

РАДИОЭКОЛОГИЯ

МАТЕМАТИЧЕСКОЕ МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССА ВЫСВОБОЖДЕНИЯ РАДИОАКТИВНОСТИ ИЗ ОБЪЕКТА ИЗОЛЯЦИИ

В.П. Каменев, П.В. Амосов

КНЦ РАН

ул. Ферсмана, 14, Апатиты, Россия, 184209

В.Н. Баринов

Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН

Б. Тульская, 52, Москва, Россия, 113191

М.А. Кожин, И.А. Осипьянц

ОАО «НИПТБ «Онега»

ул. Лебедева, 1, Северодвинск, Россия, 692809

Рогов В.А.

Инженерный факультет

Российский университет дружбы народов

Подольское ш., 8/5, Москва, Россия, 113093

В статье описываются концептуальная и математическая модели процесса высвобождения радиоактивности при захоронении реакторных блоков атомных подводных лодок с отработавшим ядерным топливом в целях подтверждения их длительного и безопасного хранения в соответствии с требованиями действующих нормативных документов.

В целях обеспечения современных требований экологической безопасности в области обращения с отработавшим ядерным топливом (ОЯТ) Горным институтом Кольского научного центра Российской академии наук предложена концепция, основанная на создании и использовании в Северо-Западном регионе подземного хранилища, предназначенного для долговременного (до 100 лет) безопасного хранения проблемных видов топлива, в том числе реакторных отсеков атомных подводных лодок с жидко-металлическим теплоносителем в реакторе.

Они содержат значительное количество долгоживущих радиотоксичных материалов. Размещение таких отсеков в подземных сооружениях позволит обеспечить высокий уровень их защищенности от воздействий природного и техноген-

ного характера. Подобное размещение позволит также обеспечить и защиту окружающей среды, и населения при различных, даже маловероятных, аварийных ситуациях.

По результатам оценки пригодности геологических формаций Кольского полуострова предложена потенциальная площадка размещения обсуждаемого объекта — Дальние Зеленцы, которая расположена в центральной части Мурманского структурного мегаблока Балтийского щита в 130 км от Мурманска.

Скальный массив на площадке сложен в основном плагио-микроклиновыми биотитовыми мигматит-гранитами, в основном средне- и крупнозернистыми, порфировидными однородными, слабогнейсовидными. При этом многократность гранитизации увеличила монолитность и прочность пород. На глубине (от 150 до 400 м в пределах площадки) контактируют с нижезалегающими, несколько более плотными ($\rho = 2780 \text{ кг/м}^3$) гнейсовидными мигматитами.

Минеральный состав гранитов: кварц — 20—25%, плагиоклаз — 15—50%, микроклин — 10—50%, биотит — 3—10%, роговая обманка — до 5%; вторичные: эпидот, хлорит, кальцит, лейкоксен; акцессорные: циркон, ортит, апатит, сфен, титаномагнетит.

Характеристика систем трещин в пределах площадки по геофизическим данным приведена в табл. 1.

Таблица 1

Характеристика систем трещин на площадке

Система	Простирание, град.	Среднее расстояние между трещинами, м	Длина трещин, м
I	338—360	150—700	400
II	75—110	одиночные	200—700
III	30—50	150—700	150—900
IV	10—25	одиночные	300—1 500
V	110—140	одиночные	300—1 500

Коэффициент удельной трещиноватости — 1—4 м/м². С глубиной количество трещин уменьшается.

Прочность, замеренная в образцах пород, характеризуется следующими данными:

- граниты на сжатие — 148 МПа, на растяжение — 83 МПа;
- мигматиты на сжатие — 156 МПа, на растяжение — 90 МПа;
- коэффициент фильтрации — до 150 м — $n \times 10^{-3}$ — $n \times 10^{-2}$ м/сут.;
- на глубине 150—160 м — $n \times 10^{-4}$ м/сут.;
- коэффициент водопоглощения — 0,25—0,1%.

Топография площадки характеризуется как сильно расчлененное прибрежное плато с абсолютными отметками поверхности 80—120 м, с линейно вытянутыми понижениями с абсолютными отметками 40—50 м.

Климат умеренно континентальный. Среднемесячная температура зимнего периода минус 3—7 °С, летнего — плюс 7—10 °С. Первые заморозки начинаются в сентябре, снег выпадает в конце сентября — начале октября. Устойчивый

снежный покров держится с ноября по май — июнь. Промерзание грунта не более 1,3 м. Сумма осадков в год варьирует от 300 до 400 мм.

