleid door ECN (projectnummer 71358) en is uitgevoerd in samenwerking met het KVI.

Dit memo is een concept van de eindrapportage. Deze vorm van rapporteren is gekozen zodat de commissieleden van CORA kennis kunnen nemen van de resultaten van het onderzoek. De commentaren van de commissie zullen verwerkt worden in de rapportage, waarna het uitgegeven wordt als gezamenlijke publicatie van ECN (contractrapport) en KVI.

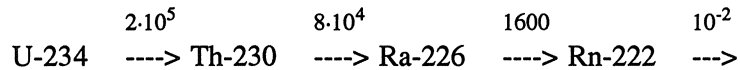
INHOUD

1. INLEIDING	5
2. RADONCONCENTRATIE IN DE MIJN; BEDRIJFSFASE	7
2.1 Radon-exhalatie van het gastgesteente	7
2.1.1 Radon-exhalatie uit zoutgesteente	9
2.1.2 Radon-exhalatie uit klei	13
2.1.3 Schatting van het effect van uitdrogen van de kleiwanden op de radonexhalatie	15
2.1.4 Radon-vrijzetting uit inlekkend poriënwater; mijn in kleilaag	15
2.2 Radon-infiltratie in de mijn vanuit het afval	16
2.2.1 Opberging in zoutgesteente	17
2.2.2 Opberging in een diepe, weinig-permeabele kleilaag	21
2.3 Radonconcentratie in de mijn	22
2.3.1 Exhalatie uit gastgesteente	22
2.3.2 Infiltratie uit afval	23
2.3.3 Maximaal optredende radonconcentraties	24
2.4 Radonemissie uit de mijn door ventilatie	25
2.5 Is detectie van containerfalen mogelijk door meting van radon in de mijn?	27
3. RADONEXHALATIE AAN HET AARDOPPERVLAK	29
3.1 Radontransport via diffusie	29
3.2 Het “geo-bubble” model	30
3.3 Transport van radon door het gastgesteente	32
3.4 ²²² Rn concentratie verhoging in woningen	33
3.5 Conclusies ten aanzien van de transporttijd door de aardlagen	33
4. CONCLUSIES EN AANBEVELINGEN	35
4.1 Conclusies	35
4.1.1 Bedrijfsfase	35
4.1.2 Isolatiefase	37
4.2 Aanbevelingen	37
5. REFERENTIES	39
Appendix A. SPECIFICATIE VAN HET RADONPRODUCERENDE AFVAL	41
Appendix B. BESCHRIJVING VAN DE OPBERGFACILITEITEN	45
B.1 Opberging in zoutgesteente	45
B.1.1 Het METRO-I opbergconcept voor KSA	46
B.1.2 Het uitgebreide METRO-I mijnmodel	47
B.2 Opberging in klei	49
B.2.1 Het Belgische opbergconcept	49
B.2.2 Het TRAM opbergconcept	49
B.3 Schatting van het ventilatiedebiet	50

Appendix C. RADON-TRANSPORT IN POREUZE MEDIA	53
C.1 Mathematische beschrijving	53
C.2 Invoerparameters	57
C.2.1 Partitie-gecorrigeerde porositeit	57
C.2.2 Diffusiecoefficient	58
C.2.3 Intrinsieke permeabiliteit	58
C.2.4 Radonproductiesnelheid	59
Appendix D. KORTE BESCHRIJVING RAETRAP	61

1. INLEIDING

Het ^{222}Rn isotoop van radon kan als gas vrijkomen uit materialen die ^{226}Ra bevatten, dat op zijn beurt ontstaat uit thorium en uranium isotopen. De vervalketen kan als volgt worden weergegeven (met boven de pijl de halveringstijd in jaren):



In een deel van het in Nederland geproduceerde radioactieve afval ontstaat ^{222}Rn , onder andere in het verglaasde splijtstof-afval (KSA) en in radiumhoudend laag actief afval.

Momenteel wordt dit afval opgeslagen in speciale faciliteiten voor tussenopslag, in Nederland bij de COVRA. Het afval is verpakt in gesloten containers. Daardoor kan het radioactieve radon-gas niet ontsnappen uit de container.

Overwogen wordt om het afval, na de tussenopslag, op te bergen in opslagfaciliteiten in de diepe ondergrond. Hiertoe worden momenteel in Nederland twee gesteentes bestudeerd die mogelijk in staat zijn het afval voldoende lang te isoleren van het leefmilieu: zeer-laag-permeabele klei en steenzout.

In deze studie is bestudeerd of het ^{222}Rn problemen kan veroorzaken tijdens het bedrijf van zo'n ondergrondse opslagfaciliteit, dus terwijl de opbergmijn nog open is, en in de periode na afsluiten van de mijn. Aanleiding tot dit laatste deel van de studie was een aanwijzing die Italiaanse onderzoekers gevonden hebben, dat radongas zeer snel vanuit grote diepte uit de bodem kan opstijgen. Dit model, het "geo-bubble" model, wordt besproken in hoofdstuk 3 van dit rapport.

In de huidige ontwerpen van geologische opbergfaciliteiten worden de containers in opbergholtes geplaatst, die daarna zorgvuldig afgesloten worden. Echter, hierdoor zullen de containers na verloop van tijd vanwege de gesteentedruk samengeperst worden. Het is niet uit te sluiten dat de containers hierdoor lek raken.

Wanneer de opbergfaciliteit als geheel nog niet afgesloten is, zou radongas dat ontstaat in de containers, via dit lek de galerijen kunnen bereiken. Het gas moet dan wel in staat zijn voldoende snel te migreren door de afsluitingen van de opbergholten.

In hoofdstuk 2 is onderzocht hoe groot de ^{222}Rn -concentraties in de galerijen kunnen worden, en hoe groot de uitstoot van ^{222}Rn via de ventilatie kan zijn.

Daarnaast is onderzocht of door monitoring van de ^{222}Rn -concentratie in de mijngalerijen het falen van een container (plus afsluiting) vastgesteld kan worden. Daartoe moest ook de radonexhalatie van het gastgesteente zelf geschat worden.

In hoofdstuk 3 is onderzocht hoeveel ^{222}Rn het aardoppervlak kan bereiken via migratie door het gastgesteente en door de aardlagen tussen dit gastgesteente en het oppervlak. Dit is vergeleken met de ^{222}Rn exhalatie die van nature al plaatsvindt aan het oppervlak.

2. RADONCONCENTRATIE IN DE MIJN; BEDRIJFSFASE

Radongas in de mijn kan afkomstig zijn uit twee bronnen: uit het gastgesteente zelf en uit het opgeborgen afval. Omdat één van de onderzoeksvragen is of het mogelijk is om een containerfalen te detecteren door monitoring van de radonconcentratie, moeten beide bronnen beschouwd worden.

2.1 Radon-exhalatie van het gastgesteente

Radon in de mijngangen kan afkomstig zijn vanuit het bodemmateriaal (zout, klei) waarin de mijn gegraven is. Dit radon wordt geproduceerd in het verval van ^{226}Ra dat in dit bodemmateriaal aanwezig is. In tabel 1 wordt ter indicatie een overzicht gegeven van ^{226}Ra -concentraties van enkele in Nederland voorkomende bodemtypen [1].

Tabel 1 *Radonexhalatie van en radiumconcentratie in verschillende bodemtypen*

Bodemtype	^{226}Ra - concentratie (Bq kg ⁻¹)	Radonexhalatie- snelheid (Bq m ⁻² s ⁻¹)
grof zand (Arnhem)	9.2	$(2.8 \pm 1.1) \cdot 10^{-3}$
fijn zand (Leersum)	8.3	$(2.8 \pm 0.8) \cdot 10^{-3}$
zeeklei (Lelystad)	24.7	$(6.1 \pm 1.5) \cdot 10^{-3}$
rivierklei (Ingen)	26.0	$(7.2 \pm 3.3) \cdot 10^{-3}$

In principe zijn er de volgende mogelijkheden om radon vanuit het gastgesteente in de lucht in de mijngangen te verkrijgen.

- 1) Radon dat uit de vaste matrix van het gastgesteente emanert kan via diffusie en/of advectie door de luchtfase van het poriënvolume van het gastgesteente het wandoppervlak van de mijngang bereiken en zo in de mijngang exhaleren.
- 2) Radon dat in het poriënvolume geëmaneerd is kan in het eventueel in dit porievolume aanwezige water opgelost raken en hierna de mijngang inleken. Bij een dergelijke lekkage zal uit het water dat in de mijngang terecht komt direct een groot gedeelte van het opgeloste radon vrijkomen.

Het transport van radon door het gastgesteente kan beschreven worden met

vergelijking (1), waarin de wisselwerking tussen de fasen (water, lucht geadsorbeerd aan oppervlakken) verdisconteerd wordt.

$$\beta \frac{\partial C_a}{\partial t} = \nabla \cdot (D \nabla C_a) + \frac{K}{\mu} \nabla P \cdot \nabla C_a - \beta \lambda C_a + S; \quad (1)$$

waarin β , D en S respectievelijk voorstellen: de partitie-gecorrigeerde porositeit, de bulkdiffusiecoëfficiënt ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$) en de radonproductiesnelheid per eenheid bulkvolume ($\text{Bq m}^{-3} \text{s}^{-1}$). De andere grootheden in vergelijking (1) zijn: K (m^2) de intrinsieke permeabiliteit; μ (Pa s) de dynamische viscositeit van lucht; C_a (Bq m^{-3}) de radonconcentraties in de luchtfase en P (Pa) is het drukveld (verstoring ten opzichte van een referentiedruk). Een afleiding van deze vergelijking wordt tezamen met een introductie in de gebruikte terminologie en notatie gegeven in appendix C.

Voor het diffusiegedreven transport zijn de waarden van β , D en S van belang. Deze kunnen als volgt bepaald worden:

$$\beta = (1 - m + mL)\epsilon + \rho_b k_a; \quad (2)$$

$$D = ((1 - m)\tau_a D_a + m\tau_w D_w L)\epsilon; \quad (3)$$

$$S = \eta \rho_b \lambda C^{Ra} \quad (4)$$

met: m de waterverzadiging (volume fractie van de poriën door water ingenomen); ϵ de porositeit (volume fractie van het medium dat door poriën wordt ingenomen); L de partitiecoëfficiënt tussen water- en luchtfase; ρ_b de bulkdichtheid (op basis van droge massa) van het poreuze medium (kg m^{-3}), k_a radonadsorptiecoëfficiënt ($\text{m}^3 \text{kg}^{-1}$); D_a , D_w , τ_a , τ_w de diffusiecoëfficiënten ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$) en tortuositeit van radon in de lucht- en waterfase; η de emanatiecoëfficiënt; λ de vervalconstante van radon (s^{-1}) en C^{Ra} de radiumactiviteit in het poreuze medium per eenheid droge massa (Bq kg^{-1}).

In tabel 1 wordt tevens de exhalatiesnelheid van de bodemtypen gegeven. Het betreft hier alleen diffusieve exhalatie (geen drukverschil). Uit de tabel blijkt dat klei in het algemeen meer radon produceert dan zand. Voor zout zijn helaas geen waarden in de literatuur gevonden. Onze eerste inschatting is dat de radiumconcentratie en ook de radonexhalatiesnelheid relatief laag zullen zijn. Meer zekerheid hierover is echter alleen te verkrijgen door meting van deze parameters aan enkele zoutmonsters die representatief zijn voor het gastgesteente.

Uit tabel 1 volgt tevens dat interstitieel water in kleilagen over het algemeen een hogere radonconcentratie zal hebben dan water in zandgrond. Voor eventueel in zout aanwezig water is deze concentratie alleen af te schatten indien gegevens bekend zijn over radiumconcentratie en/of radonexhalatiesnelheid.

In het algemeen zal de structuur van het gastgesteente op grotere diepte anders

zijn dan aan de oppervlak waar de in tabel 1 gegeven diffusieve exhalatiesnelheden gemeten zijn. Om een indruk te verkrijgen van de gevolgen van andere porositeit, waterverzadiging en van eventueel optredende drukverschillen zijn enkele berekeningen van de radonexhalatiesnelheid uitgevoerd waarbij bovengenoemde parameters gevarieerd zijn.

Bij deze berekeningen is uitgegaan van “steady-state” situaties. Als geometrie is een halfoneindig 1-dimensionaal medium gekozen. Dit is een goede benadering mits de diffusielengte (maximaal 1 tot 2 meter) kleiner is dan de karakteristieke lengte in het probleem. Aangezien we de radonexhalatiesnelheid aan de binnenwand van de mijngalerij willen schatten en er zeker enkele meters gastgesteente aan alle zijden van de galerij aanwezig is lijkt deze aanname redelijk.

In het geval het medium homogeen is en de randvoorwaarden bekend zijn kan de radonconcentratie als functie van de afstand tot het wandoppervlak (hiervoor is de x -coördinaat gekozen) berekend worden. Hieruit kan dan de radonexhalatiesnelheid E ($\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$) berekend worden via:

$$E = \left(-D \frac{\partial C_a}{\partial x} - \frac{K}{\mu} \frac{\partial P}{\partial x} C_a \right) \quad (5)$$

In deze vergelijking representeert de eerste term aan de rechterkant de diffusieve en de tweede term de advectieve bijdrage.

In het geval het medium niet homogeen is maar een van de eigenschappen verandert als functie van de x -coördinaat kunnen we de situatie benaderen door het medium op te delen in een aantal lagen die wel homogeen verondersteld kunnen worden. Voor iedere laag moet dan de “steady-state” situatie opgelost worden waarbij dan de extra randvoorwaarden geïntroduceerd worden door op de grensvlakken continuïteit van radonconcentratie in de luchtfase en de bulkradonflux te eisen. Er ontstaat dan een oplosbaar stelsel vergelijkingen. Voor het oplossen hiervan is de computercode RAETRAP gebruikt (zie appendix D voor een korte beschrijving van RAETRAP).

2.1.1 Radon-exhalatie uit zoutgesteente

Voor het zoutgesteente hebben we geen directe informatie over een aantal parameters. In het onderstaande worden schattingen gemaakt van het bereik van de relevante parameters.

Partitie-gecorrigeerde porositeit

In het algemeen kan steenzout verondersteld worden bijna droog te zijn. Beschouwen we bijvoorbeeld de zoutvoorkomens in [8] met meer dan 99% haliet- NaCl , dan is de waterinhoud slechts 0 tot 0.035% (massa). Daarom wordt in de berekeningen verondersteld dat het zout droog is (waterverzadiging $m=0$). Verder lijkt het niet waarschijnlijk dat de oppervlakken van de zoutkristallen in

significante mate radon zullen adsorberen (voor KOH is bijvoorbeeld bekend dat het geen radon adsorbeert). Dit leidt tot de constatering (via vergelijking (2)) dat de partitie-gecorrigeerde porositeit β gelijk is aan de porositeit ε . Voor porositeit ε van zoutformaties in de VS is sprake van een range van 0.6% tot 7.17% met de meeste meetwaarden in de buurt van de 1.3%. Het lijkt redelijk om in eerste instantie een bereik voor β van 0.001 tot 0.05 te beschouwen.

Diffusiecoëfficiënt

Voor het steenzout zijn geen gegevens over de diffusiecoëfficiënt beschikbaar. Een schatting is te maken op basis van vergelijking (3) waarin $m=0$, dus dan $D=\tau_a D_a \varepsilon$. Indien we voor ε het bereik 0.001 tot 0.05 gebruiken en voor de diffusiecoëfficiënt van radon in lucht de literatuurwaarde $D_a = 1.2 \cdot 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ [2] nemen dan kunnen we het bereik van D bepalen, gegeven een waarde voor de tortuositeit. De waarde voor τ van poreuze structuren op basis van zandkorrels of glasballetjes ligt normaal tussen de 0.6 en 0.7 [3] en is bijna niet afhankelijk van de porositeit in het bereik van ε tussen 0.3 en 0.4. Voor steenzout is de porositeit aanzienlijk lager; zolang echter de structuur opgebouwd is uit deeltjes met de poriën gevormd door de tussenruimten zal de tortuositeit slechts in geringe mate afhankelijk zijn van de porositeit [4]. Indien we voor het bereik van de tortuositeit 0.6 tot 0.7 aanhouden dan volgt voor het waardenbereik van de diffusiecoëfficiënt $(0.7-40) \cdot 10^{-8} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$.

Intrinsieke permeabiliteit

De waarde voor de permeabiliteit K van steenzout ligt in het bereik van 10^{-17} tot 10^{-21} m^2 [5]. We kunnen deze waarde ook schatten uit de zogenaamde Kozeny-Carman vergelijking [6]:

$$K = \frac{d^2}{k_0} \frac{\varepsilon^3}{36(1-\varepsilon)^2} \quad (6)$$

waarin d de diameter van de deeltjes (die bolvormig worden verondersteld) is en k_0 de Kozeny-Carman constante is die in het algemeen een waarde heeft van ongeveer 5 [7, 3]. Nemen we 10-100 μm als representatieve diameter van de zoutdeeltjes dan vinden we in overeenstemming met eerder een bereik van 10^{-17} tot 10^{-19} m^2 . We zullen in het vervolg aanhouden dat het waardenbereik van K ligt tussen 10^{-17} tot 10^{-21} m^2 .

Radonproductiesnelheid

Over de radonproductiesnelheid S van steenzout is geen informatie beschikbaar. In principe kunnen we deze productiesnelheid berekenen met vergelijking (4) indien we gegevens omtrent de massadichtheid, het radiumgehalte en de radon-emanatiecoëfficiënt hebben. De massadichtheid van steenzout is ca. 2140 kg m^{-3} . Voor het radiumgehalte is de verwachting dat deze laag is. Deze verwachting is gebaseerd op het feit dat de vorming van steenzout begint met het neerslaan van zout uit een “verdampend” reservoir dat regelmatig bijgevuld/doorspoeld wordt met zeewater. Radium kan alleen in het steenzout voorkomen wanneer uranium samen met het zout uit het zeewater neerslaat. Echter, uranium zou dan dezelfde oplosbaarheid moeten hebben als NaCl. Deze scheiding op basis van oplosbaarheid gaat zelfs zover dat in steenzoutlagen de verschillende zoutsoorten

in aparte lagen voorkomen. Wanneer uit zo'n zoutlaag door diapirisme een zoutkoepel ontstaat, ontstaan er door de deformatie grote volumes van zuiver NaCl. Na de vorming van de zoutlaag en de jarenlange sedimentatie zullen er ongetwijfeld onder het zout en misschien, maar veel minder waarschijnlijk, ook wel boven het zout uranium of andere moedernucliden van radium in wat grotere concentraties aanwezig zijn (geweest). Echter, het is niet duidelijk hoe deze nucliden in het haliet steenzout terecht kunnen komen. In een lijst van de samenstelling van steenzout in diverse zoutvoorkomens in de VS [8] wordt ^{226}Ra niet genoemd als component.

In eerste instantie zullen we als bereik voor het radiumgehalte 0.01 tot 1 Bq kg⁻¹ kiezen. De emanatiecoëfficiënt zal waarschijnlijk laag zijn ten gevolge van het in appendix C genoemde effect dat radonatonen die uit een zoutdeeltje emaneren niet in het porievolume gestopt worden maar zich kunnen ingraven in het oppervlak van een overliggende zoutdeeltje. Voor steenzout zal dit effect extra groot zijn omdat het én droog is én slechts een klein porievolume bezit. We schatten het bereik van de emanatiecoëfficiënt tussen de 0.01 en 0.1. Combinatie van deze schattingen geeft tenslotte een radonproductiesnelheid tussen de $4 \cdot 10^{-7}$ en $4 \cdot 10^{-4}$ Bq m⁻³ s⁻¹.

Exhalatiesnelheid

Met behulp van het RAETRAP programma is de diffusieve exhalatiesnelheid uitgerekend voor de extremen van de in de vorige paragrafen geschatte bereiken van de relevante parameters. In het geval er ook een advectieve component is zal de exhalatiesnelheid toenemen. Het is op dit moment onduidelijk of er een drukgradient aanwezig is. Ter indicatie is ook een berekening uitgevoerd met een drukgradient van 1000 Pa m⁻¹. De resultaten van deze berekeningen zijn gegeven in tabellen 2 en 3.

Tabel 2 *Berekende diffusieve exhalatiesnelheden uit zoutgesteente voor de extremen van het bereik van de relevante parameters*

β	D (m ² s ⁻¹)	S (Bq m ⁻³ s ⁻¹)	E (Bq m ⁻² s ⁻¹)
0.001	$0.7 \cdot 10^{-8}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$7.3 \cdot 10^{-7}$
"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$7.3 \cdot 10^{-4}$
"	$40 \cdot 10^{-8}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$5.5 \cdot 10^{-6}$
"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$5.5 \cdot 10^{-3}$
0.05	$0.7 \cdot 10^{-8}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$1.0 \cdot 10^{-7}$
"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$1.0 \cdot 10^{-4}$
"	$40 \cdot 10^{-8}$	$4 \cdot 10^{-7}$	$7.8 \cdot 10^{-7}$
"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$7.8 \cdot 10^{-4}$

Uit tabel 2 blijkt dat toename van de radonproductiesnelheid en de diffusiecoëfficiënt tot grotere waarden voor de diffusieve exhalatiesnelheid leidt.

Een grotere waarde voor de partitie-gecorrigeerde porositeit leidt bij gelijkblijvende diffusiecoëfficiënt en productiesnelheid tot een afname van de exhalatiesnelheid. Dit laatste is het gevolg van de afname van de helling in het concentratieprofiel aan het exhalerende oppervlak tengevolge van de lagere concentraties veroorzaakt door het grotere porievolume.

Uit tabel 3 volgt dat een drukgradiënt bij de ondergrens van de diffusiecoëfficiënt en bij de bovengrens van de waarden voor de permeabiliteit tot een toename van de exhalatiesnelheid leidt. Het effect is voor de beschouwde drukgradiënt (1000 Pa m^{-1}) echter gering, namelijk ongeveer 7%. Voor de ondergrens van de permeabiliteit is er geen effect. We kunnen concluderen dat in alle gevallen het exhalatieproces in zoutgesteente voornamelijk gecontroleerd wordt door diffusie. Situaties waarbij advection een belangrijke rol zal spelen treden pas op bij drukgradiënten van ongeveer 10.000 Pa m^{-1} , in dat geval zal de exhalatiesnelheid voor het geval $K=10^{-17} \text{ m}^2$ ruwweg verdubbelen. Voor de ondergrens van K (10^{-21} m^2) treedt dan echter nog steeds geen significante verhoging van de exhalatiesnelheid op.

Concluderend kunnen we stellen dat het waardebereik van de exhalatiesnelheid voor zoutgesteente ongeveer ligt tussen de 10^{-7} en $5.5 \cdot 10^{-3} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ mits er geen grotere drukgradiënten dan 1000 Pa m^{-1} optreden.

Tabel 3 *Berekende exhalatiesnelheden bij een drukgradiënt van 1000 Pa m^{-1} uit zoutgesteente voor de extremen van het bereik van de relevante parameters*

β	D ($\text{m}^2 \text{ s}^{-1}$)	K (m^2)	S ($\text{Bq m}^{-3} \text{ s}^{-1}$)	E ($\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)
0.001	$0.7 \cdot 10^{-8}$	10^{-17}	$4 \cdot 10^{-7}$	$7.8 \cdot 10^{-7}$
"	"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$7.8 \cdot 10^{-4}$
"	"	10^{-21}	$4 \cdot 10^{-7}$	$7.3 \cdot 10^{-7}$
"	"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$7.3 \cdot 10^{-4}$
"	$40 \cdot 10^{-8}$	10^{-17}	$4 \cdot 10^{-7}$	$5.5 \cdot 10^{-6}$
"	"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$5.5 \cdot 10^{-3}$
"	"	10^{-21}	$4 \cdot 10^{-7}$	$5.5 \cdot 10^{-6}$
"	"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$5.5 \cdot 10^{-3}$
0.05	$0.7 \cdot 10^{-8}$	10^{-17}	$4 \cdot 10^{-7}$	$1.0 \cdot 10^{-7}$
"	"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$1.0 \cdot 10^{-4}$
"	"	10^{-21}	$4 \cdot 10^{-7}$	$1.0 \cdot 10^{-7}$
"	"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$1.0 \cdot 10^{-4}$
"	$40 \cdot 10^{-8}$	10^{-17}	$4 \cdot 10^{-7}$	$7.8 \cdot 10^{-7}$
"	"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$7.8 \cdot 10^{-4}$
"	"	10^{-21}	$4 \cdot 10^{-7}$	$7.8 \cdot 10^{-7}$
"	"	"	$4 \cdot 10^{-4}$	$7.8 \cdot 10^{-4}$

2.1.2 Radon-exhalatie uit klei

Voor klei zijn in vergelijking tot steenzout in de literatuur meer gegevens over de relevante parameters te vinden. In het onderstaande worden schattingen gemaakt van het bereik van de invoerparameters op basis de in de literatuur gevonden informatie.

Partitie-gecorrigeerde porositeit

De klei waarin de mijn uitgraven wordt zal initieel in het algemeen verzadigd zijn met water ($m=1$). Echter door de ventilatie van de galerijen zullen de wanden waarschijnlijk uitdrogen en kunnen er situaties optreden waarbij de waterverzadiging lager zal zijn. Het effect hiervan zal later afgeschat worden. Droge kleioppervlakken zullen radon adsorberen. Schery *et al.* [9] geven voor bentoniet en "sandy clay loam" bijvoorbeeld waarden voor de radonadsorptie-coëfficiënt k_a van respectievelijk 10^{-2} en $8.4 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3 \text{ kg}^{-1}$. Echter de hoeveelheid geadsorbeerd radon neemt exponentieel af als functie van de

waterverzadiging en is voor de meeste materialen verwaarloosbaar in het bereik $m=0.3-0.4$ [10] van de waterverzadiging. Aangezien het onwaarschijnlijk lijkt dat zulke lage vochtgehalten zullen optreden ten gevolge van uitdroging door ventilatie zullen we aannemen dat $k_a=0$ in alle gevallen. De porositeit van klei bestrijkt een redelijk groot bereik van $\varepsilon=0.3$ tot 0.7 [11]. Voor de Ostwald coëfficiënt L die de partitie tussen radon in de lucht en waterfase beschrijft wordt de waarde 0.18 aangenomen (zie appendix C). Dit leidt tot een waardenbereik voor β van 0.05 tot 0.15 .

Diffusiecoëfficiënt

De diffusiecoëfficiënt van radon in waterverzadigde morene en diluviale klei is gemeten door Søggaard *et al.* [11]; zij rapporteren een waardenbereik van 1 tot $5 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$. Een schatting van deze diffusiecoëfficiënt is ook te maken op basis van vergelijking 3 met ε in het bereik van 0.3 tot 0.7 en voor de tortuositeit een waarde van 0.6 tot 0.7 aan te nemen. Dit leidt dan tot een bereik van $2 \cdot 10^{-10}$ tot $5 \cdot 10^{-10} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ in overeenstemming met het voorgaande.

Intrinsieke permeabiliteit

In klei die volledig verzadigd is met water is geen luchtstroom mogelijk en is de intrinsieke permeabiliteit gelijk aan nul. Voor klei die niet volledig is verzadigd is er wel een luchtstroming mogelijk zoals eerder al is opgemerkt zou dit kunnen optreden bij uitdrogende wandoppervlakken tengevolge van de ventilatiestroom in de mijngalerij.

Radonproductiesnelheid

Het ^{226}Ra gehalte van Nederlandse kleivoorkomens ligt tussen de 20 en 50 Bq kg^{-1} [12] terwijl de bulkdichtheid ongeveer $1.1 \cdot 10^3 \text{ kg m}^{-3}$ is [13]. De emanatiecoëfficiënt is afhankelijk van de waterverzadiging (zie appendix C) maar omdat de klei die de mijngalerij omhult altijd redelijk nat verondersteld kan worden is de emanatiecoëfficiënt zeer waarschijnlijk gelijk aan de maximale waarde (plateau-waarde). Voor klei is het waardenbereik van de emanatiecoëfficiënt 0.18 tot 0.40 [14]. Met deze waarden vinden we tenslotte voor het waardenbereik van de radonproductiesnelheid: $8 \cdot 10^{-3}$ tot $5 \cdot 10^{-2} \text{ Bq m}^{-3} \text{ s}^{-1}$.

Exhalatiesnelheid

Evenals voor het zoutgesteente is voor klei de radonexhalatiesnelheid berekend (zie tabel 4) met behulp van het RAETRAP programma. Omdat aangenomen is dat de klei volledig verzadigd is met water treedt er geen advectie op. De eventuele invloed van advectie door gedeeltelijk door de ventilatielucht gedroogde kleiwanden wordt in paragraaf 2.1.3 kort besproken.

Uit tabel 4 blijkt dat voor de exhalatiesnelheid van klei hetzelfde verband met diffusiecoëfficiënt, radonproductiesnelheid en partitie-gecorrigeerde porositeit opgaat als voor zoutgesteente. De waarden van de radonexhalatiesnelheid bevinden zich in het bereik van $0.66-17 \cdot 10^{-3} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. De eerder vermelde (tabel 1) gemeten diffusieve exhalatiesnelheden voor klei vallen in dit bereik.

Tabel 4 *Berekende diffusieve exhalatiesnelheden uit klei voor de extremen van het bereik van de relevante parameters.*

β	D ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$)	S ($\text{Bq m}^{-3} \text{s}^{-1}$)	E ($\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$)
0.05	$2 \cdot 10^{-10}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$1.9 \cdot 10^{-3}$
"	"	$5 \cdot 10^{-2}$	$1.1 \cdot 10^{-2}$
"	$5 \cdot 10^{-10}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$3.1 \cdot 10^{-3}$
"	"	$5 \cdot 10^{-2}$	$1.7 \cdot 10^{-2}$
0.15	$2 \cdot 10^{-10}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$1.3 \cdot 10^{-3}$
"	"	$5 \cdot 10^{-2}$	$7.3 \cdot 10^{-3}$
"	$5 \cdot 10^{-10}$	$8 \cdot 10^{-3}$	$6.6 \cdot 10^{-4}$
"	"	$5 \cdot 10^{-2}$	$1.2 \cdot 10^{-3}$

2.1.3 Schatting van het effect van uitdrogen van de kleiwanden op de radonexhalatie

Door de ventilatie van de mijngalerij wordt voortdurend water afgevoerd dat uit de wanden verdampt. Dit kan mogelijk tot uitdroging leiden en zo de exhalatiesnelheid van deze wanden beïnvloeden. In geval van uitdroging zal de luchtgevulde porieruimte toenemen en lijkt het in eerste instantie dat de transportsnelheid van radon door de poriën en dus ook de exhalatiesnelheid zal toenemen. Echter door de uitdroging zal de klei ook inklinken en compacter worden waardoor een gedeelte van bovengenoemd effect verloren gaat. Omdat het bovendien, gezien de gegevens betreffende de experimentele schacht van het SCK (waar praktisch geen water uit de kleiwand verdampt, zie volgende paragraaf), ook twijfelachtig lijkt of een dergelijke uitdroging ook echt plaatsvindt zullen we dit effect verder als te verwaarlozen veronderstellen.

2.1.4 Radon-vrijzetting uit inlekkend poriënwater; mijn in kleilaag

In de mijn in een kleilaag zal een deel van het poriënwater kunnen inleken. In dit water is een deel van het radon opgelost. Door de voor de luchtfase gunstige partiticoëfficiënt en het feit dat het water verdampt komt het radon in de lucht.

Navraag bij het SCK in Mol (België) leerde dat voor de experimentele schacht (24 m diep) en galerij (8 m lang) in de Boomse klei die beide een interne diameter van 1.4 m en externe diameter van 2 m (met 30 cm dikke betonblokken bekleed) hebben het waterdebiet slechts 1.6 tot 2.6 liter per dag is. Het kleioppervlak waardoor het water inlekt is dan $2\pi \cdot 2 \cdot (24+8) = 402 \text{ m}^2$. De

inlek per m^2 is dan: $5.7 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3_{\text{water}} \text{ s}^{-1}$. Deze waarde is waarschijnlijk representatief voor de verwachten situatie in Nederland.

De evenwichtsradonconcentratie C_w^{eq} in het poriewater van een volledig verzadigd poreus materiaal ($m=1$) wordt gegeven door:

$$C_w^{\text{eq}} = \frac{\eta \rho_b C^{\text{Ra}}}{\epsilon} \quad (7)$$

waarin η de emanatiecoëfficiënt; ρ_b is de bulkdichtheid (droge massa) van het poreuze medium (kg m^{-3}) en ϵ de porositeit van de klei.

In tabel 5 wordt het waardenbereik voor de grondwater radonconcentratie gegeven uitgaande van de extreme waarden van de in vergelijking 7 voorkomende parameters van klei.

Tabel 5 *Waardenbereik voor de radonconcentratie in het poriënwater in klei en het waardenbereik van de invloed hebbende parameters*

Parameter	Minimum	Maximum
η	0.18	0.4
ϵ	0.3	0.7
ρ_b (kg m^{-3})	1100	1100
C_{Ra} (Bq kg^{-1})	20	50
C_w^{eq} (Bq m^{-3})	$5.7 \cdot 10^3$	$7.3 \cdot 10^4$

De radonvrijzetting is dan, met de boven gegeven waterinlek, tussen $3.2 \cdot 10^{-7} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ en $4.2 \cdot 10^{-6} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Dit is verwaarloosbaar ten opzichte van de exhalatiesnelheden berekend in tabel 4. Deze bron van radon zal daarom verder niet beschouwd worden.

2.2 Radon-infiltratie in de mijn vanuit het afval

Het afval wordt bij de opberging afgeleverd in gesloten vaten, waaruit het radongas niet kan ontsnappen. Na plaatsing in de mijn kan de container lek raken onder invloed van de gesteentedruk of door corrosie. De levensduur van de container hangt af van zijn sterkte en de (corroderende) eigenschappen van het gastgesteente. Voor containers zonder speciale versterkingen zal de levensduur niet groter zijn dan enkele jaren. Voor containers met een sterke “overpack” kan de levensduur oplopen tot zo’n 1000 jaar. In Zweden wordt de ruimte tussen het KSA en de overpack gevuld met koper; beweerd wordt dat dit type container nooit faalt. Voor de verpakkingen voorgesteld in de Nederlandse ontwerpen is het echter niet uit te sluiten dat er na verloop van tijd een uitweg kan ontstaan uit de container voor het radongas. In duizend jaar tijd zal de

hoeveelheid ^{226}Ra hoogstens gehalveerd zijn, terwijl er mogelijk ^{226}Ra ingegroeid kan zijn vanuit ^{230}Th . Eenmaal ontsnapt uit de container kan het radongas migreren door het gastgesteente, dan wel door de mijninfrastructuur (of wat daar nog van over is na 1000 jaar).

In appendix A is vastgesteld dat het volgende afval een potentiële bron van ^{222}Rn is:

W 11-1	300 COGEMA containers met KSA
W 42-10	400 vaten met “technisch alfa-houdend” afval door opwerken
L 52-5	1050 vaten MIF radiumhoudend
L 52-7	700 vaten MIF diversen inclusief radium

Het KSA (W 11-1) wordt op een heel andere wijze behandeld en opgeborgen dan het andere afval (W 42-10, L 52-2 en L 52-7), omdat het KSA hoogactief is, terwijl het andere radiumhoudende afval middel- en laagactief is.