Глубина установившегося уровня подземных вод, вскрытых по 9-ти скважинам, составляет 10,31—33,65 м.

Предполагаемая глубина размещения объекта составляет около 100 м. Для размещения блоков и упаковки отходов предлагается использовать отдельные тупиковые камерообразные горизонтальные выработки. Ширина и высота выработки соотносятся примерно как 1 : 1, что обеспечивает максимальную устойчивость подземных инженерных сооружений. Один из вариантов размещения объектов (в плане) представлен на рис. 1.

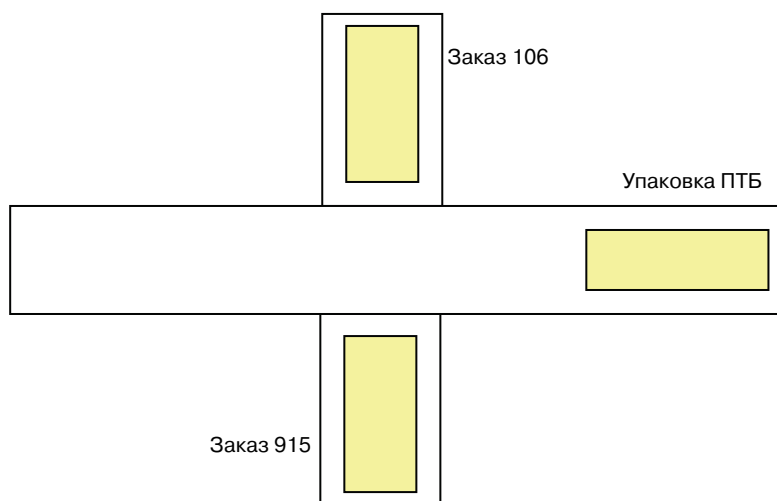


Рис. 1. План размещения блоков и упаковки в тупиковых камерообразных горизонтальных выработках

Заполнителем свободного пространства в выработках может быть, например, либо бетонная смесь, либо смесь бентонита и крошеной породы от горнопроходческих работ.

В рамках данной статьи рассматривается только сценарий нормальной эволюции объекта. В этом случае основным механизмом миграции высвобождаемой радиоактивности в ближнем поле объекта является диффузия по обводненному поровому пространству. Процесс высвобождения в обводненное поровое пространство (восстановление природного гидрогеологического режима происходит в течение несколько столетий) начинаем рассматривать через 1000 лет: предполагаем, что к этому времени произошло разрушение защитных барьеров блоков и упаковки в результате коррозии. Из полного списка продуктов деления основной интерес на указанное время будут представлять исключительно долгоживущие радионуклиды (способ распада — β^-). В качестве примера в таблице 2 приведены уровни активности долгоживущих продуктов деления в тепловыделяющем элементе реакторов с ЖМТ при максимальной глубине выгорания через 20 лет после остановки реактора.

Таблица 2

Радиоактивность изучаемых продуктов деления в тепловыделяющем элементе реакторов с ЖМТ при максимальной глубине выгорания через 20 лет после остановки реактора

Нуклид	Период полураспада, лет	Радиоактивность, Бк	
		заказ 106	заказ 915
⁷⁹ Se	1,10E+06	3,27E+05	2,71E+05
⁹³ Zr	1,53E+06	2,05E+07	1,69E+07
⁹⁹ Tc	2,13E+05	1,56E+08	1,29E+08
¹⁰⁷ Pd	6,50E+06	1,98E+05	1,64E+05
¹²⁶ Sn	1,00E+05	5,30E+06	4,38E+06
¹²⁹ I	1,57E+07	4,13E+05	3,41E+05
¹³⁵ Cs	2,30E+06	1,53E+07	1,26E+07

Программный код PORFLOW предназначен для моделирования течения многофазных потоков, процессов тепло- и массопереноса в пористых и трещиноватых средах с различной степенью насыщения.

Расчеты выполняются в декартовой системе координат, поэтому блоки и упаковка из цилиндров преобразованы в прямоугольные параллелепипеды. Для ускорения расчетов предложено ограничиться плоской задачей: в этом случае активность A будет задаваться на единицу длины источника — $A_L = A/L$, где L — длина блока. В силу очевидной симметрии есть возможность моделировать только половину общей площади сечения блока (см. рис. 2).