2.2.1 Opberging in zoutgesteente

In appendix B zijn de opbergconcepten voor opberging in zoutgesteente en in een weinig-permeabele kleilaag beschreven. Het huidige METRO-I ontwerp [15] is een modificatie van het ontwerp van Van Hattum en Blankevoort [16]. Omdat voor een aantal gegevens gebruik gemaakt moet worden van dit oorspronkelijke ontwerp, worden beide behandeld.

KSA (W 11-1)

In het ontwerp van Van Hattum en Blankevoort en het daaruit afgeleide PROSA ontwerp wordt KSA dat verpakt is in de zogenaamde COGEMA containers, opgeborgen in diepe, verticale boorgaten, geboord vanuit de dwarsgalerijen in de KSA vleugel. In de PROSA studie wordt bijvoorbeeld een variant beschouwd waarbij de KSA-vleugel bestaat uit drie dwarsgalerijen, met elk twee boorgaten voor KSA en één voor ander HAVA. Een boorgat bevat 53 KSA-canisters, respectievelijk 67 HAVA-canisters. Elk boorgat wordt afgeplugd met een “seal”. De mijn wordt afgesloten door elke dwarsgalerij aan weerszijden af te sluiten met een dam en de twee hoofdgalerijen worden afgesloten van de veiligheidszone met elk een dam.

In het METRO-I ontwerp [15] worden de COGEMA containers elk in een afzonderlijk, relatief ondiep (4.3 m), horizontaal boorgat geplaatst, en afgeplugd met drie zoutpluggen van elk één meter (totale dikte 3 m).

In het METRO-I rapport wordt voorgesteld om pluggen van voorgecompacteerde zout-cilinders te gebruiken om het horizontale boorgat met daarin de container met verglaasd KSA af te dichten. Door de gesteentedruk wordt deze plug na plaatsen verder gecompacteerd waarbij de porositeit steeds verder afneemt, totdat de plug volledig gecompacteerd is: de plug gedraagt zich dan hetzelfde als het steenzout.

Onmiddellijk na het plaatsen van de KSA container in het boorgat, is de container zelf nog intact. De container zal, ten gevolge van hetzelfde proces als het compacteren van de plug, beschadigd raken. Het is niet uit te sluiten dat de container beschadigd raakt voordat de plug gecompacteerd is. In dat geval kan het radongas dat het KSA kan verlaten de galerij bereiken, en zal door de ventilatie afgevoerd worden. Een andere belemmering is het KSA zelf: dit bestaat uit gestold glas met daarin verdeeld de splijtingsproducten waaronder ^{226}Ra . Het ^{222}Rn zal dus door de glasmatrix moeten diffunderen, voordat het via een lek in de containerwand en de plug de galerij kan bereiken.

Voor de productiesnelheid van radon uit radioactief materiaal is de activiteit van het moedernuclide ^{226}Ra van belang. In afvalstrategie OPLA-A is er sprake van 300 containers met KSA. Per container is er sprake van de in tabel 6 gegeven nuclide-inventaris op het tijdstip van opberging. De hoeveelheid ^{226}Ra in de container zal in eerste instantie toenemen door ingroei tengevolge van het verval van ^{234}U en ^{230}Th . In tabel 7 wordt de radiumactiviteit en radonproductie in een container gegeven als functie van de tijd na opberging. Deze activiteit en productie zijn berekend met behulp van de Bateman vergelijkingen [17] op basis van de in tabel 6 gegeven nuclide-inventaris.

Tabel 6 *Nucliden-inventaris van een container met KSA (Bq)*

nuclide	activiteit (Bq)
^{226}Ra	5250
^{230}Th	$3.1 \cdot 10^6$
^{234}U	$9.3 \cdot 10^7$
^{238}U	$2.4 \cdot 10^7$

Uit tabel 7 blijkt dat voor de bedrijfsfase van de mijn (0-100 jaar) de radonproductie per container toeneemt van 40 tot ongeveer 1000 Bq h^{-1} . De grootste waarden voor de radonproductie treden daarna op tijdens de isolatiefase met een maximale productiesnelheid van $3.8 \cdot 10^5 \text{ Bq h}^{-1}$ na 10^5 jaar.

Tabel 7 ^{226}Ra -activiteit en ^{222}Rn -productie in één container met KSA als functie van de tijd na opberging.

tijd (jaar)	^{226}Ra -activiteit (Bq)	^{222}Rn -productie (Bq h ⁻¹)
0	$5.3 \cdot 10^3$	40
10	$1.8 \cdot 10^4$	140
100	$1.4 \cdot 10^5$	$1.0 \cdot 10^3$
10^3	$1.2 \cdot 10^6$	$9.2 \cdot 10^3$
10^4	$9.1 \cdot 10^6$	$6.9 \cdot 10^4$
10^5	$5.1 \cdot 10^7$	$3.8 \cdot 10^5$
10^6	$3.0 \cdot 10^7$	$2.3 \cdot 10^5$
10^7	$2.4 \cdot 10^7$	$1.8 \cdot 10^5$
10^8	$2.4 \cdot 10^7$	$1.8 \cdot 10^5$
10^9	$2.1 \cdot 10^7$	$1.6 \cdot 10^5$
10^{10}	$5.1 \cdot 10^6$	$3.9 \cdot 10^4$

In het geval de zoutplug nog niet volledig gecompacteerd is kan radon via de lucht de mijngalerij infiltreren. De maximale hoeveelheid radon die in deze situatie per container de mijn infiltreert wordt gegeven als functie van de tijd na opberging door de waarden in de rechterkolom van tabel 7. Als we aannemen dat het totaal wandoppervlak van de mijn gelijk is aan $(2 \times 4 + 2 \times 5) \times 2300 = 41400 \text{ m}^2$ dan is de maximale infiltratie per wandoppervlak gelijk aan de in tabel 8 gegeven waarden. In de praktijk zal de infiltratie lager zijn omdat niet al het radon dat in het KSA geproduceerd wordt hieruit zal ontsnappen en omdat het radon dat wel ontsnapt eerst nog 3 m moet afleggen door de plug om de mijngalerij te bereiken.

In het geval de zoutplug volledig gecompacteerd is kunnen we de radonuitstoot in de mijngalerij niet meer modelleren met een 1-dimensionaal model omdat het transport niet alleen door maar ook via het de zoutplug omhullende zoutgesteente zal plaatsvinden. Echter de maximale infiltratie naar de mijngalerij zal veel kleiner zijn dan de in het bovenstaande geschatte maximale infiltratie.

Bij tabel 8 moet uitgegaan worden van de tijdsduur dat de mijn open blijft voor terughalen van afval. We veronderstellen dat deze tijdsduur korter zal zijn dan 1000 jaar. In deze tijd zou het volume (en het wandoppervlak) kunnen afnemen door convergentie. We veronderstellen dat door onderhoud van de galerijen het wandoppervlak gelijk blijft.

Tabel 8 *²²²Rn-infiltratie per totale wandoppervlak van de mijn vanuit één container met KSA als functie van de tijd na opberging.*

tijd (jaar)	²²² Rn-productie (Bq m ⁻² s ⁻¹)
0	2.6·10 ⁻⁷
10	9.4·10 ⁻⁷
100	6.7·10 ⁻⁶
10 ³	6.2·10 ⁻⁵

Ander radiumhoudend afval (W 42-10, L 52-2, L52-7)

In het ontwerp van Van Hattum en Blankevoort en de daaruit afgeleide PROSA ontwerp-variant wordt dit afval opgeborgen in grote “kamers” met een volume van 40000 m³. In de PROSA ontwerp-varianten wordt het W 42-10 in een andere kamer opgeborgen dan L 52-2 en L52-7.

Volgens Van Hattum en Blankevoort duurt het opbergen van het afval in de kamers ongeveer drie jaar¹ voor strategie A. Het nog open volume in de kamer wordt nagevuld met zoutgruis. De drie ingangen tot de kamer worden elk afgesloten met een dam, één op het moment van ingebruikneming van de kamer (deze verbond de kamer met de hulpverdieping en is nodig bij de aanleg van de kamer), de andere twee als afsluiting van de kamer.

De dammen die de kamers afsluiten zijn verankerde betonproppen van 10 m lang, die de doorgang (ongeveer 4×5 m²) opvullen. In het ontwerp van Van Hattum en Blankevoort bevatten deze dammen geen (waterdichte) bentonietschilden. (De dammen waar dwarsgalerijen, doorslagen en hoofdgalerijen mee afgesloten worden omvatten wél waterdichte bentonietschilden.)

Gezien de grote stapeling van containers in de kamers, is het niet uit te sluiten dat enkele containers lek raken tijdens de plaatsingswerkzaamheden in de loop van de drie jaar. In de periode van plaatsing moet het vrijkomende gas dus door ventilatie afgevoerd worden.

Nadat de kamer nagevuld en afgesloten is, zal door de convergentie van het zoutgesteente alles wat aanwezig is in de kamer gecompacteerd gaan worden. Dit zal op den duur leiden tot het lek raken van een groot deel van de containers. Gassen kunnen dan door het gecompacteerd zoutgruis diffunderen, en de dam die de kamer afsluit bereiken. Vervolgens moeten de gassen door het beton waaruit de dam bestaat diffunderen, of door een eventuele spleet tussen het beton en de zoutwand. Echter, als er al een spleet aanwezig was na het aanleggen van de dam, dan zal deze vrij snel dichtvloeien door de convergentie van het zoutgesteente. Eenmaal voorbij de dam bereikt het gas de mogelijk open

¹ Dit zijn waarschijnlijk twee opeenvolgende periodes van 1.5 jaar voor elke kamer. Het rapport van Van Hattum en Blankevoort is daar niet helemaal duidelijk over.

galerijen, en zal dan door ventilatie afgevoerd worden.

In principe vormt het MIF tijdens de bedrijfsfase de grootste bron van radon. Er is sprake van 1050 containers met $2.2 \cdot 10^9$ Bq ^{226}Ra -activiteit per container ten tijde van opberging. In tabel 9 wordt de radonproductie per container als functie van de tijd na opberging gegeven. In de berekening van de waarden in tabel 9 is gebruikt dat het radium in het MIF “unsupported” is en er dus geen ingroei uit eerdere nucliden in de ^{238}U reeks plaatsvindt. De radonproductie per container neemt onder deze aanname af met de halveringstijd van radium.

Tabel 9 ^{222}Rn -productie uit één container met MIF als functie van de tijd na opberging.

tijd (jaar)	^{222}Rn -productie (Bq h ⁻¹)
0	$1.66 \cdot 10^7$
10	$1.66 \cdot 10^7$
50	$1.63 \cdot 10^7$
10^2	$1.59 \cdot 10^7$
10^3	$1.08 \cdot 10^7$
$5 \cdot 10^3$	$1.90 \cdot 10^6$
10^4	$2.19 \cdot 10^5$
$5 \cdot 10^4$	0

2.2.2 Opberging in een diepe, weinig-permeabele kleilaag

Bij gebrek aan een gedetailleerd ontwerp voor opberging in klei, wordt uitgegaan van de volgende situatie. De containers zijn opgeborgen in holten in de klei, die eventueel voorzien zijn van een “lining” (bij voorkeur een corrosiebestendig metaal) en die nagevuld zijn met een geschikt materiaal (overwogen wordt bentoniet). In de holten voor KSA zijn slechts een beperkt aantal containers opgeslagen (hoogstens enkele tientallen) vanwege de warmte-ontwikkeling. De andere holten worden zo efficiënt mogelijk gevuld met MAVA en eventueel LAVA.

2.3 Radonconcentratie in de mijn

2.3.1 Exhalatie uit gastgesteente

In de meeste concepten voor de aan te leggen mijninfrastructuur is sprake van hoofdgalerijen waarop dwarsgalerijen worden aangelegd. In de METRO I rapportage is sprake van galerijen met breedte 5m en hoogte 4m. Deze galerijen zullen geventileerd worden met schone (buiten)lucht. In het METRO I concept is sprake van ongeveer 2300 m galerij en dus een totaal te ventileren volume van in ieder geval $46 \cdot 10^3 \text{ m}^3$.

Laten we nu een enkele galerij beschouwen met lengte, breedte en hoogte van respectievelijk l , b , h waarvan de wanden gevormd worden door identiek gastgesteente. Laat deze galerij geventileerd worden door een stroom schone lucht Q_{vent} ($\text{m}^3 \text{ s}^{-1}$) die aan een van de uiteinden van de galerij ingevoerd wordt en na doorstroom door de galerij aan het andere uiteinde afgevoerd wordt zonder zijdelingse verliezen. De schone invoerstroom veronderstellen we geen radon te bevatten, tijdens de doorvoer zal de radonconcentratie in de ventilatielucht toenemen tengevolge van radoninfiltratie vanuit het gastgesteente naar de mijngang. De hoogste radonconcentratie zal dus aan het (afvoer)eind van de mijngang optreden. De absolute waarde van deze radonconcentratie zal afhangen van de grootte van de radoninflux vanuit het gastgesteente. Stellen wij deze influx E ($\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$) onafhankelijk van de positie op het wandoppervlak en constant als functie van de tijd dan kunnen we de volgende vergelijking opstellen voor het verloop van de radonconcentratie als functie van de coördinaat x die we in de richting van de ventilatiestroom kiezen waarbij $x=0$ overeenkomt met de positie waar de schone lucht aangevoerd wordt.

$$\frac{\partial C}{\partial x} = \frac{E(2h+2b)}{Q_{\text{vent}}} - \frac{\lambda h b C}{Q_{\text{vent}}} \quad (8)$$

Met de randvoorwaarde $C(0)=0$ is vergelijking (8) op te lossen als:

$$C(x) = \frac{E(2b+2h)l}{\lambda_v V} \left(1 - e^{-\frac{\lambda}{\lambda_v} \frac{x}{l}} \right); \quad 0 \leq x \leq l \quad (9)$$

waarin λ_v (s^{-1}) het ventilatievoud van de galerij is gedefinieerd als: $\lambda_v = Q_{\text{vent}}/V$ waarin V (m^3) het totale volume ($V=bhl$) is. In het geval de hoeveelheid radon die vervalt te verwaarlozen is ten opzicht van de hoeveelheid die met de ventilatiestroom wordt afgevoerd kunnen we vergelijking (9) benaderen door:

$$C(x) = \frac{E(2b+2h)x}{\lambda_v V}; \quad 0 \leq x \leq l \quad (10)$$

In tabel 10 en 11 wordt voor verschillende waarden van het ventilatievoud en voor de minimale en maximale waarde van de radonexhalatiesnelheid de radonconcentratie aan het eind van de galerij gegeven voor respectievelijk zoutgesteente en klei. Deze concentraties zijn berekend met vergelijking (9). Uit deze vergelijking volgt ook dat deze concentraties onafhankelijk zijn van de lengte van de galerij omdat zowel de totale radonproductie (Bq s^{-1}), $R_{\text{ex}} = Ex(\text{exhalerend oppervlak})$ als het totale volume V recht evenredig zijn met l .

Tabel 10 *Radonconcentratie (Bq m^{-3}) als functie van het ventilatievoud voor de extremen van het bereik van de exhalatiesnelheid van zoutgesteente*

$E (\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1})$	$\lambda_v (\text{h}^{-1})$					
	0	0.1	0.5	1	2	10
$1.0 \cdot 10^{-7}$	0.04	$3 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-5}$
$5.5 \cdot 10^{-3}$	2400	172	35	18	9	1.8

Tabel 11 *Radonconcentratie (Bq m^{-3}) als functie van het ventilatievoud voor de extremen van het bereik van de exhalatiesnelheid van klei*

$E (\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1})$	$\lambda_v (\text{h}^{-1})$					
	0	0.1	0.5	1	2	10
$0.66 \cdot 10^{-3}$	280	20	4	2	1	0.2
$17 \cdot 10^{-3}$	7300	530	110	55	27	6

2.3.2 Infiltratie uit afval

KSA

De radon-concentraties ten gevolge van één lekkende KSA-container (tabel 12) zijn uitgerekend met dezelfde procedure en geometrie als in het geval van exhalatie uit het gastgesteente. Voor de radonproductie per oppervlakte-eenheid is de waarde op tijdstip van opberging uit tabel 8 gebruikt. In het geval meer dan één lekkende KSA container aanwezig is kunnen de optredende concentraties gevonden worden door de concentraties in tabel 12 met het aantal lekkende containers te vermenigvuldigen.

Tabel 12 *Maximale radonconcentratie (Bq m^{-3}) tengevolge van één lekkende KSA container als functie van het ventilatievoud.*

$\lambda_v (\text{h}^{-1})$					
0	0.1	0.5	1	2	10
0.1	$8 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-3}$	$8 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-5}$

Het maximum van de concentratie is geschat door aan te nemen dat het radon

na falen van de container in veel kortere tijd dan vier dagen uit de glasmatrix kan diffunderen en door of langs de drie meter lange pluggen.

MIF

Indien we de ruimte waar het MIF opgeslagen ligt als een geventileerde ruimte met volume V en ventilatievoud λ_v voorstellen en veronderstellen dat al het radon dat geproduceerd wordt in een lekkende container ook vrijkomt in de opslagruimte dan wordt de radonconcentratie C_{MIF} in deze ruimte gegeven door:

$$C_{MIF} = \frac{nA_{MIF}}{V} \frac{\lambda}{\lambda_v + \lambda} \quad (11)$$

waarin n het aantal lekkende containers voorstelt. Als we voor het volume van de opslagruimte 40000 m^3 nemen dan kunnen we met behulp vergelijking (11) de radonconcentratie uitrekenen tengevolge van één ($n=1$) lekkende container en als functie van het ventilatievoud (zie tabel 13).

Tabel 13 *Radonconcentratie (Bq m^{-3}) C_{MIF} in de opslagruimte tengevolge van één lekkende MIF container als functie van het ventilatievoud.*

$\lambda_v \text{ (h}^{-1}\text{)}$					
0	0.1	0.5	1	2	10
$5.4 \cdot 10^4$	$4 \cdot 10^3$	700	400	200	40

Indien meer dan één container lekt kunnen evenals voor het KSA de dan optredende concentraties gevonden worden door de concentraties in tabel 13 met het aantal lekkende containers te vermenigvuldigen.

2.3.3 Maximaal optredende radonconcentraties

Het ventilatiedebiet voor één KSA vleugel van de mijn wordt in appendix B.3 gesteld op $10^5 \text{ m}^3 \text{ h}^{-1}$. Het volume van de mijn is ongeveer $4 \times 5 \times 2300$ is $46 \cdot 10^3 \text{ m}^3$. Het ventilatievoud bij een dergelijk ventilatiedebiet is dus ongeveer 2 h^{-1} .

In tabel 14 worden de radonconcentraties die bij dit ventilatievoud maximaal kunnen optreden voor de drie verschillende bronnen (gastgesteente, KSA en MIF) nogmaals samengevat.

Tabel 14 *Maximale radonconcentratie (Bq m^{-3}) in de mijn bij ventilatie*

gastgesteente		bij falen één container	
zout	klei	KSA	MIF
9	27	$< 4 \cdot 10^{-4}$	200

Wanneer de ventilatie uitgeschakeld is, kan de radonconcentratie in de mijn oplopen. Een evenwicht ontstaat wanneer de concentratie in de mijn zo hoog is

dat er per seconde evenveel ^{222}Rn vervalt als dat er binnendringt vanuit de wanden. De concentraties die dan kunnen optreden zijn samengevat in tabel 15

Tabel 15 *Maximale radonconcentratie (Bq m^{-3}) in de mijn zonder ventilatie*

gastgesteente		bij falen één container	
zout	klei	KSA	MIF
2400	7300	< 0.1	$5.4 \cdot 10^4$

2.4 Radonemissie uit de mijn door ventilatie

In het geval de mijn geventileerd wordt kunnen we in het algemeen aannemen dat de transporttijd van radon van punt van vrijkomen in de galerij naar het emissiepunt van de mijn veel kleiner is dan de halveringstijd van radon. Dit impliceert dat we het verval van radon buiten beschouwing kunnen laten en de totale emissie is dan gelijk aan de totale exhalatie cq. infiltratie in de mijn. In tabel 16 worden deze maximale emissies samengevat.

Tabel 16 *Maximale radonemissie (Bq jaar^{-1}) uit de mijn door ventilatie*

gastgesteente		bij falen één container	
zout (86E3 m^3)	klei (86E3 m^3)	KSA (46E3 m^3)	MIF (46E3 m^3)
$1.3 \cdot 10^{10}$	$4.1 \cdot 10^{10}$	< $3.5 \cdot 10^5$	$1.5 \cdot 10^{11}$

Wanneer de ventilatie enige tijd uitgeschakeld is geweest kan de radonconcentratie in de mijn hoger zijn dan bij ventilatie. Bij het starten van de ventilatie wordt het in de mijn aanwezige radon ineens geloosd. In tabel 17 worden deze maximale emissies samengevat.

Tabel 17 *Maximale radonemissie (Bq) uit de mijn na tijdelijke stop van ventilatie*

gastgesteente		bij falen één container	
zout	klei	KSA	MIF
$2.1 \cdot 10^8$	$6.3 \cdot 10^8$	< 8600	$4.6 \cdot 10^9$

In tabel 16 is de emissie door ventilatie uit het gastgesteente gebaseerd op een totaal wandoppervlak van 41400 m^2 en in tabel 17 is de emissie na tijdelijke stop van de ventilatie in geval van gastgesteente en KSA gebaseerd op een mijnvolume van $46 \cdot 10^3 \text{ m}^3$ en voor het MIF op een mijnvolume van $40 \cdot 10^3 \text{ m}^3$.

Consequenties van lozing van ^{222}Rn

In [18] is aangegeven dat de dosis ten gevolge van lozing van 1 Bq jaar^{-1}

^{222}Rn tenminste $4 \cdot 10^{-19}$ (Sv jaar $^{-1}$) bedraagt. Bij een ongunstige bronconfiguratie kan dit (veel) meer worden. Het resultaat hiervan is uitgewerkt in tabel 18.

Tabel 18 *Doses ten gevolge van continue emissie van ^{222}Rn*

	emissie (Bq jaar $^{-1}$)	dosis (Sv jaar $^{-1}$)
zout	$1.3 \cdot 10^{10}$	$5.2 \cdot 10^{-9}$
klei	$4.1 \cdot 10^{10}$	$1.6 \cdot 10^{-8}$
falen één container KSA	$< 3.5 \cdot 10^5$	$< 1.4 \cdot 10^{-13}$
falen één container MIF	$1.5 \cdot 10^{11}$	$6 \cdot 10^{-8}$

Bij het herstarten van de ventilatie is de situatie complexer. De dosis hangt dan niet alleen af van de hoeveelheid radon die geloosd wordt, maar ook van de weersgesteldheid op het moment van starten van de ventilatie. Bij een lozingsduur van een half uur (ventilatievoud na starten is 2 uur $^{-1}$) is het dosismaximum 10 tot 60 maal groter dan bij even grote emissie die één jaar duurt. De oorzaak van deze verhoging is dat bij een kortdurende emissie alle radon in dezelfde richting verplaatst wordt, terwijl bij een langdurige emissie (bijvoorbeeld een jaar) het radon over alle windrichtingen verspreid wordt: bij dit laatste type emissies is de verdunning veel groter. In tabel 19 zijn de doses gegeven bij herstart, uitgaande van een factor 60 verhoging.

Tabel 19 *Doses ten gevolge van de emissie van Rn-222 na herstart ventilatie*

	emissie (Bq)	dosis (Sv)
zout	$2.1 \cdot 10^8$	$5.0 \cdot 10^{-9}$
klei	$6.4 \cdot 10^8$	$1.5 \cdot 10^{-8}$
falen één container KSA	< 8600	$< 2.1 \cdot 10^{-13}$
falen één container MIF	$4.6 \cdot 10^9$	$1.1 \cdot 10^{-7}$

Deze dosis kunnen vergeleken worden met de grenzen die gehanteerd worden bij vergunningsaanvragen. Hierbij geldt dat, bij doses hoger dan $4 \cdot 10^{-7}$ Sv jaar $^{-1}$ maatregelen geëist kunnen worden. Doses ten gevolge van (industriële) activiteiten, boven 1 mSv jaar $^{-1}$ worden ontoelaatbaar geacht (zie paragraaf 3.5).

2.5 Is detectie van containerfalen mogelijk door meting van radon in de mijn?

In het geval één of meer containers lek raken zal er radon ontsnappen en indien de hierdoor veroorzaakte extra radonproductie van dezelfde orde of groter is dan de productie vanuit het gastgesteente is het in principe mogelijk dit containerfalen te detecteren door middel van meting van de radonconcentratie.

In tabel 20 zijn de exhalatiesnelheden van het gastgesteente en het afval (per container) gegeven, op basis van de resultaten in tabellen 3 en 4 (gastgesteente), van tabel 8 (KSA) en van tabel 9 (MIF). In tabel 20 is met een '+' symbool aangegeven in welke gevallen containerfalen tot voldoende extra radonproductie kan leiden om in principe aangetoond te kunnen worden door meting van radonconcentratie in de mijn. Met een '0' wordt aangegeven dat er onvoldoende informatie is om te kunnen bepalen of het falen van een container detecteerbaar is.

Tabel 20 *Overzicht van de exhalatiesnelheden van gastgesteente en containers*

exhalatie één container ($\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)	exhalatie uit klei (in $\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)		exhalatie uit zout (in $\text{Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)	
	minimum $6.6 \cdot 10^{-4}$	maximum $1.7 \cdot 10^{-2}$	minimum 10^{-8}	maximum $5.5 \cdot 10^{-3}$
KSA na 0 jaar < $2.6 \cdot 10^{-7}$	-	-	0	-
KSA na 10^2 jaar < $6.7 \cdot 10^{-6}$	-	-	0	-
MIF 0.66	+	+	+	+

KSA

Uit tabel 20 blijkt dat het falen van één container KSA niet waar te nemen is in een opberging in klei. In zout is het mogelijk wel waarneembaar, indien de radiumconcentratie in het zout voldoende laag is, en het radon uit het KSA voldoende snel door de pluggen kan diffunderen.

MIF

De radonproductie uit één container met MIF is tijdens de bedrijfsfase ongeveer $1.7 \cdot 10^7 \text{ Bq h}^{-1}$ (tabel 9). Het MIF wordt opgeslagen in een ruimte van 40000 m^3 . Als we deze ruimte modelleren als een kubus is het totale wandoppervlak 7000 m^2 en kan de productie omgerekend worden naar een denkbeeldige infiltratie vanuit de wanden van $0.66 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Dit is een factor 120 groter dan het maximum van het geschatte bereik van de natuurlijke emissie vanuit zoutgesteente; voor klei is deze factor iets lager namelijk ongeveer 40. Radon zal dus zeer waarschijnlijk goed als indicator gebruikt kunnen worden om lekkende containers met MIF te signaleren.

3. RADONEXHALATIE AAN HET AARDOPPERVLAK

Na afloop van de bedrijfsfase zal de mijn nagevuld worden met zoutgruis of klei en worden afgesloten met diverse (waterdichte) dammen. Blootstelling aan radon afkomstig van het opgeborgen afval kan dan (afgezien van menselijke interventie of disruptieve geologische gebeurtenissen) nog slechts plaatsvinden via ontsnapping van radon aan het aardoppervlak.

In de volgende beschouwingen zullen we de modelsituatie aannemen dat het afval (KSA, MIF) in een ondergrondse holte is opgeslagen. Steeds vormt het gastgesteente (zout, klei) de eerste barrière en daarna het afdekpakket de tweede barrière.

Het totaal gemijnde ondergrondse volume is ongeveer 10^5 m^3 . De maximale radiumhoeveelheid in het in dit volume opgeborgen afval is ongeveer $2,4 \cdot 10^{12} \text{ Bq}$, de radonproductie hiervan is ongeveer $5,1 \cdot 10^6 \text{ Bq s}^{-1}$.

De maximaal mogelijke exhalatie aan het aardoppervlak tengevolge van deze productie vindt plaats in het geval het transport van radon naar boven zo snel is dat er geen verval optreedt. Indien we aannemen dat de gemiddelde hoogte van het ondergrondse volume ongeveer 4 m is dan is aan dit volume een oppervlakte van $2,5 \cdot 10^5 \text{ m}^2$ toe te kennen. De maximale equivalente exhalatie is hiermee af te schatten als ongeveer $20 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$. Deze maximale equivalente exhalatie is veel groter dan de exhalatie tengevolge van in de bodem aanwezige natuurlijke activiteit. Dit betekent dat als het transport vanuit de opbergholte naar het oppervlak voldoende snel plaatsvindt er sprake kan zijn van een extra risico door blootstelling aan radon.

Het gastgesteente (zout of klei) is gekozen vanwege zijn isolatie-eigenschappen. Het is de verwachting dat zelfs gasen slechts langzaam door het gesteente migreren. In het volgende zullen we de exhalatie tengevolge van twee mogelijke transportprocessen afschatten namelijk transport via diffusie en via opstijgende belletjes geo-gas. Er zal bepaald worden in hoeverre deze transportprocessen op kunnen treden in het gastgesteente en in het daarbovenliggende afdekpakket.

3.1 Radontransport via diffusie

In principe wordt de situatie beschreven door een 3-lagen systeem waarin de onderste laag bestaat uit gastgesteente met het opgeborgen afval, de middelste laag bestaat uit het gastgesteente en de bovenste laag bestaat uit een afdekpakket. Het afdekpakket wordt verondersteld zowel in het geval van

opberging in zout als klei, te bestaan uit een laag waterverzadigde klei. Indien we voor de parameters van waterverzadigde klei (diffusiecoëfficiënt, porositeit) die waarden uit de eerder gevonden bereiken nemen die de diffusielengte zo groot mogelijk maken dan vinden we voor deze diffusielengte een waarde van ongeveer 4 cm. Dat betekent dat met iedere 4 cm afdekpakket de radonflux gehalveerd wordt. Bij een dikte van bijvoorbeeld 10 meter betekent dit dat de flux al met een factor van ongeveer 10^{-76} is afgenomen. Voor alle praktische situaties kan transport van radon via diffusie naar de oppervlakte dus verwaarloosd worden.

3.2 Het “geo-bubble” model

Een andere mogelijke manier waarop radon vanuit de ondergrond aan het oppervlak kan komen is via microbelletjes geo-gas (CO_2 , O_2 , H_2 , He_2) die in de ondergrond ontstaan en via de watergevulde porieruimte van het afdekpakket naar de oppervlakte stijgen.

In een studie van Etiope en Lombardi [19] werd gevonden dat er in de radonconcentraties gemeten in het bodemgas op 50 cm diepte anomalieën (verhogingen) optreden boven tektonische breuklijnen die zich in de diepe ondergrond (tot 1000 m diepte) bevinden en afgedekt zijn met een pakket van klei en zand. De radonconcentraties die in het bodemgas gemeten werden waren in sommige gevallen tientallen keren zo hoog als op basis van de radiumconcentratie in het afdekpakket verwacht mag worden. De verklaring die de auteurs geven is dat radon dat afkomstig is van lagen in de diepe ondergrond die relatief veel uranium (geschat 30 keer meer dan in het afdekpakket) bevatten zich via het opstijgen van microbelletjes geo-gas naar de oppervlakte beweegt.

Experimenten van Etiope [20] met transport van microbelletjes (20-400 μm , diameter) helium door een waterverzadigde zandkolom (1.4 m) gaven transportsnelheden van deze belletjes in de orde van 300 tot 700 m h^{-1} . Dergelijke transportsnelheden zijn in principe voldoende om radon dat door het radioactief afval wordt geproduceerd naar het oppervlak te vervoeren voordat het vervalt.

Om voor een opbergingssituatie in Nederland de exhalatiesnelheid te schatten tengevolge van de opstijging van microbelletjes geogas moeten de volgende twee zaken afgeschat worden.

- 1) Hoeveel geogas stijgt er naar boven?
- 2) Wat is de radonconcentratie in de belletjes?

Het eerste punt kan afgeschat worden door de gegevens van Etiope [18] te beschouwen. In deze gegevens is sprake van gebieden met oppervlakte van ongeveer 1 km^2 waar een verhoogde radonconcentratie in de luchtfase op 50 cm diepte gevonden. Gemiddeld is deze verhoging ongeveer een factor 2. We maken

nu de volgende veronderstellingen:

- Deze verhoging is het gevolg van, uit diepere (enkele honderden meters) waterverzadigde uraniumrijke lagen in de ondergrond, opstijgende gasbelletjes.
- Bij het bereiken van het grondwaterpeil geven deze belletjes hun inhoud af aan de lucht in de poriën van de kleilaag boven het grondwater.
- Emanatiefactor η , porositeit ϵ en dichtheid ρ_b van de uraniumrijke laag zijn gelijk aan die van de klei van het afdekpakket.
- Het radiumgehalte in de uraniumrijke laag C^{Ra} (Bq kg^{-1}) is een factor 30 hoger dan die van de klei van het afdekpakket.

De radonconcentratie C_w^{eq} in de waterfase van de (waterverzadigde) poriën van de uraniumrijke laag wordt dan gegeven door:

$$C_w^{eq} = \frac{\eta \rho_b C^{Ra}}{\epsilon} \quad (12)$$

In een microbelletje in deze waterfase zal de radonconcentratie C_{bubble} ongeveer een factor 5 hoger zijn wegens de verdeling tussen gas- en waterfase (Ostwald coëfficiënt ongeveer 0.2). Dit betekent dus dat de radonconcentratie in een belletje geogas ongeveer een factor 150 (5×30) hoger is dan die in de luchtfase van het afdekpakket. De benodigde stroom geogas J_{bubble} ($\text{m}^3 \text{s}^{-1}$) voor een verhoging met een factor 2 van de radonconcentratie in de luchtfase van een volume V van het afdekpakket wordt gevonden uit:

$$J_{bubble} C_{bubble} = \lambda C_a^{eq} \epsilon V \quad (13)$$

Stellen we de porositeit op $\epsilon=0.5$ (de middelste waarde van het eerder gevonden bereik) dan kan deze stroom geogas geschat worden op $J_{bubble} = (1/150) \times 0.5 \times 2.1 \cdot 10^{-6} \times 3600 = 2.5 \cdot 10^{-5} \text{ m}^3 \text{h}^{-1}$ geogas per kubieke meter afdekpakket.

De radonconcentratie in eventuele geogasbelletjes die uit het opgeborgen radioactieve materiaal opstijgen kan gevonden worden met een zelfde beschouwing als eerder maar nu met $C^{Ra} \rho_b = 2 \cdot 10^{12}$ (totale hoeveelheid opgeborgen ^{226}Ra in Bq)/ 10^5 (totaal volume van de mijn in m^3) = $2 \cdot 10^7 \text{ Bq m}^{-3}$. Met een bereik voor de emanatiecoëfficiënt van 0.01-0.1 en een porositeit van 0.1 (schatting voor nagevulde mijn) vinden we dan $C_{bubble} = 10^7$ tot 10^8 Bq m^{-3} .

Dit betekent dat per kubieke meter afdekpakket (toplaag) ongeveer $2.5 \cdot 10^{-5} \times (10^7 \text{ tot } 10^8) \text{ Bq h}^{-1}$ is 0.07 tot 0.7 Bq s^{-1} radonactiviteit via microbelletjes aangevoerd kan worden en dat kan gerelateerd worden aan een extra exhalatiesnelheid van ongeveer 0.07 tot $0.7 \text{ Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$ tengevolge van het in de ondergrond opgeborgen afval. Deze extra exhalatiesnelheden zijn 1 tot 2 orden van grootte hoger dan die tengevolge van natuurlijke emissies.