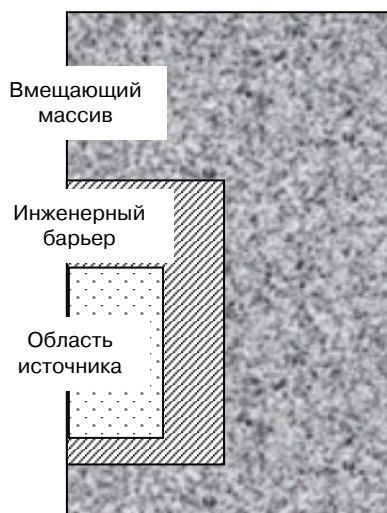


Рис. 2. Схематичное изображение моделируемой области в плоской постановке

Для выполнения численных экспериментов под параметры заказа 915 расчетная область модели размером $14,5 \times 30$ м была покрыта неравномерной сеткой. Размеры указанных выше областей модели приведены на рис. 3.

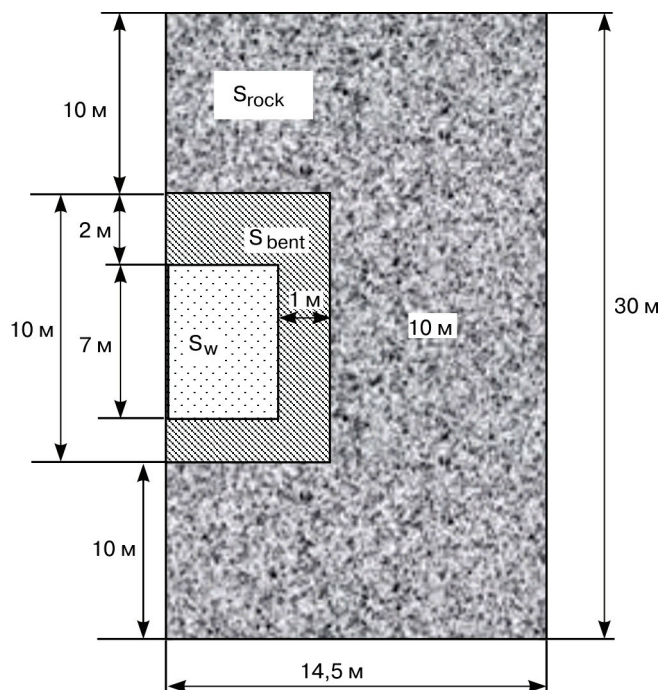


Рис. 3. Схематическое изображение моделируемой области с указанием размеров (заказ 915)

Основное уравнение, описывающее перенос радионуклидов (без цепочек распада) в водонасыщенной пористой среде с учетом диффузионного механизма переноса и физико-химических процессов, влияющих на этот перенос, в соответствии с описанием программного кода PORFLOW, используемого в данном сценарии эволюции, имеет в общем случае вид

$$R_k \frac{\partial C_k}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{pk} \frac{\partial C_k}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(D_{pk} \frac{\partial C_k}{\partial y} \right) - R_k \lambda_k C_k + S_{C_k},$$

где C_k — концентрация k -го изотопа [Бк/м³];

D_{pk} — коэффициент диффузии k -го изотопа по обводненному поровому пространству [м²/с], причем $D_{pk} = D_{wk} \cdot G_f$;

D_{wk} — коэффициент диффузии k -го иона в свободной воде [м²/с]. Значение этого параметра предлагается принять равным 10^{-9} [м²/с];

G_f — геометрический фактор, определяемый посредством выражения $G_f = \delta / \tau^2$ [—], δ и τ — сжимаемость [—] и извилистость пор [—], соответственно;

R_k — фактор задержки k -го изотопа [—]. Фактор задержки вычисляется через выражение $R_k = 1 + \rho_b K_{dk} / \varepsilon$, где ρ_b и ε — насыпная плотность [кг/м³] и пористость [—] сухого материала, K_{dk} — коэффициент распределения k -го радионуклида в приближении линейной сорбции [м³/кг];

λ_k — постоянная распада k -го радионуклида [с⁻¹];

S_{C_k} — источниковый член для k -го изотопа [Бк/(м³·с)].

Отношение D_{pk} / R_k дает так называемый наблюдаемый коэффициент диффузии D_{ak} для k -го изотопа $[m^2/c]$.