Het oppervlak waar deze extra exhalatie kan plaatsvinden kan ruw geschat worden uit de gegevens van Ethiopie en Lombardi. Hiervoor nemen we 200 m

als karakteristieke diepte van de door hun onderzochte breuklijnen en beschouwen deze breuklijnen als lijnbronnen. Uit hun gegevens volgt voor deze breuklijnen een laterale verspreiding aan het oppervlak van ongeveer 1000 m. Hieruit schatten we dat de emissie vanuit een puntbron op 200 m diepte over 1 km² van het oppervlak aan het maaiveld verdeeld wordt.

De geschatte exhalatiesnelheid tengevolge van het in de ondergrond opgeborgen afval hangt in zeer sterke mate af van de veronderstelling dat de resultaten afgeleid voor het in Italië onderzochte type afdekpakket te vertalen zijn naar de Nederlandse situatie. Gezien de mogelijke significante verhogingen ten opzichte van de natuurlijke emissies aan het maaiveld lijkt verder onderzoek naar de validiteit van deze vertaalslag gewenst.

3.3 Transport van radon door het gastgesteente

Zoutgesteente

Het zoutgesteente is droog, zodat er geen sprake kan zijn van het “geo-bubble” transport. Het transport kan dan alleen nog door diffusie plaatsvinden. Daar bij het ontwerp ervoor gezorgd wordt dat de “zoutmantel” tussen mijn en afdekpakket ten minste 200 m dik is (vanwege eisen aan de structurele integriteit, [21]) mogen we veronderstellen dat al het radon vervalt tijdens diffusief transport richting afdekpakket.

Er zijn wel scenarios denkbaar waarbij het afval vanuit de mijn het afdekpakket bereikt. Echter, uit studies zoals PROSA blijkt dat andere nucliden dan radon de gevolgen domineren.

In het verleden zijn scenarios waarbij de ontwikkeling van corrosiegassen een rol speelt, nauwelijks onderzocht. Het is denkbaar dat de druk van corrosiegassen, die vooral ontstaan bij het corroderen van de metalen container, hoog kan oplopen. Wanneer deze gasdruk groter wordt dan de gesteentedruk, dan kan het de poriën open drukken, en zich snel door de formatie verplaatsen. Dit proces heet “break through”. Daar het radongas zich kan mengen met deze corrosiegassen, kan het op deze wijze het afdekpakket bereiken. Hierbij zij opgemerkt dat:

- a. Nog bestudeerd wordt of deze scenarios werkelijk kunnen optreden.
- b. Dit proces slechts een beperkte hoeveelheid radongas zal verplaatsen.

Laag permeabele kleiformatie

Hier is sprake van een tenminste 50 m dikke kleimantel, waardoor diffusief transport zo langzaam verloopt dat tijdens transport alle radon vervalt. Echter, de klei is verzadigd met water (in tegenstelling tot zout), zodat het “geo-bubble” transport niet op voorhand uitgesloten kan worden.

Er wordt momenteel onderzoek verricht naar het gedrag van corrosiegassen in het PEGASUS project onder contract van de Europese Commissie. Geconstateerd

is onder andere dat de “break through” druk in Boomse klei ongeveer 1 MPa bedraagt [22]. Het blijkt dus dat de klei de gasmigratie zeer goed kan tegenhouden. Het is niet waarschijnlijk, maar desondanks niet ondenkbaar, dat een langzaam transportproces door geo-bubbles onopgemerkt is gebleven bij de in-situ experimenten.

3.4 ^{222}Rn concentratie verhoging in woningen

In het recentelijk door RIVM uitgevoerde landelijk onderzoek naar radon in woningen 1995-1996 [23, 24] werd in een steekproef van ongeveer 1500 woningen, gebouwd tussen 1985 en 1994, de jaargemiddelde radonconcentratie in de woonkamer en in de kruipruimte bepaald. Voor de woonkamer werd een gemiddelde concentratie van 28 Bq m^{-3} gemeten en in de kruipruimte 70 Bq m^{-3} . Uit metingen van ventilatiestromen werd berekend dat in deze woningen 15% van de radonconcentratie in de woonkamer via de kruipruimte uit de bodem afkomstig is. De grootste bijdrage wordt geleverd door de bouwmaterialen namelijk 70%. De resterende 15% is afkomstig van de buitenlucht. We veronderstellen dat het radon in de buitenlucht ook afkomstig is van exhalatie vanuit de bodem. De totale bijdrage van exhalatie uit de bodem is dan 30%.

Het bovenstaande houdt in dat de natuurlijke emissie uit de bodem een bijdrage van ongeveer 8 Bq m^{-3} levert aan de radonconcentraties in de woning. In het geval er extra emissies optreden uit de bodem die een factor 10 tot 100 groter zijn dan de natuurlijke emissie kan er afgeleid worden dat hierdoor in de woning een bijdrage aan de radonconcentratie van 80 tot 800 Bq m^{-3} verwacht kan worden.

3.5 Conclusies ten aanzien van de transporttijd door de aardlagen

Wanneer het gastgesteente zich naar verwachting gedraagt, zal het ^{222}Rn het afdekpakket niet kunnen bereiken zonder onderweg volledig te vervallen. Wanneer er een “break through” van corrosiegassen zou optreden, kan een deel van het radon-inventaris het afdekpakket bereiken. Het optreden van “geo-bubble” transport in de kleiformatie is onwaarschijnlijk maar niet ondenkbaar, en in zoutgesteente onmogelijk.

Met de in dit rapport besproken theorie is het mogelijk om te toetsen of het afdekpakket bij een onvoorziene “kortsluiting” van het gastgesteente, in staat is om het radontransport dermate te vertragen dat toch alle ^{222}Rn tijdens transport vervalt. De hoeveelheid radon die aan het oppervlak vrijkomt zal halveren met ieder incrementum van de transporttijd door het afdekpakket met

één halveringstijd van radon ($T_{1/2}$ is 3.8 dagen). De exhalatiesnelheid $E_{\text{maai}}(T)$ aan het oppervlak wordt dan gegeven als functie van de transporttijd T (dagen):

$$E_{\text{maai}}(T) = E_{\text{maai}}(0) \left[\frac{1}{2} \right]^{\frac{T}{T_{1/2}}} \quad (14)$$

Indien we voor $E_{\text{maai}}(0)$ de eerder geschatte maximale exhalatie $20 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ (zonder vertraging in het gastgesteente en zonder vertraging in het afdekpakket) nemen dan kunnen we exhalatie aan het maaiveld voor ieder transporttijd bepalen.

In de Europese Unie is een richtlijn uitgevaardigd, waarin gesteld is dat de jaarlijkse dosis voor individuele leden van het publiek bij normaal gebruik van een installatie beneden 1 mSv per jaar dient te blijven [25]. Voor het vergunningsbeleid in Nederland is dit overgenomen, zij het dat de overheid wenst dat indien de jaarlijkse dosis groter is dan $0.4 \text{ }\mu\text{Sv}$ per jaar er gezocht wordt naar methoden om de blootstelling te verlagen [26,27].

Volgens de gangbare conversie conventie van ICRP [28] leidt 1 jaar blootstelling (continu, evenwichtfactor $C.4$) aan 1 Bq m^{-3} radon tot een dosis van $0.031 \text{ mSv jaar}^{-1}$. Het niveau van $0.4 \text{ }\mu\text{Sv/jaar}$ komt dan overeen met een radonconcentratie van 0.013 Bq m^{-3} . De radonexhalatiesnelheid door natuurlijke emissie is gemiddeld ongeveer $4 \cdot 10^{-3} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ en deze geeft een bijdrage van 8 Bq m^{-3} aan de radonconcentratie in de woning. Hieruit volgt dat de extra exhalatiesnelheid door het afval kleiner moet zijn dan $(0.013/8) \times 4 \cdot 10^{-3} = 6.5 \cdot 10^{-6} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$.

Merk op dat deze grenswaarde voor extra radonexhalatie ongeveer een factor 600 kleiner is dan de concentratie tengevolge van natuurlijke emissie uit de bodem.

Beschouwen we het niveau van 1 mSv jaar^{-1} , dan zal de extra radonconcentratie niet groter mogen worden dan 33 Bq m^{-3} . De extra exhalatiesnelheid door het afval moet dan kleiner zijn dan $((33)/8) \times 4 \cdot 10^{-3} = 1.65 \cdot 10^{-2} \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ om het niveau van 1 mSv jaar^{-1} niet te overschrijden.

Substitutie van bovenstaande grenswaarde voor de extra exhalatiesnelheid in vergelijking (14) geeft tenslotte een grenswaarde voor de transporttijd van $T = 82$ dagen voor $0.4 \text{ }\mu\text{Sv jaar}^{-1}$, respectievelijk $T = 39$ dagen voor 1 mSv jaar^{-1} .

4. CONCLUSIES EN AANBEVELINGEN

Het doel van dit project was een eerste inventarisatie te maken van de hoeveelheid ^{222}Rn die kan vrijkomen uit terughaalbaar in de diepe ondergrond opgeslagen radioactief afval.

In een eerdere veiligheidsstudie (PROSA) zijn de risico's onderzocht van de definitieve opberging van radioactief afval in de diepe ondergrond. Later is echter het concept van definitieve opslag gedeeltelijk vervangen door terughaalbare opberging. Dit laatste concept introduceert een bedrijfsfase waarin de mijn open is en in principe toegankelijk voor personeel. De mogelijke implicaties van het vrijkomen van radongas uit het afval gedurende deze bedrijfsfase van de opbergfaciliteit worden in hoofdstuk 2 van dit rapport behandeld. Het betreft hier schattingen van radonconcentraties in de mijn tengevolge van natuurlijke activiteit en tengevolge van lekken die optreden in de containers met afval. Ook worden schattingen gepresenteerd van de totale radonactiviteit die door lozingen in de atmosfeer gebracht wordt.

In de PROSA studie werden de veiligheidsaspecten gerelateerd aan blootstelling aan radon in rekening gebracht door diffusief en advectief transport in/met het grondwater van de voorgangers van radon in de vervalreeks te beschouwen en uit te gaan van radioactief evenwicht tussen deze radionucliden. Deze veronderstelling is alleen gerechtvaardigd als het transport van radon en voorgangers op dezelfde tijdschaal plaatsvindt. Echter omdat radon in tegenstelling tot zijn voorgangers een gas en dus meer mobiel is, is het in principe mogelijk dat transporttijden voor radon kleiner zijn. De mogelijkheden en consequenties van snel transport van radon naar het oppervlak zijn in hoofdstuk 3 van dit rapport onderzocht.

4.1 Conclusies

Aangezien in de doelstelling van dit project en gedurende de verdere invulling steeds het onderscheid is gemaakt tussen de bedrijfsfase en de isolatiefase worden ook de conclusies voor deze twee fasen apart gepresenteerd.

4.1.1 Bedrijfsfase

Radonconcentraties in de mijn

- Radonconcentraties tengevolge van natuurlijke productie bedragen bij *normale ventilatie* van de mijn ten hoogste 9 en 27 Bq m⁻³ voor respectievelijk zout en klei als gastgesteente. In het geval de *ventilatie* lange

tijd *uit* staat kunnen concentraties tot 2400 (zout) en 7300 (klei) Bq m⁻³ optreden

- Extra radonconcentraties tengevolge van het falen van één container met KSA zijn maximaal $4 \cdot 10^{-4}$ Bq m⁻³ in geval van *ventilatie* en 0.1 Bq m⁻³ *zonder ventilatie*.
- Extra radonconcentraties tengevolge van het falen van één container met MIF zijn ten hoogste 200 Bq m⁻³ bij *normale ventilatie* en $5.4 \cdot 10^4$ Bq m⁻³ na lange tijd *zonder ventilatie*.
- Bovenstaande concentraties moeten gezien worden in het licht van bijvoorbeeld de actiewaarde voor radon op werkplekken waarvoor de ICRP in haar publicatie 65 de aanbeveling doet (aan landen) om deze te kiezen tussen de 500 en 1500 Bq m⁻³ of van de DAC-waarde voor radon die 1000 Bq m⁻³ is.

Hieruit kunnen we dus de conclusie trekken dat bij *normale ventilatie* deze waarden nooit overschreden worden tengevolge van natuurlijke activiteit of lekken uit KSA containers. In het geval van de opslag van MIF kan wel van overschrijding sprake zijn indien enkele containers lek raken.

In geval de ventilatie langere tijd buiten bedrijf is geweest kan de radonconcentratie boven de bovengenoemde DAC-waarde komen. In de gevallen van opberging in klei en/of opslag van MIF kan deze overschrijding zelfs met bijna een orde van grootte plaatsvinden.

Radonemissie uit de mijn door ventilatie

- Maximale radonemissie uit de mijn tengevolge van natuurlijke productie bedragen $1.3 \cdot 10^{10}$ (zout) en $4.1 \cdot 10^{10}$ Bq jaar⁻¹ (klei) bij *continue ventilatie*. Indien de ventilatie langere tijd onderbroken is geweest kan een eenmalige uitstoot van $2.1 \cdot 10^8$ (zout) en $6.3 \cdot 10^8$ Bq (klei) plaatsvinden bij *herstarten* van de *ventilatie*.
- Bij een geschikte configuratie van de ventilatie-uitlaat zullen de doses door deze emissies niet hoger worden dan 0.4 µSv per jaar. Doses groter dan 0.4 µSv jaar⁻¹ zouden bij een vergunningsaanvraag kunnen leiden tot de eis om de emissie te verkleinen.

Radon als indicator voor containerfalen

- Na falen van de container kan ²²²Rn de galerij bereiken indien het voldoende snel door de afsluiting van de opbergholte kan migreren. In deze studie is vooral gekeken naar de maximale concentraties. Daartoe is er vanuit gegaan dat het radon snel door de afsluiting migreert. Wanneer de berekeningsresultaten zeer hoge concentraties opleveren, kan dit een aanleiding zijn voor diepgaander onderzoek naar radontransport door een afsluiting.
- Het falen van één container KSA is niet waar te nemen bij opberging in klei vanwege de relatief geringe extra radonproductie ten opzichte van de natuurlijke productie. Bij opberging in zout zou detectie van lekken mogelijk zijn indien de radonconcentratie in het zout voldoende laag is.
- De radonproductie uit één container met MIF is maximaal ongeveer een factor 120 (zout) en 40 (klei) hoger dan de maximaal geschatte natuurlijke productie en radon kan hier waarschijnlijk goed als indicator voor optredende

lekken gebruikt worden.

4.1.2 Isolatiefase

- In geval van een nagevulde mijn is extra radonexhalatie aan het maaiveld tengevolge van diffusief transport van radon vanuit de mijn naar het oppervlak orden van grootten kleiner dan de natuurlijke exhalatie en risico's hierdoor veroorzaakt kunnen gevoelig verwaarloosd worden.
- Het zoutgesteente is droog, zodat er geen sprake kan zijn van het "geo-bubble" transport. Het transport kan dan alleen nog door diffusie plaatsvinden. Daar bij het ontwerp ervoor gezorgd wordt dat de "zoutmantel" tussen mijn en afdekpakket ten minste 200 m dik is (vanwege eisen aan de structurele integriteit) mogen we veronderstellen dat al het radon vervalft tijdens diffusief transport richting afdekpakket.
- In klei is sprake van een tenminste 50 m dikke kleimantel, waardoor diffusief transport zo langzaam verloopt dat tijdens transport alle radon vervalft. Echter, de klei is verzadigd met water (in tegenstelling tot zout), zodat het "geo-bubble" transport niet op voorhand uitgesloten kan worden. Het is niet waarschijnlijk, maar desondanks niet ondenkbaar, dat een langzaam transportproces door geo-bubbles onopgemerkt is gebleven bij in-situ experimenten.
- Uit de hoeveelheid radium opgeborgen in de mijn kan de ^{222}Rn productiesnelheid berekend worden. Uit de gepresenteerde berekeningen blijkt dat de transporttijd van deze hoeveelheid radon door de aardlagen tenminste 39 dagen moet bedragen om te voorkomen dat de radonconcentratie in woningen boven de opbergmijn ontoelaatbaar zou stijgen. Het "geo-bubble" model kan leiden tot een transportduur veel sneller dan 39 dagen. Het gastgesteente moet daarom het radongas tenminste 39 dagen vasthouden. In zoutgesteente gebeurt dit zeker, in klei is dit waarschijnlijk het geval.

4.2 Aanbevelingen

- De belangrijkste onzekerheid in de schatting van de radonconcentratie in de mijn in zoutgesteente wordt gevormd door de onbekende hoeveelheid radium in steenzout en de radonemanatiecoëfficiënt van steenzout. Meting van deze beide parameters aan enkele representatieve monsters wordt aanbevolen.
- Meer zekerheid omtrent de door de rekenmodellen voorspelde, door natuurlijke productie veroorzaakte, radonconcentraties in de opbergfaciliteit is ook eenvoudig te verkrijgen via enkele radonmetingen in de Assemijn en de experimentele faciliteit in Mol.
- Radon dat lekt vanuit de MIF containers kan tot een belangrijk toegevoegd risico leiden. Er bestaat enige onzekerheid omtrent de samenstelling van het

MIF zoals gebruikt in de inventariserende studie. Hiertoe bevelen wij aan de herkomst van het in het MIF aanwezige radium te achterhalen en na te gaan of de gehanteerde inventaris ook representatief is voor toekomstige aanlevering van dit type afval.

- De containers waarin het MIF opgeslagen zit bestaan uit een metalen drum met een betonnen binnenmantel; aangezien beton slechts een geringe barrière voor radon vormt wordt nader onderzoek naar de lektheid van deze containers aanbevolen. Dit zou op eenvoudige wijze kunnen door in de faciliteiten waar deze containers momenteel zijn opgeslagen enkele radonconcentratiemetingen uit te voeren.
- Aangezien transport van radon via opstijging van belletjes geogas mogelijk tot significante verhogingen van de radonexhalatie aan het maaiveld leidt wordt nader onderzoek aanbevolen naar het voorkomen van een dergelijk transportmechanisme in het beoogde type klei als gastgesteente voor de ondergrondse opbergfaciliteit.