Граничные условия для концентрации растворенной примеси, соответствующие сценарию нормальной эволюции хранилища, выбранной геометрии и традиционному выбору направления осей x и y , следующие: $\frac{\partial C_k}{\partial x} \Big|_{x-} = 0$, $C_k \Big|_{x+} = 0$,

$C_{ky-} = 0$ и $C_k \Big|_{y+} = 0$, где обозначения $x-$ и $x+$ соответствуют левой и правой границам области вдоль оси x , а $y-$ и $y+$ — нижней и верхней границам вдоль оси y . Использование нулевых граничных условий на внешней границе модели соответствует наличию трещин во вмещающем массиве, что способствует относительно быстрому удалению радионуклидов из ближнего поля.

Рекомендуемые миграционные характеристики радионуклидов (коэффициенты распределения в областях заполнителя и вмещающей породы и пределы растворимости) приведены в таблице 3.

Таблица 3

Миграционные характеристики анализируемых радионуклидов в области заполнителя и вмещающей породе

Радионуклиды	Коэффициент распределения K_d , $[m^3/kg]$		Предел растворимости C_s , $[Bk/m^3]$
	смесь бентонита и крошеной породы	вмещающая порода	
^{79}Se	0,001	0,001	$3,11 \cdot 10^4$
^{93}Zr	1,000	1,000	$2,16 \cdot 10^4$
^{99}Tc	0,900	1,000	$4,76 \cdot 10^5$
^{107}Pd	0,010	0,010	$8,56 \cdot 10^3$
^{126}Sn	0,500	0,001	$5,93 \cdot 10^5$
^{129}I	0,000	0,000	высокая
^{135}Cs	0,050	0,050	высокая

Необходимые для выполнения численных экспериментов параметры областей модели приведены ниже.

Области модели	Плотность, $[kg/m^3]$	Пористость, $[\%]$
Вмещающая порода	$2 \cdot 700$	0,5
Заполнитель	$2 \cdot 714$	30
Зона отходов (экспертно)	$2 \cdot 200$	1—5

Расчеты показывают, что при увеличенной пористости области источника в пять раз некоторые радионуклиды потребуют при численных экспериментах изменения модели растворения, что сказывается на подготовке исходных данных. Результаты такого анализа в терминах используемой модели растворения сведены в табл. 4.

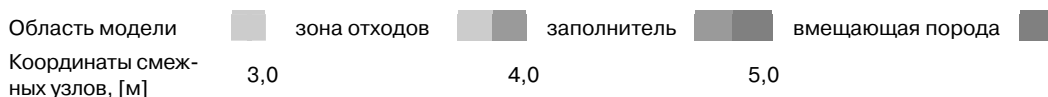
Таблица 4

Модель растворения при вариации пористости области источника

Радионуклиды	Пористость области источника, [%]	
	5	1
⁷⁹ Se	Мгновенное растворение	Предел растворимости
⁹³ Zr	Предел растворимости	Предел растворимости
⁹⁹ Tc	Предел растворимости	Предел растворимости
¹⁰⁷ Pd	Мгновенное растворение	Предел растворимости
¹²⁶ Sn	Мгновенное растворение	Предел растворимости
¹²⁹ I	Мгновенное растворение	Мгновенное растворение
¹³⁵ Cs	Мгновенное растворение	Мгновенное растворение

Временной диапазон исследований миграции радионуклидов был принят равным 50 тысяч лет, тогда как часто в оценках воздействия на окружающую среду ограничиваются сроком 10 тысяч лет. Основание выбора такого временного периода для условий принятой математической модели следующее: предварительные численные эксперименты показали, что на время 10 тысяч лет для большинства рассматриваемых радионуклидов все еще наблюдается рост концентрации растворенной активности вблизи границы раздела «заполнитель — вмещающая порода» (указанный момент будет продемонстрирован позже).

Анализ пространственного распределения концентрации анализируемых радионуклидов был проведен по такой схеме: рассматривались значения концентрации радионуклидов в смежных узлах модели в последовательности 1) зона отходов — 2) заполнитель — 3) вмещающая порода. Визуально это соответствует следующему расположению узлов расчетной сетки (рис. 4).

**Рис. 4.** Координаты смежных узлов расчетной сетки в областях модели вдоль оси X

Представленная информация в табл. 5 и 6 позволяет выполнить в линейном приближении несложные расчеты параметра, показывающего, во сколько раз используемый нами барьер уменьшает уровень концентрации, т.е. коэффициент ослабления указанного барьера для k -го радионуклида — $f = C_{in} / C_{out}$, где C_{in} и C_{out} — значения концентрации радионуклида на границе раздела областей «зона отходов — заполнитель» и «заполнитель — вмещающая порода» соответственно. В табл. 7 приведены значения коэффициента ослабления по каждому из радионуклидов для двух проанализированных значений пористости зоны отходов.

Таблица 5

**Расчетные значения концентрации радионуклидов
в смежных узлах расчетной сетки модели для пористости 5%, [Бк/м³]**

Изотоп	Зона отходов	Заполнитель	Порода	Модель растворимости
⁷⁹ Se	$9,90 \cdot 10^1$	$9,68 \cdot 10^1$	$6,18 \cdot 10^1$	Мгновенное растворение
⁹³ Zr	$2,11 \cdot 10^4$	$1,27 \cdot 10^1$	$3,78 \cdot 10^{-3}$	Предел растворимости
⁹⁹ Tc	$4,05 \cdot 10^5$	$2,43 \cdot 10^2$	$7,24 \cdot 10^{-2}$	Предел растворимости
¹⁰⁷ Pd	$1,53 \cdot 10^1$	$1,44 \cdot 10^1$	$1,24 \cdot 10^0$	Мгновенное растворение
¹²⁶ Sn	$2,12 \cdot 10^2$	$8,52 \cdot 10^1$	$2,61 \cdot 10^1$	Мгновенное растворение
¹²⁹ I	$8,53 \cdot 10^2$	$8,49 \cdot 10^2$	$7,60 \cdot 10^2$	Мгновенное растворение
¹³⁵ Cs	$2,69 \cdot 10^2$	$1,49 \cdot 10^2$	$2,00 \cdot 10^0$	Мгновенное растворение

Таблица 6

**Расчетные значения концентрации радионуклидов
в смежных узлах расчетной сетки модели для пористости 1%, [Бк/м³]**

Изотоп	Зона отходов	Заполнитель	Порода	Модель растворимости
⁷⁹ Se	$7,36 \cdot 10^3$	$6,87 \cdot 10^3$	$4,15 \cdot 10^3$	Предел растворимости
⁹³ Zr	$2,11 \cdot 10^4$	$1,27 \cdot 10^1$	$3,78 \cdot 10^{-3}$	Предел растворимости
⁹⁹ Tc	$4,02 \cdot 10^5$	$2,43 \cdot 10^2$	$7,24 \cdot 10^{-2}$	Предел растворимости
¹⁰⁷ Pd	$7,31 \cdot 10^3$	$6,68 \cdot 10^2$	$2,50 \cdot 10^0$	Предел растворимости
¹²⁶ Sn	$3,93 \cdot 10^5$	$1,94 \cdot 10^4$	$7,68 \cdot 10^3$	Предел растворимости
¹²⁹ I	$8,83 \cdot 10^2$	$8,80 \cdot 10^2$	$7,89 \cdot 10^2$	Мгновенное растворение
¹³⁵ Cs	$2,59 \cdot 10^2$	$1,34 \cdot 10^2$	$1,79 \cdot 10^0$	Мгновенное растворение

Таблица 7

Коэффициент ослабления при вариации пористости области источника

Радионуклиды	Пористость области источника, [%]	
	5	1
⁷⁹ Se	1,24	1,29
⁹³ Zr	$1,66 \cdot 10^3$	$1,66 \cdot 10^3$
⁹⁹ Tc	$1,65 \cdot 10^3$	$1,65 \cdot 10^3$
¹⁰⁷ Pd	1,90	11,51
¹²⁶ Sn	2,67	15,23
¹²⁹ I	1,06	1,06
¹³⁵ Cs	2,77	2,89

Данные табл. 7 свидетельствуют, что изменение модели растворения наиболее существенно влияет на величину коэффициента ослабления, что хорошо видно на примере радионуклидов ¹⁰⁷Pd и ¹²⁶Sn. При сохранении модели растворения вариация пористости от 1% до 5% вызывает незначительное изменение в значении коэффициента ослабления. Самым существенным барьером выбранный материал заполнителя является для радионуклидов ⁹³Zr и ⁹⁹Tc. В то же время для таких изотопов, как ⁷⁹Se и ¹²⁹I, этот заполнитель преградой практически не выступает.