5. REFERENTIES

- [1] *Achtergrondstraling op de voorgrond*. Eindrapport van het onderzoeksprogramma "Reguleerbare vormen van natuurlijke achtergrondstraling" (RENA), Novem, 1992.
- [2] Hirst, W., Harrison, G.E. *The diffusion of radon in gas mixtures*. Proc. Roy. Soc. London (A), 169, 573-586, 1939.
- [3] Messchendorp, J.G. *Properties of porous media: measurements on, and modelling of permeability and tortuosity*. KVI intern rapport R76, 1994.
- [4] Nielson, K.K., Rogers, V.C., Gee, G.W. *Diffusion of radon through soils: a pore distribution model*. Soil Science Society of America Journal, 48, 482-487, 1984.
- [5] P. Cosenza *Perméabilité et processus de transfert de masse dans le sel gemme*. EUR 17636, 1997.
- [6] Uffink, G.J.M. *De bepaling van de doorlatendheid aan de hand van de granulaire samenstelling van grondmonsters*. RID mededeling 83-8, Rijksinstituut voor drinkwatervoorziening, 1983.
- [7] Carman, P.C. *Fluid flow through granular beds*. Trans. Inst. Chem. Engrs., 15, 150-166, 1937.
- [8] L.H. Gevantman e.a. *Physical Properties Data for Rock Salt*. US department of commerce, January 1981.
- [9] Schery, S.D., Gaeddert, D.H., Wilkening, M.H. *Transport of radon from fractured rock*. J. Geophys. Res., 87, 2969-2976, 1982.
- [10] Rogers, V.C., Nielson, K.K. *Multiphase radon generation and transport in porous materials*. Health Physics, 60, 807-815, 1991.
- [11] Søgaaard-Hansen, J., Damkjær, A. *Determining ²²²Rn diffusion lengths in soils and sediments*. Health Physics, 53, 455-459, 1987.
- [12] Bannink, D.W., Keen, A., Köster, H.W., Pennnders, R.M.J., de Winkel, J.H. *De natuurlijke radioactiviteit van Nederlandse gronden*. Reeks stralenbescherming, 13, Ministerie van Volkshuisvesting, Ruimtelijke Ordening en Milieu, 1986.
- [13] Koorevaar, P., Menelik, G., Dirksen, C. *Elements of soil physics*. Developments in soil science, 13, 1983.
- [14] Nazaroff, W.W., Moed, B.A., Sextro, R.G. *Soil as a source of indoor radon: Generation, migration, and entry*. In: Radon and its decay products in indoor air, Eds. Nazaroff, W.W., Nero, A.V. 57-113, Wiley, New York, 1988.
- [15] J.J. Heijdra e.a. *Concept ontwerp terughaalbare berging in steenzout*. ECN-C-96-087, 1997.
- [16] *Locatie-onafhankelijke studie inzake de aanleg, bedrijfsvoering en afsluiting van mogelijke faciliteiten voor de definitieve opberging van radioactief afval in steenzoutformaties in Nederland*. Van Hattum en Blankevoort, Koninklijke Volker Stevin, april 1986.

- [17] Evans, R.D. *The atomic nucleus*. McGraw-Hill, New York, 1955.
- [18] J. Grupa *Berekening van doses ten gevolge van radon lozingen : specificatie van de uitgangspunten nodig voor de berekening met NUDOS*. ECN-I-97-032, Petten, 1997.
- [19] Etiope, G., Lombardi, S. *Soil gas ^{222}Rn in sedimentary basins in central Italy: its implications in radiation protection zoning*. Rad. Prot. Dos., 56, 231-233, 1994.
- [20] Etiope G. *Persoonlijke mededeling*, 1993.
- [21] J. Hamstra, L.G.L. Janssen *Further design work on a repository in a salt dome*. EUR-9566-EN, 1985.
- [22] B. Haijink e.a. *Projects on the effect of gas in underground storage facilities for radioactive waste (Pegasus project). Proceedings of a progress meeting held in Mol, Belgium. 28 and 29 May 1997*. EUR 18167, 1998.
- [23] Hiemstra, Y., Stoop, P., Lembrechts, L. *The second Dutch national survey on radon in dwellings: set-up of the project*. Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, rap. nr. 610058005, 1997.
- [24] *Landelijk onderzoek naar radon in woningen*, Brochure, Rijksinstituut voor Volksgezondheid en Milieu, 1997.
- [25] *Richtlijn 96/29/Euratom van de Raad van 13 mei 1996 tot vaststelling van de basishnormen voor de bescherming van de gezondheid der bevolking en der werkers tegen de aan ioniserende straling verbonden gevaren*. Wetgeving Publikatieblad van de Europese Gemeenschappen; L159.
- [26] *Wijziging van het Besluit stralenbescherming Kernenergiewet*. Staatsblad 44, 1996.
- [27] *Globale toelichting op de wijziging van het Besluit stralenbescherming Kernenergiewet, zoals gepubliceerd in het Staatsblad 44, 1996*. Ministerie van VROM, directie Stoffen, Veiligheid en Straling; Ministerie van SZW, directie Arbeidsomstandigheden; Ministerie van VWS, directie Preventie, Algemene gezondheidszorg en Opleidingen. 13 februari 1996.
- [28] *Protection against radon-222 at home and at work*. ICRP Publication 65, Ann. ICRP 23, 1993.

Appendix A. SPECIFICATIE VAN HET RADONPRODUCERENDE AFVAL

De hoeveelheden van ^{222}Rn producerende nucliden in het afval zijn onder andere vastgesteld in de OPLA-studie [1]. Toen was al duidelijk dat deze hoeveelheid afhangt van de strategie die de Nederlandse overheid volgt betreffende het gebruik van kerncentrales en het beleid betreffende het opbergen van “civiel” radioactief afval, m.a.w. het radioactief afval dat niet afkomstig is van kernreactoren (ziekenhuizen, industrie en onderzoek). De drie strategieën zijn:

- OPLA strategie-A: Het afval van bedrijven en ontmantelen van de KCD en KCB. Het “civiel” afval ingezameld gedurende 70 jaar.
- OPLA strategie-B: Het afval van bedrijven en ontmantelen van de KCB en KCD + 3 GWe additioneel kernenergievermogen. Het “civiel” afval ingezameld gedurende 105 jaar.
- OPLA strategie-C: Hetzelfde kernenergievermogen als in strategie B, maar het KSA wordt niet ineens opgeborgen (na afloop van tijdelijke opslag bij de COVRA), maar geleidelijk aan. (Dus minder tussenopslag). Het “civiel” afval ingezameld gedurende 55 jaar.

In onderstaande tabel zijn schattingen van de hoeveelheden afval en de activiteit van de nucliden ^{226}Ra , ^{230}Th en ^{234}U gegeven voor deze strategieën.

	OPLA strategie-A			
	KSA	HAVA	LAVA/ MAVA	MIF (70 jaar)*
hoeveelheid (m ³)	53	513	12733	6987
²²⁶ Ra (Bq)	1.58E6	1.43E4	1.51E3	2.42E12
²³⁰ Th (Bq)	9.18E8	7.47E6	1.01E6	0
²³⁴ U (Bq)	2.8E10	2.5E10	1.71E10	0
	OPLA strategie-B			
	KSA	HAVA	LAVA/ MAVA	MIF (105 jaar)*
hoeveelheid (m ³)	357	3550	88879	10481
²²⁶ Ra (Bq)	1.07E7	8.67E4	1.05E4	3.64E12
²³⁰ Th (Bq)	6.24E9	4.56E7	7.07E6	0
²³⁴ U (Bq)	1.91E11	1.72E11	1.2E11	0
	OPLA strategie-C			
	KSA	HAVA	LAVA/ MAVA	MIF (55 jaar)*
hoeveelheid (m ³)	358	3562	88879	5491
²²⁶ Ra (Bq)	1.08E7	9.2E4	1.05E4	1.9E12
²³⁰ Th (Bq)	6.27E9	4.82E7	7.07E6	0
²³⁴ U (Bq)	1.91E11	1.73E11	1.2E11	0

*MIF (Afval van ‘‘Medizin, Industrie und Forschung’’)

De hoeveelheden afval in de PROSA studie zijn vrijwel gelijk, echter, een deel van het HAVA (218 m³ voor strategie A respectievelijk en 1485 m³ voor strategie B en C) is in PROSA ingedeeld in de klasse MAVa.

Het is duidelijk dat, wanneer MIF-afval opgeborgen wordt samen met het andere afval, dit MIF afval potentieel de grootste bron van ²²²Rn is. In tegenstelling tot de tijd waarin de OPLA-fase-1-studie en de PROSA-studie werden uitgevoerd, is momenteel niet duidelijk of MIF ook in een opberging in de diepe ondergrond opgeborgen wordt (in het METRO-I ontwerp zijn LAVA/MAVA en MIF niet beschouwd).

In de OPLA-eindrapportage, deelrapport 11 [1], is aangegeven dat de data over het MIF overgenomen is uit NAGRA rapport NGB-85-02 uit 1985 [2]. Dit

rapport is niet voorradig in de ECN bibliotheek, wel de opvolger uit 1994 [3]. In de volgende tabel worden in dit rapport (NTB-93-21) gegeven hoeveelheden MIF door 70 jaar inzamelen en het MIF voor OPLA strategie-A vergeleken.

MIF ingezameld in 70 jaar		
	OPLA strategie-A (NAGRA NGB-85-02)	NAGRA NTB-93-21
volume (m ³)	6987	8700
²²⁶ Ra (Bq)	2.42E12	2.4E12
²³⁰ Th (Bq)	0	1.5E4
²³⁴ U (Bq)	0	1.7E9

De hoeveelheid ²²⁶Ra in het MIF afval is dus vrijwel ongewijzigd gebleven. Door de automatisering van het NAGRA afval-bestand worden nu ook relatief kleine hoeveelheden meegenomen, die in de oudere studies verwaarloosd werden (het ²³⁰Th en ²³⁴U in het MIF).

In OPLA eindrapportage deelrapport 11 [1] zijn alle afvalsoorten gespecificeerd. Onderstaande tabel geeft een overzicht hiervan, waarbij het aantal vaten voor OPLA strategie A gespecificeerd is.

Code	aantal	Bq/vat	²²⁶ Ra Bq m ³ /vat	Vol (m ³)	omschrijving
W 11-1	300	5250	1.6E+06	0.175	52.5 COGEMA met KSA
W 14-1	20	656	1.3E+04	0.175	3.5 COGEMA met glasresten
W 12-3	200	1.92	384	1.46	292 capscladding
		Totaal:	1.6E+06	Totaal:	348
W 13-5	40	0.00355	0.142	0.21	8.4 HAVA-2200 droesem
W 13-8	1000	0.784	784	0.21	210 HAVA-220 droesem
		Totaal:	784.142	Totaal:	218.4
W 42-7	2080	0.0803	167.024		LAVA 665
W 42-10	400	3.36	1344	1.18	472 MAVA-1200
K 52-1	14500	9.6E-11	1.4E-06		bedrijfsafval NPP
K 52-2	1100	1.5E-08	0.000017		bedrijfsafval NPP
K 52-3	1500	1.4E-10	2.2E-07		bedrijfsafval NPP
K 52-4	2000	4.9E-11	9.8E-08		bedrijfsafval NPP
K 52-5	160	3.2E-09	5.2E-07		bedrijfsafval NPP
K 52-6	855	0	0		bedrijfsafval NPP
K 52-7	193	0	0		bedrijfsafval NPP
K 42-*	ca 1300	0	0		ontmantelingsafval
		Totaal:	1511.024	Totaal:	12733
L 52-1	14000	0	0	0.2	2800 MIF
L 52-3	5600	0	0	0.2	1120 MIF
L 52-4	3150	0	0	0.2	630 MIF
L 52-5	1050	2.2E+09	2.3E+12	0.2	210 MIF radiumhoudend
L 52-6	7700	0	0	0.2	1540 MIF
L 52-7	700	2.2E+08	1.6E+11	0.2	140 MIF diversen inclusief radium
		Totaal:	2.4E+12	Totaal:	6440

Uit het overzicht blijkt dat de potentiële ²²²Rn bronnen zijn:

W 11-1 300 COGEMA containers met KSA
W 42-10 400 vaten met “technisch alfa-houdend” afval bij opwerken
L 52-5 1050 vaten MIF radiumhoudend
L 52-7 700 vaten MIF diversen inclusief radium

*MIF (Afval van “Medizin, Industrie und Forschung”)

Referenties

- [1] R.J. Heijboer e.a. *Nuclide-inventaris, warmteproductie en gammastraling van kernsplijtingsafval*. Eindrapportage Deelrapport 11, 1988.
- [2] *Radioaktive Abfälle: Eigenschaften und Zuteilung auf die Endlager-Typen*. NAGRA Projektbericht NGB-85-02, 1985.
- [3] J.C. Alder, D.F. McGinnes *Model radioactive waste inventory for Swiss waste disposal projects*. NAGRA-NTG-93-21, Baden, 1994.

Appendix B. BESCHRIJVING VAN DE OPBERGFACILITEITEN

Algemene beschrijving mijninfrastructuur

Vanuit de bovengrondse installaties, centraal boven de mijn, lopen twee schachten naar beneden. Op ongeveer 50 m boven het niveau waar het afval wordt opgeslagen kan een verkenningsmijn aangelegd worden. Vanuit dit niveau kan dan het lager gelegen gesteente, waarin het afval zal worden opgeslagen, nader bestudeerd worden en wordt een optimale gangeninfrastructuur bepaald.

Er worden één of twee niveaus aangelegd voor afvalopslag, afhankelijk van de benodigde opslagcapaciteit. Elk niveau bestaat uit twee vleugels (*drifts*), aan weerszijden van de schachten één. In de directe omgeving van de schachten (tot ca. 120 m) wordt geen afval opgeslagen: dit is de veiligheidszone.

Iedere vleugel bestaat uit twee hoofdgalerijen, waarop een aantal dwarsverbindingen worden aangelegd waarin faciliteiten voor opslag van het afval worden aangelegd. Op deze wijze kan overal een luchtcirculatie in stand gehouden worden, zodat iedere opslagruimte van schone lucht voorzien kan worden, en bovendien eventuele besmettingen in de lucht afgevoerd kan worden via een route die geen opslag- of werkruimtes doorkruist.

B.1 Opberging in zoutgesteente

In het kader van de OPLA studie fase 1 zijn door Van Hattum en Blankevoort ontwerpen gemaakt van opbergmijnen voor de drie strategieën [1]. Deze ontwerpen zijn de diepgaandste beschrijvingen die ons nu ter beschikking staan. Latere ontwerpen (PROSA [2] en METRO-I [3]) zijn variaties op deze oorspronkelijke ontwerpen. De rapportage van Hattum en Blankevoort wordt daarom gebruikt als uitgangspunt voor de beschrijving van de ondergrondse infrastructuur.

Infrastructuur voor OPLA strategie A

Er worden twee schachten aangelegd. Voor opberging in een zoutkoepel is de diepte tussen 600 m diepte en 1200 m diepte. Op deze diepte worden twee vleugels aangelegd: één voor LAVA en MAVA en de tweede voor verglaasd KSA en HAVA.

Voor het LAVA en MAVA worden grote ‘kamers’ aangelegd met elk een volume van 40000 m³ (netto gebruik: 27000 m³). Voor het hoogactieve afval worden in elke dwarsgalerij vier verticale gaten geboord waarin de KSA canisters respectievelijk de HAVA canisters (met claddings en caps) opgestapeld worden, de KSA canisters van elkaar gescheiden door een zoutprop. In één

galerij worden slechts drie gaten geboord; op de vierde positie wordt een caverne gemaakt waarin het HAVA (met o.a. de filterresiduen) gestort wordt.

Infrastructuur PROSA

De plaatjes in het PROSA rapport zijn overgenomen uit de VEOS rapporten. Echter, de indeling van de mijn is iets gewijzigd. Het HAVA dat in de HAVA-caverne opgeslagen werd, wordt samen met het LAVA en MAVA in de kamers opgeslagen, en de dammen in de LAVA/MAVA sectie zijn verplaatst. In figuur 6.1 in het PROSA rapport bevinden deze dammen zich nog op de VEOS-posities.

B.1.1 Het METRO-I opbergconcept voor KSA

In het METRO project worden de uitvoering en de gevolgen van terughaaibare opberging van radioactief afval in kaart gebracht. Bij het implementeren van terughaaibaarheid in het mijnmodel is een zorgvuldige afweging nodig, waarbij de aanleg van extra voorziening of aanpassingen in het ontwerp die het “gemak” waarmee het afval teruggehaald kan worden bepalen afgewogen moet worden tegen de consequenties (financieel en veiligheid) van deze voorzieningen en ontwerpaanpassingen.

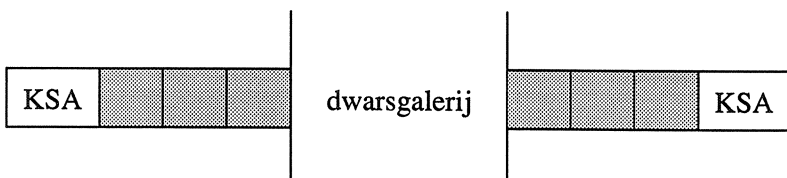
In METRO-I is gekozen om elke COGEMA container met KSA in een apart horizontaal boorgat op te slaan. Dit is een compromis tussen veiligheid en kosten en de inspanning die nodig is om het afval terug te halen.