Зависимость концентрации радионуклидов от времени выполнена для расчетного узла рис. 6 с координатой 5 м (вмещающая порода). Для удобства после-

дующего анализа значения концентрации переведены из $[Бк/м^3]$ в $[Бк/кг]$. На рис. 5 приведена динамика концентрации радионуклидов в указанной точке пространства для пористости области отходов равной 5%.

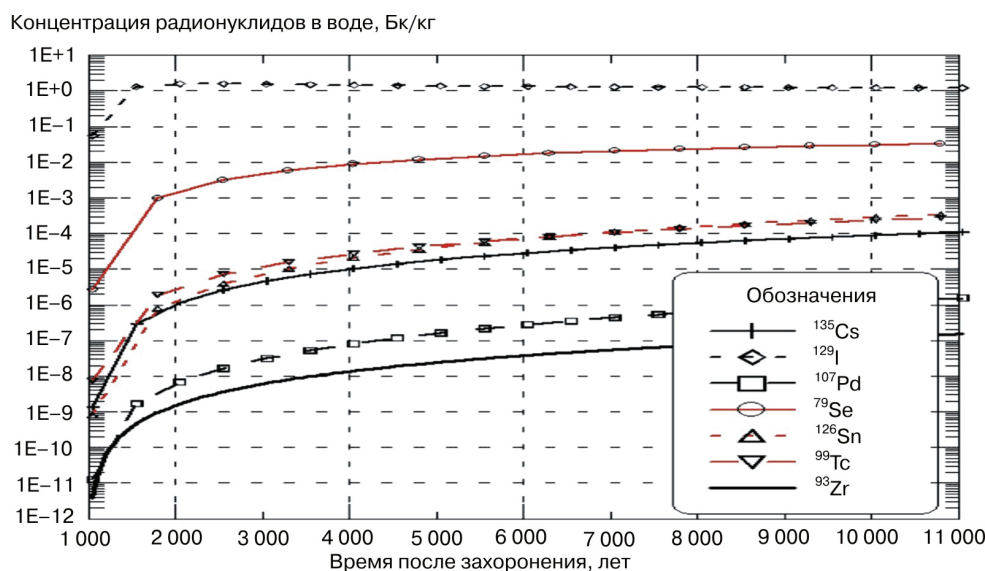


Рис. 5. Динамика концентрации радионуклидов в воде порового пространства породы вблизи границы раздела «заполнитель — порода» (пористость источника 5%).

На этом рисунке хорошо видно, что время моделирования, равное 10 тысячам лет, явно недостаточно для 6 радионуклидов из 7, чтобы зафиксировать их максимальные значения. Лишь для изотопа ^{129}I наблюдается процесс, когда достаточно быстро достигается максимум значения концентрации (в районе 2000 лет после захоронения) и потом прогнозируется медленный спад. Для остальных радионуклидов производная обсуждаемых кривых на всем протяжении моделирования имеет положительный знак.

Следует отметить, что уровень прогнозируемых концентраций для всех рассмотренных радионуклидов, кроме изотопа ^{129}I , существенно ниже УВ. Лишь для изотопа ^{129}I при максимальных значениях прогнозируемый уровень концентрации незначительно превышает величину УВ для этого изотопа.

Таким образом, выполненный анализ динамики концентрации радионуклидов в воде порового пространства на выходе во вмещающий массив свидетельствует (в рамках принятого сценария) о полной безопасности подобного захоронения. Уровень концентрации подземных вод даже вблизи объекта захоронения таков, что он не представляет серьезной угрозы для загрязнения окружающей среды.

Третьим проанализированным параметром является скорость высвобождения радиоактивности. Для этого для обоих значений пористости области источника были построены зависимости скорости высвобождения активности с поверхности зоны отходов для трех радионуклидов — ^{79}Se , ^{99}Tc и ^{129}I). Идея

сравнения скоростей высвобождения именно этих радионуклидов заключалась в следующем:

- для первого радионуклида имеет место изменение модели растворения;
- для второго изотопа модель растворения не изменялась и в обоих случаях применялась модель предела растворимости;
- для третьего радионуклида также не изменялась модель растворения, но в этом случае использовалась модель мгновенного растворения.