In tabel 3.1 van het METRO-I eindrapport is de geometrie van de mijn beschreven.

Afstand tussen de galerijen	40 m
Aantal galerijen	8
Afstand tussen de boorgaten in de galerij	10 m
Aantal containers per galerij:	40
Diepte van de boorgaten:	4.3 m

De afmetingen van de COGEMA canisters met verglaasd KSA zijn 1.3 m lengte bij een diameter van 0.43 m. De dikte van de zoutplug, waarmee het boorgat afgedicht wordt na het plaatsen van de container, is dus 3 m.

De dwarsgalerij met afgedichte boorgaten zou er als volgt uitzien:



De grijze gedeelten stellen de zoutplug voor, die aangebracht is om werkers in

de dwarsgalerij af te schermen van straling van het KSA, en als barrière om het afval te isoleren.

In elk van de 8 dwarsgalerijen worden 40 boorgaten gemaakt. In elk boorgat wordt een KSA container geplaatst, en het boorgat wordt afgesloten. De galerijen blijven gedurende een interim periode open. Daarna worden de pluggen (BD) en dammen (BFD) geplaatst.

B.1.2 Het uitgebreide METRO-I mijnmodel

Het is duidelijk dat het mijnmodel in METRO-I alleen de opslag van verglaasd KSA beschrijft. Hoe zit het met het andere afval? Standpunt van CORA is dat alleen voor hoogactief afval extra voorzieningen getroffen dienen te worden in verband met terughaalbaarheid. Het middelactief afval en laagactief afval kan dus in principe op dezelfde wijze opgeborgen worden als in het PROSA en VEOS mijnmodel.

Naast de 320 COGEMA vaten met verglaasd KSA worden er (in VEOS/PROSA afvalstrategie A) 200 vaten verwacht met caps en claddings van de splijstofelementen, die in beton gegoten worden en verpakt worden in containers van diameter 1.25 m en lengte 1.65m. Er zijn ad hoc twee opties bedacht:

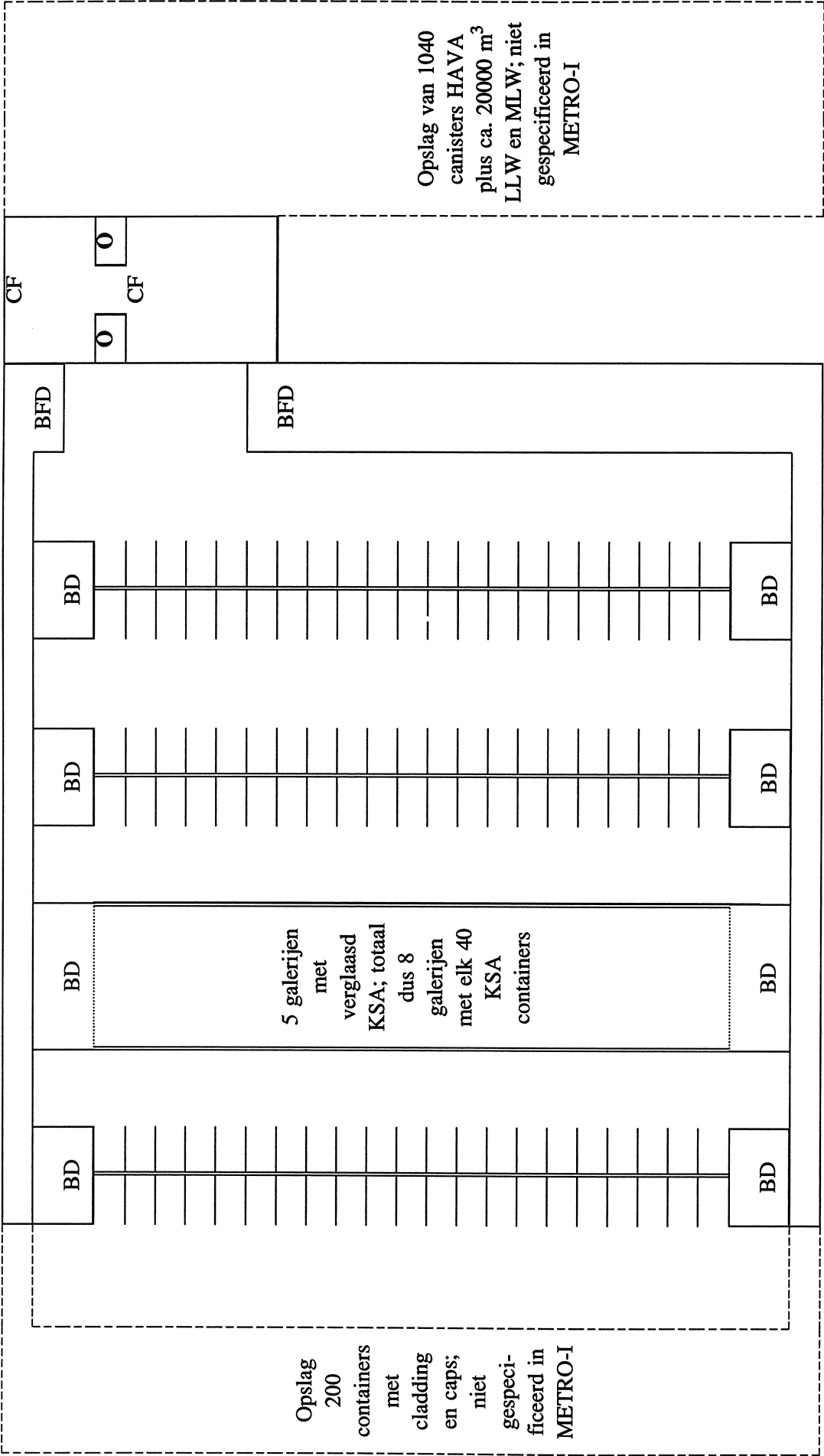
- 1 Naast de 8 galerijen voor verglaasd KSA worden nog 5 galerijen voor de 200 COGEMA containers met caps&claddings aangelegd.
- 2 De containers kunnen mogelijk geplaatst worden in de tussenruimte van 10 m tussen de KSA-containers. Immers, de warmteproductie van de caps & claddings is 10% van de warmteproductie van de KSA containers. In dat geval kan volstaan worden met 8 galerijen.

Echter, omdat deze containers een andere diameter hebben dan de KSA container moet daarvoor een speciaal boor ontwikkeld worden.

Daarnaast zijn er nog 1040 containers à 220 liter met filterresiduen ontstaan bij de opwerking en de scheiding van U en Pu. De warmteafgifte van 1000 van deze vaten is 0.15% van een KSA container, van de resterende 40 is de warmteproductie verwaarloosbaar. Volgens PROSA is dit HAVA afval, dus moeten er voorzieningen zijn om dit terug te halen.

Het resterende LAVA en MAVA (20000 m³) wordt in het PROSA/VEOS mijnconcept samen met de 1000 canisters met HAVA filterresiduen opgeslagen in twee kamers van elk 40000 m³ (netto bruikbaar: 27000 m³). Als er een methodiek gevonden en beschreven wordt om dit HAVA terug te halen uit de kamers, kan deze opslagmethodiek gehandhaafd blijven.

De opslag van het radiumhoudende KSA is in de METRO-I rapportage [3] goed beschreven. Voor het resterende radiumhoudende afval (MIF) wordt verondersteld dat dit in een mijn-vleugel wordt opgeslagen zoals in het OPLA strategie A ontwerp [1]. Een schematische schets van dit uitgebreide METRO-I mijnontwerp is op de volgende bladzijde gegeven.



B.2 Opberging in klei

Het ontwerp voor terughaalbare opberging in impermeabele kleilagen wordt ontwikkeld in het TRAM project. Dit project zal in de loop van 1998 afgerond worden. Er is op dit moment nog zeer weinig informatie over dit ontwerp.

B.2.1 Het Belgische opbergconcept

Het SCK·CEN in Mol (België) werkt sinds 1979 aan het ontwerpen en realiseren van een opberging in een zeer weinig permeabele kleilaag, de Boomse klei. Deze kleiformatie komt ook in Nederland voor. In het huidige ontwerp worden dwars op de galerijen, horizontaal stalen pijpen in de klei geplaatst. In het gemodificeerde SAFIR ontwerp (1993) zijn deze pijpen 200 m lang en hebben een diameter van 2 m voor HAVA en 3.5 m voor MAV A (zie bijvoorbeeld [4]). De containers worden in deze pijpen geplaatst en de open ruimte wordt opgevuld met bentoniet. Vervolgens wordt de toegang tot de pijpen afgesloten met een stalen deksel. In 1997 is dit ontwerp om diverse praktische redenen gewijzigd. Met name is de lengte van deze pijpen verkort tot enkele tientallen meters, omdat anders problemen bij de plaatsing van het afval kunnen optreden. Het is onduidelijk waar het LAVA in België opgeborgen zal worden, en of het eventueel in een kleiformatie opgeborgen zou worden.

Ook in het Belgische ontwerp is er een ondergrondse galerijenstructuur en twee schachten om deze te bereiken. Echter, voorzien wordt dat het aantal schachten uitgebreid moet worden, vanwege problemen in de logistiek van de ventilatie.

B.2.2 Het TRAM opbergconcept

In de eerste ruwe versies van het TRAM ontwerp is er sprake van korte dwarsboringen op de galerijen waarin één container of een klein aantal containers geplaatst worden. Het is niet duidelijk of de containers rechtstreeks in de klei geplaatst worden of in een “lining” zoals in het Belgische concept. Over de opberging van MAV A en LAVA is nog niet nagedacht.

B.3 Schatting van het ventilatiedebiet

Om de radonconcentratie in de galerijen te berekenen, is een schatting van het ventilatiedebiet door de betreffende galerij nodig.

Alleen voor het mijnontwerp voor de OPLA strategie-B is een en ander gespecificeerd in het rapport van Hattum en Blankevoort. Vanwege de grotere hoeveelheid op te bergen afval, vergeleken met strategie A, worden in het geval van strategie B, twee niveaus in de mijn aangelegd. De twee vleugels op het laagste niveau worden gebruikt voor KSA en HAVA; twee vleugels op een 50 m hoger gelegen niveau voor LAVA en MAVA.

Het benodigde ventilatie-debiet wordt volgens Van Hattum en Blankevoort bepaald door het ondergrondse machine-park (aangedreven met diesel)¹. Hierbij wordt gegeven dat per kWatt dieselaangedreven vermogen een ventilatiedebiet van 5.85 m³/minuut nodig is. Het vermogen van het machinepark wordt gedomineerd door vier laadschoppen (à 136 kW) en vier dumptrucks (à 136 kW), nodig voor het zouttransport. Inclusief andere machinerie wordt het dieselveermogen geschat op 1475 Kw. Het benodigde ventilatiedebiet is dan 8630 m³/minuut.

De verdeling van het ventilatiedebiet over de verschillende verdiepingen en de velden binnen de verdiepingen is:

- 60% van het ventilatie-debiet gaat naar de LAVA/MAVA verdieping, waar elke vleugel een gelijk deel krijgt (dus elke vleugel 30% van het totaal).
- 40% van het ventilatie-debiet gaat naar de lager gelegen HAVA verdieping. Ook hier krijgt elke vleugel een gelijk deel (dus elke vleugel 20% van het totaal).

Om deze verdeling te realiseren zijn zogenaamde “smoordeuren” nodig op de LAVA/MAVA verdieping. Verder worden er in de mijn diverse “luchtdeuren” voorzien om de ventilatie-luchtstroom te kunnen sturen.

In het uitgebreide METRO-I ontwerp bevinden de KSA-vleugel en de LAVA/MAVA kamers zich op de zelfde verdieping. Omdat de opbergmijn kleiner is, kan misschien volstaan worden met een kleiner machinepark. Het grootste verschil is dat de METRO-I mijn na plaatsen van het afval niet afgesloten wordt (de ontwerpen van Hattum en Blankevoort wel). Tijdens deze fase, waarin de mijn wel open is, maar er niet ondergronds gewerkt wordt, kan waarschijnlijk volstaan worden met een veel kleiner ventilatiedebiet. Een redelijke eis is dat de ventilatie (per vleugel/galerij) op een dusdanig peil blijft dat de lucht van goede kwaliteit blijft.

¹ Bij kolenmijnen zijn de “mijngassen” bepalend voor de benodigde ventilatie. Echter, in het zoutgesteente komen geen mijngassen vrij.

Referenties

- [1] *Locatie-onafhankelijke studie inzake de aanleg, bedrijfsvoering en afsluiting van mogelijke faciliteiten voor de definitieve opberging van radioactief afval in steenzoutformaties in Nederland.* Van Hattum en Blankevoort, Koninklijke Volker Stevin, April 1986.
- [2] J. Prij e.a. *PROSA Probabilistic Safety Assessment; Final Report.* OPLA-1A, Petten 1993.
- [3] J.J. Heijdra e.a. *Concept ontwerp terughaalbare berging in steenzout.* ECN-C--96-087, 1997.
- [4] *Evaluation of elements responsible for the effective engaged dose rates associated with the final storage of radioactive waste : Everest project.* EUR-17122-EN, 1996.

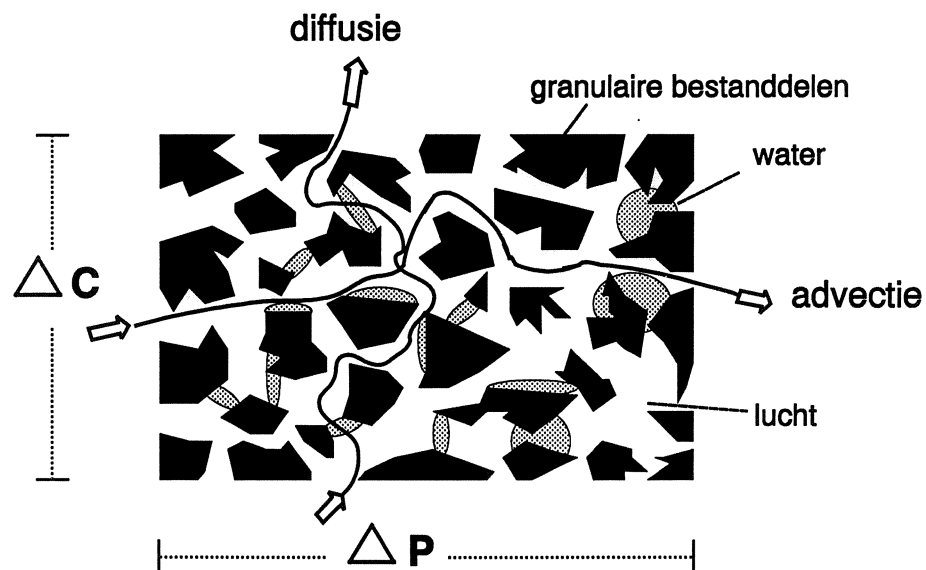
Appendix C. RADON-TRANSPORT IN POREUZE MEDIA

C.1 Mathematische beschrijving

Voor een mathematische beschrijving van radontransport door een poreus medium is kennis en informatie nodig van de:

- 1) structuur van het poreuze medium;
- 2) processen die het transport veroorzaken;
- 3) interacties van radon met het medium en van
- 4) de bronnen van radon.

Een poreus medium is een vaste stof die doorsneden wordt door poriën die in het algemeen onregelmatig gevormd zijn en geen voorkeursoriëntatie bezitten (zie Figuur C1).



Figuur C1: *Schematische weergave poreus medium.*

Dit betekent dat in de meeste gevallen een precieze beschrijving van het medium op porieniveau zeer complex is. Daarom worden vaak structuurbeschrijvende grootheden gedefinieerd die een gemiddelde over een groter volume inhouden. Het porievolume is normaliter gevuld met vloeistof (water, pekeloplossing) en gas (vaak lucht) dit leidt tot een multifase systeem met in principe een massabalans voor iedere fase. In het vervolg zullen we steeds veronderstellen dat we met een lucht-water systeem in de poriën te maken hebben. Parameters die

de structuur en de fasesamenstelling globaal karakteriseren zijn de porositeit ε (volumefractie van het medium dat door poriën wordt ingenomen) en de waterverzadiging m (volumefractie van de poriën dat door water wordt ingenomen). In de bodem wordt radontransport in het algemeen veroorzaakt door processen die concentratieverschillen (diffusie) en/of drukverschillen (advection) vereffenen. In het laatste geval wordt radon “meegevoerd” met een gasstroming (meestal) lucht. De bulk radonactiviteitsfluxen J ($\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$) volgen uit de wetten van Fick en Darcy.

$$\vec{J}_{d,a} = -(1-m)\varepsilon\tau_a D_a \nabla C_a \quad (\text{C1})$$

$$\vec{J}_{d,w} = -m\varepsilon\tau_w D_w \nabla C_w \quad (\text{C2})$$

$$\vec{J}_{a,a} = -C_a \frac{K}{\mu} \nabla P \quad (\text{C3})$$

In deze vergelijkingen heeft het eerste subscript d, a van de fluxen betrekking op diffusie en advection, subscripten a en w op andere posities refereren aan grootheden in de lucht- (air) en waterfase. De grootheid τ is de tortuositeit, een empirische factor die de verlenging van het diffusiepad tengevolge van de kronkeligheid van de poriën in rekening brengt. De diffusiecoëfficiënten ($\text{m}^2 \text{s}^{-1}$) van radon in de lucht- en waterfase worden aangegeven met D_a, D_w . De andere grootheden zijn: K (m^2) de intrinsieke permeabiliteit; μ (Pa s) de dynamische viscositeit van lucht; C_a, C_w (Bq m^{-3}) de radonconcentraties in de lucht- en waterfase en P (Pa) is het drukveld (verstoring ten opzichte van een referentiedruk).

In principe kunnen we radon in een poreus medium in drie fasen aantreffen namelijk, in de luchtfase (aangegeven met subscript a : air), in de waterfase (aangegeven met subscript w : water) en geadsorbeerd aan de vaste fase (aangegeven met subscript s : solid). Adsorptie, desorptie en oplosbaarheid zullen de verdeling tussen deze drie fasen bepalen. De relatieve sterkte van deze processen kan worden gekwantificeerd met zogenaamde transfercoëfficiënten T_{ij} ($\text{Bq m}^{-3} \text{s}^{-1}$) die de transfersnelheid van radonactiviteit per eenheidsvolume van fase i naar fase j weergeven.

Tengevolge van de aanwezigheid van ^{226}Ra in de vaste matrix van het poreuze medium zal radon geproduceerd worden met een bulkproductiesnelheid S ($\text{Bq m}^{-3} \text{s}^{-1}$):

$$S = \eta \rho_b \lambda C^{\text{Ra}} \quad (\text{C4})$$

waarin η de som is van de fractionele emanatiecoëfficiënten in de lucht-, water-, en geadsorbeerde fase ($\eta = \eta_a + \eta_w + \eta_s$); ρ_b is de bulkdichtheid (droge massa) van het poreuze medium (kg m^{-3}), λ is de vervalconstante van radon (s^{-1}) en C^{Ra} de radiumactiviteit in het poreuze medium per eenheid droge massa (Bq kg^{-1}).

In het geval van radioactief afval dat radon produceert zal de hierdoor veroorzaakte bron in de randvoorwaarden van het probleem opgenomen worden; dit blijft hier nog even buiten beschouwing.

De massabalansen voor iedere fase worden nu gegeven door:

$$(1-m)\epsilon \frac{\partial C_a}{\partial t} = \nabla \cdot ((1-m)\epsilon \tau_a D_a \nabla C_a) + \frac{K}{\mu} \nabla P \cdot \nabla C_a - (1-m)\epsilon \lambda C_a + \eta_a \rho_b \lambda C^{Ra} - \sum_{i \neq a} (T_{ai} - T_{ia}); \quad (C5)$$

$$m\epsilon \frac{\partial C_w}{\partial t} = \nabla \cdot (m\epsilon \tau_w D_w \nabla C_w) - m\epsilon \lambda C_w + \eta_w \rho_b \lambda C^{Ra} - \sum_{i \neq w} (T_{wi} - T_{iw}); \quad (C6)$$

$$\rho_b \frac{\partial C_s}{\partial t} = -\rho_b \lambda C_s + \eta_s \rho_b \lambda C^{Ra} - \sum_{i \neq s} (T_{si} - T_{is}). \quad (C7)$$

De termen in het rechterlid van vergelijking C5 beschrijven respectievelijk de tijdsevolutie van de radonactiviteitsconcentratie tengevolge van advectie, verval, productie en uitwisseling met andere fasen. Soortgelijke termen komen voor in vergelijkingen C6 en C7 met het verschil dat in de massabalans voor de waterfase de advection term en voor de geadsorbeerde fase de diffusieve en advection term als te verwaarlozen verondersteld worden. In vergelijking C7 stelt C_s (Bq kg⁻¹) de geadsorbeerde radonactiviteit per eenheid droge massa voor. Vergelijkingen C5 tot en met C7 zijn gekoppeld door de transfercoëfficiënten. In eerste orde worden deze coëfficiënten gegeven door:

$$T_{ij} = \alpha_{ij} \Gamma_i C_i \quad i, j \in \{a, w, s\} \quad (C8)$$

waarin α_{ij} de uitwisselingssnelheden (s⁻¹) tussen de fasen zijn en de combinatie $\Gamma_i C_i$ de totale radonactiviteit per eenheidsvolume in fase i is (Γ_i is $(1-m)\epsilon$, $m\epsilon$ en ρ_b voor respectievelijk i is a , w , s).

Onder bepaalde veronderstellingen kunnen bovenstaande drie vergelijkingen gecombineerd worden tot één vergelijking die de radonactiviteitsconcentratie in de luchtfase beschrijft. Deze veronderstellingen zijn:

- 1) *Adsorptie van radon aan natte oppervlakken is te verwaarlozen.* Dit is waarschijnlijk een goede benadering omdat water voor de meest voorkomende mineralen een veel grotere affiniteit heeft dan radon.
- 2) *Uitwisseling van radon tussen de water- en luchtfase vindt plaats op een tijdschaal die veel kleiner is dan de tijdschaal waarop het transport van radon plaats vindt.* Karakteristieke tijden voor deze uitwisseling zijn 0.1 tot 10 seconden voor waterlagen van 10 tot 100 µm. Tijdschalen van belang voor radontransport zijn van de orde van de halveringstijd van radon (3.8 dagen), met andere woorden, aan deze veronderstelling is in het algemeen voldaan.

- 3) *Uitwisseling van radon tussen de lucht- en de geadsorbeerde fase vindt plaats op een tijdschaal die klein is ten opzichte van die karakteristiek is voor radontransport of de adsorptie van radon aan droge oppervlakken is te verwaarlozen.* Deze veronderstelling is het meest onzeker. Voor zand is radonadsorptie in het algemeen te verwaarlozen maar voor andere bodemsoorten hoeft dit niet het geval te zijn.

De consequentie van de eerste veronderstelling is $T_{ws}=T_{sw}=0$; de andere twee veronderstellingen leiden tot gebalanceerde uitwisseling tussen de betrokken fasen dus $T_{as}=T_{sa}$ ($=0$ in het geval adsorptie te verwaarlozen is) en $T_{aw}=T_{wa}$. Door gebruik te maken van vergelijking C8 kunnen we dan afleiden:

$$C_w = \frac{\alpha_{aw}(1-m)}{\alpha_{wa}} C_a \equiv L C_a \quad (C9)$$

$$C_s = \frac{\alpha_{as}(1-m)\epsilon}{\rho_b \alpha_{sa}} C_a \equiv k_a C_a \quad (C10)$$

hierin zijn L en k_a coëfficiënten waarvan de eerste vaak aangeduid wordt als de Ostwald coëfficiënt en de tweede als de radonadsorptiecoëfficiënt. Met behulp van vergelijking C9 en C10 kunnen we de drie vergelijkingen voor de verschillende fasen combineren tot één enkele vergelijking voor de radonconcentratie in de luchtfase [1]:

$$\beta \frac{\partial C_a}{\partial t} = \nabla \cdot (D \nabla C_a) + \frac{K}{\mu} \nabla P \cdot \nabla C_a - \beta \lambda C_a + S; \quad (C11)$$

met

$$\beta = (1-m+mL)\epsilon + \rho_b k_a; \quad (C12)$$

$$D = ((1-m)\tau_a D_a + m\tau_w D_w L)\epsilon; \quad (C13)$$

$$S = \eta \rho_b \lambda C^{Ra} \quad (C14)$$

waarin β , D en S respectievelijk voorstellen: de partitie-gecorrigeerde porositeit, de bulkdiffusiecoëfficiënt ($m^2 s^{-1}$) en de radonproductiesnelheid per eenheid bulkvolume ($Bq m^{-3} s^{-1}$).

In het geval van een volledig verzadigd poreus medium ($m=1$) is C_a in vergelijking C11 niet gedefinieerd (er is immers geen luchtfase). Echter door C_a te vervangen door C_w/L kan de vergelijking wel voor een volledig verzadigd medium gebruikt worden.

Om een bepaalde situatie volledig vast te leggen heeft men tevens een vergelijking nodig die het drukveld P beschrijft. In de meeste praktische voorkomende gevallen kan de dichtheid van de lucht constant verondersteld

worden zodat het drukveld berekend kan worden via de vergelijking van Laplace: $\nabla^2 P=0$.

Voor situaties in de diepe ondergrond is het nog de vraag of dit het geval is. In principe heersen er daar vrij hoge drukken. Het lijkt echter zeer onwaarschijnlijk dat er grote drukverschillen zullen heersen tussen lucht in de mijngalerij en lucht in de poriestructuur van het gastgesteente nabij de galerij. Dit is alleen mogelijk als de lucht in de poriestructuur van het gastgesteente en de lucht in de mijngang zich in volkomen gescheiden volume compartimenten bevinden. Alleen in dit het geval is er geen luchttransport tussen beide compartimenten en kunnen deze hun afzonderlijke druk behouden. Bij het bestaan van verbindingen zullen drukverschillen genivelleerd worden door het optreden van luchtstromen. Een situatie die hier zou kunnen voorkomen is een constante luchtstroom vanuit het gastgesteente richting mijngalerij die gevoed wordt uit het reservoir van lucht (gas) onder hoge druk die in het ongeschonden gastgesteente aanwezig is.

C.2 Invoerparameters

Om vergelijking C11 te gebruiken voor het voorspellen van radontransport in praktische gevallen moeten er waarden voor de invoerparameters β , D , K , S beschikbaar zijn die representatief voor het gastgesteente zijn. Deze parameters zullen ook in het algemeen nog van het waterverzadiging afhangen. In het de volgende paragrafen zullen we kort op deze afhankelijkheden ingaan.

C.2.1 Partitie-gecorrigeerde porositeit

Uit vergelijking C12 volgt direct de afhankelijkheid van de partitie-gecorrigeerde porositeit als functie van de waterverzadiging m . Voor droge materialen is $m=0$ en dus $\beta=\epsilon+\rho_b k_a$, terwijl voor volledig waterverzadigde materialen $m=1$ en dan is $\beta=\epsilon L+\rho_b k_a$. De radonadsorptiecoëfficiënt is ook nog afhankelijk van m omdat radonadsorptie aan natte oppervlakken in het algemeen te verwaarlozen is. Vaak wordt er het volgende exponentiële verband aangenomen $k_a(m)=k_a(0)\exp(-bm)$. Rogers en Nielsen [1] vinden bijvoorbeeld voor bentoniet $b=12.3$. De Ostwald coëfficiënt L die de partitie tussen radon in de lucht en waterfase beschrijft is temperatuurafhankelijk. In Tabel C1 [2] wordt deze afhankelijkheid gegeven. Voor de mijngalerijen wordt in het concept eindrapport van METRO I geschat dat de temperatuur tussen de 30°C en 45°C zal liggen. Voor de berekeningen zullen we een waarde van de Ostwald coëfficiënt van 0.18 hanteren (waarde bij 35°C in Tabel C1).

Tabel C1 *Ostwald coëfficiënt als functie van de temperatuur.*

T (°C)	L
0	0.5249
5	0.4286
10	0.3565
15	0.3016
20	0.2593
25	0.2263
30	0.2003
35	0.1797

C.2.2 Diffusiecoëfficiënt

De wijze waarop de diffusiecoëfficiënt D afhangt van de waterverzadiging m wordt in principe beschreven door vergelijking C13. Daar echter ook τ_a en τ_w nog afhangen van m omdat de geometrie van het lucht cq. watergevulde porievolume verandert als functie van de waterverzadiging is vergelijking C13 in het algemeen niet praktisch in het gebruik. Vaak wordt voor een bodemsoort de afhankelijkheid van D van de waterverzadiging gemeten. Rogers en Nielsen [1] vinden bijvoorbeeld (gebaseerd op meer dan 1000 bepalingen aan verschillende bodemsoorten) de volgende relatie:

$$D = D(m=0)e^{-6m\epsilon - 6m^{14\epsilon}} \quad (C15)$$

C.2.3 Intrinsieke permeabiliteit

Alhoewel niet expliciet zichtbaar in vergelijking C14 is ook de intrinsieke permeabiliteit afhankelijk van m . Het moge duidelijk zijn dat als $m=0$ dat dan $K=0$. Voor zand [3] en ook voor andere bodemsoorten [4] geldt dat de permeabiliteit ongeveer lineair afneemt met het watergehalte tot $m=0.7$. De volgende correlatiefunctie beschrijft bijvoorbeeld de m -afhankelijkheid van K voor zand met $\epsilon=0.34$ en een korreldiameter tussen de 250 en 500 μm [3].

$$K(m) = K(m=0)e^{\frac{(1.4m - m^3)}{(m-1)}} \quad (C16)$$

C.2.4 Radonproductiesnelheid

De radonproductiesnelheid is afhankelijk van m via de emanatiecoëfficiënt. Er zijn tenminste twee mechanismen waarop radon aan de matrix van het poreuze medium kan ontsnappen: 1) door de via recoil verkregen impuls kan het radonatom een zekere afstand door de vaste matrix afleggen en zo eventueel in de porieruimte terecht komen. Deze afstand is ongeveer 65 μm in lucht en ongeveer 35 nm in klei [5]; 2) radonatomen die niet via recoil ontsnappen kunnen via diffusie door de matrix de porieruimte bereiken. Dit diffusieproces is echter langzaam en alleen radonatomen dicht bij de poriën zullen een kans hebben de porie via deze manier te bereiken voor verval. In de porieruimte aanwezig vocht heeft invloed op het eerste proces. Voor radonatomen die ontsnappen uit de matrix tengevolge van uitstoot door recoil bestaat de kans dat ze niet in het porievolume gestopt worden maar zich door hun snelheid ingraven in de overliggende poriewand en dus geïmmobiliseerd worden. Dit effect wordt gereduceerd door een waterlaagje dat de vaste matrix bedekt. Dit laagje zal de uitgestoten radonatomen stoppen en na overgang naar de luchtfase zijn deze radonatomen beschikbaar voor transport [6]. Voor zand [3] geldt bijvoorbeeld dat tussen $m=0$ en 0.01 de emanatiecoëfficiënt toeneemt met een factor 2 van 0.12 tot 0.25 waarna een plateauwaarde van 0.25 wordt bereikt.

Referenties

- [1] Rogers, V.C., Nielson, K.K. *Multiphase radon generation and transport in porous materials*. Health Physics, 60, 807-815, 1991.
- [2] Anderen, C.E. *Entry of soil gas and radon into houses*. Risø-R-623(EN), Risø National Laboratory, Roskilde Denmark, 1992.
- [3] Van der Graaf, E.R., van der Spoel, W.H., de Meijer, R.J. *Modelling of radon transport in porous media*. Paper presented at the 7th Tohwa University International Symposium "Radon and thoron in the human environment", October 23-25, 1997, Fukuoka, Japan, KVI intern rapport R102, 1997.
- [4] McCarthy, K.P., Brown, K.W. *Soil gas permeability as influenced by soil gas-filled porosity*. Soil Sci. Soc. Am. J., 56, 997-1003, 1992.
- [5] Bossus, D.A.W. *Emanating power and specific surface area*. Rad. Prot. Dos., 7, 73-76, 1983.
- [6] Morawska, L., Phillips, C.R. *Dependence of the radon emanation coefficient on radium distribution and internal structure of the material*. Geochim. Cosmochim. Acta, 57, 1783-1797, 1993.

Appendix D. KORTE BESCHRIJVING RAETRAP

RAETRAP [1] is een numerieke code die de 1-dimensionale radontransportvergelijking (met diffusie en advectie term) voor stationaire situaties oplost voor verschillende randvoorwaarden.

De vergelijking die opgelost wordt heeft de volgende vorm (stationaire 1D analogon van vergelijking C11),

$$D \frac{d^2 C_a}{dx^2} - V \frac{dC_a}{dx} - \beta \lambda C_a + S = 0 \quad (D1)$$

waarin,

$$V = - \frac{K}{\mu} \frac{dP}{dx} \quad (D2)$$

en waarin verder dezelfde notatie gehanteerd wordt als in appendix C.

De algemene oplossing van vergelijking D1 heeft de vorm,

$$C_a(x) = A e^{\alpha_- x} + B e^{\alpha_+ x} + \frac{S}{\lambda} \quad (D3)$$

waarin A en B constanten zijn die door de randvoorwaarden bepaald worden en waarin,

$$\alpha_{\pm} = \frac{V}{2D} \pm \sqrt{\left(\frac{V}{2D}\right)^2 + \frac{\beta \lambda}{D}} \quad (D4)$$

De algemene vorm voor de flux $J(x)$ wordt gegeven door

$$J(x) = [(V - \alpha_+ D) A e^{\alpha_+ x} + (V - \alpha_- D) B e^{\alpha_- x} + \frac{VS}{\beta \lambda}] \quad (D5)$$

In een 1D systeem dat uit verschillende lagen bestaat zijn er oplossingen van bovenstaande vorm voor de concentratie en flux voor ieder laag. De constanten A_i en B_i (waar het subscript i verwijst naar de betreffende laag) worden gevonden door de randvoorwaarden dat de concentratie en flux continu zijn op het grensvlak tussen twee lagen. Voor de randvoorwaarden voor de concentratie en flux aan de bovenkant en onderkant van het gehele systeem van lagen kunnen in RAETRAP de volgende vier keuzen gemaakt worden:

- 1) Het oppervlak is gesloten voor diffusie. In dit geval is de diffusieve flux nul maar kan er wel een advectieve flux zijn die met een luchtstroom radon meevoert.
- 2) Het oppervlak is gesloten voor diffusie en advectie. In dit geval spelen drukverschillen dus geen rol.
- 3) Het oppervlak is open. De radonconcentratie aan het oppervlak wordt gelijk gesteld aan een te kiezen concentratie boven het oppervlak.
- 4) De grenslaag is een half-oneindig medium. In dit geval wordt één van exponentiële termen in de uitdrukking voor de radonconcentratie oneindig en moet dus de betreffende constante (A of B) gelijk aan nul gesteld worden.

De constanten A_i en B_i worden berekend door de randvoorwaarden te combineren tot een lineair stelsel van vergelijkingen dat opgelost kan worden met matrixmethoden. In RAETRAP wordt de methode van “lower upper decomposition with back substitution” gebruikt. Met de gevonden waarden voor A_i en B_i kan dan via vergelijking D3 en D5 de radonconcentratie en -flux op iedere positie in het medium worden berekend.

Referenties

- [1] Stapel, C. *Manual for RAETRAP, a 1D code for calculation of diffusion and flow of radon through porous materials*. KVI Technical Document RT-01, 1992.