Сравнение построенных кривых для значений пористостей области источника показывает, что наибольшее изменение в поведении кривых наблюдается в ситуации изменения модели растворения, т.е. для радионуклида ^{79}Se . При этом для минимальной пористости величина скорости высвобождения активности заметно выше, чем при максимальном значении пористости области источника.

В случае использования одной и той же модели растворения изменения в поведении скорости высвобождения не столь значительны. Однако при этом для модели предела растворимости (изотоп ^{99}Tc) скорость высвобождения активности ниже именно при минимальной пористости области источника. В то же время для модели мгновенного растворения (^{129}I) наблюдается изменение в преимуществе кривых скорости высвобождения в зависимости от пористости области источника: на первом этапе доминирует скорость высвобождения при максимальной пористости, а далее на первый план выходит кривая скорости высвобождения при минимальной пористости.

Все приведенные на рис. 6—8 кривые являются монотонно убывающими, а значит, не наблюдается факт истощения источника. Более детальный анализ (вывод на контроль скорости высвобождения при малых временах) показал, что в случае использования модели предела растворимости момент истощения наступает уже в течение 1—2 лет после начала расчета, т.е. достаточно быстро.

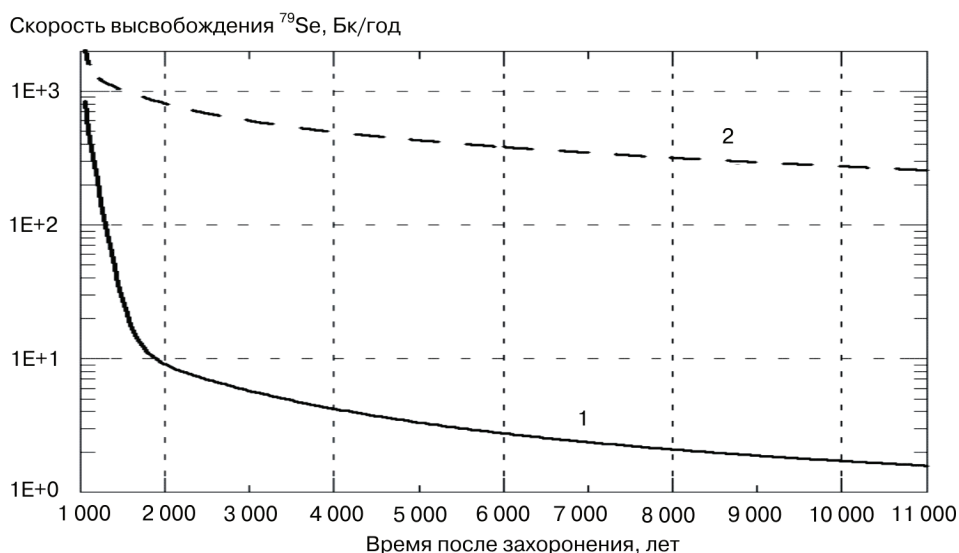


Рис. 6. Динамика скорости высвобождения активности ^{79}Se
(1 — пористость источника 5% и 2 — пористость источника 1%)

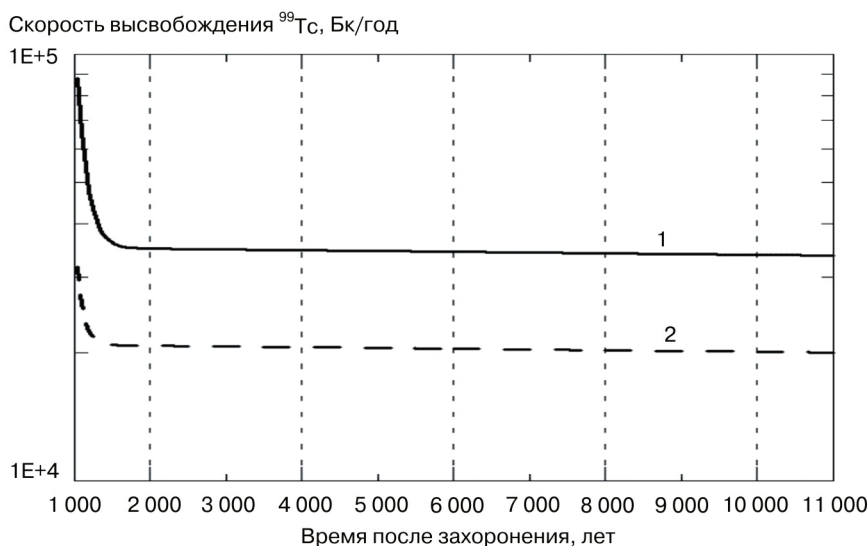


Рис. 7. Динамика скорости высвобождения активности ^{99}Tc
(1 — пористость источника 5% и 2 — пористость источника 1%)

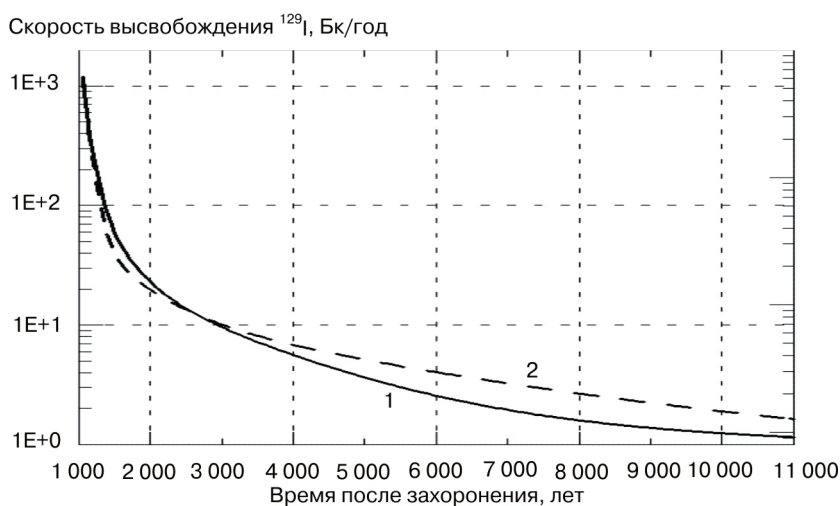


Рис. 8. Динамика скорости высвобождения активности ^{129}I
(1 — пористость источника 5% и 2 — пористость источника 1%).

Выводы

На примере объекта захоронения аварийного блока (заказ 915) рассмотрены последствия высвобождения радиоактивности в подземные воды вмещающего массива. Для этого разработаны концептуальная и математическая модели объекта, позволившие в рамках сценария нормальной эволюции исследовать диффузионную миграцию долгоживущих продуктов деления через инженерные барьеры и вмещающую породу.

Продемонстрированы особенности миграции радионуклидов в зависимости от выбора модели растворения в области источника, что, в свою очередь,

связано с неопределенностью выбора такого параметра области источника, как пористость.

На основе пространственного распределения концентрации радионуклидов в рассматриваемых материалах на момент времени 50 тысяч лет определены коэффициенты ослабления однометровым слоем заполнителя для рассматриваемых радионуклидов. Максимальные коэффициенты ослабления характерны для радионуклидов ^{93}Zr и ^{99}Tc . Показано влияние на величину коэффициента ослабления использования различных моделей растворения — мгновенное растворение и предел растворимости.

Построены кривые динамики концентрации радионуклидов на входе во вмещающий массив, анализ поведения которых позволяет достаточно объективно говорить, что в рамках рассмотренного сценария эволюции загрязнение подземных вод массива продуктами деления не вызывает тревоги (существенно ниже УВ).

Представлены зависимости скорости высвобождения отдельных радионуклидов из области зоны отходов от времени, а также от вида используемой модели растворения. При выбранных уровнях активности продуктов деления в объекте захоронения имеет место очень быстрое истощение источника (за 1—2 года).

MATHEMATICAL MODELING OF PROCESS OF LIBERATION OF A RADIO-ACTIVITY FROM OBJECT OF ISOLATION

V.P. Kamenev, P.V. Amosov

KNC RAS

Apatity, str., 14, Fersmana, Russia, 184209

V.N. Barinov

Institute of problems of safe development of atomic engineering of the RAS

B. Tulskeya, 52, Moscow, Russia, 113191

M.A. Kojin, I.A. Osipianc

ОАО «НИПТБ «Онега»

Lebedeva str., 1, Severodvinsk, Russia, 692809

V.A. Rogov

PFUR

People's friendship university of Russia

Podolskoe str., 8/5, Moscow, Russia, 113093

In article conceptual and mathematical models of process of liberation of a radio-activity are described at a burial place peakторных blocks of nuclear submarines with the fulfilled nuclear fuel with a view of acknowledgement of their long and safe storage according to requirements of operating standard documents.