

УДК: 631.438.2; 544.034.24; 532.5-1/-9

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССА МИГРАЦИИ ДОЛГОЖИВУЩИХ РАДИОНУКЛИДОВ ИЗ ГРАФИТОВЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Павлюк Александр Олегович¹,
seversknet@rambler.ru

Котляревский Сергей Геннадьевич¹,
skotkyarevkiy@rambler.ru

Беспала Евгений Владимирович¹,
bespala_evgeny@mail.ru

Волкова Анна Генриховна²,
anna.agv@yandex.ru

Захарова Елена Васильевна²,
zevchem@rambler.ru

Андрющенко Наталья Дмитриевна²,
nataliarchem@gmail.com

¹ АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов»,
Россия, 636000, г. Северск, ул. Автодорога 13, 179а.

² Институт физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина Российской академии наук,
Россия, 119071, г. Москва, пр. Ленинский, 31, корп. 4.

Актуальность работы обусловлена необходимостью определения свойств инженерных глинистых барьеров безопасности, характеризующих надежность изоляции долгоживущих радионуклидов в пункте захоронения графитовых твердых радиоактивных отходов.

Цель работы: оценка влияния вариации параметров, характеризующих "барьерные" свойства материала, на динамику распространения долгоживущих радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl из пункта размещения графитовых радиоактивных отходов.

Методы исследования: математическое моделирование процесса миграции долгоживущих радионуклидов с учетом диффузионных и фильтрационных потоков путем решения квазиодномерного нестационарного уравнения диффузии в программном комплексе Mathlab.

Результаты. Разработана математическая модель миграции долгоживущих радионуклидов из облученного графита уран-графитовых реакторов, находящегося в хранилищах, в глинистые барьеры безопасности, учитывающая фильтрационное движение влаги и снижение активности радионуклидов за счет радиоактивного распада. Показано, что для выбранных радионуклидов диффузионные потоки в природных глинах незначительны и практически не влияют на процесс миграции. Наиболее значимым фактором является вынужденная конвекция при перемещении влаги. В результате происходит перенос радионуклидов через барьеры безопасности во вмещающие породы. Доказано, что используемые в настоящее время глиносодержащие барьеры безопасности надежно изолируют радионуклид ^{14}C в пункте консервации или захоронения облученного ядерного графита даже в случае их обводнения. При этом превышение уровня вмешательства для ^{36}Cl в таком барьере безопасности возможно только при условии отсутствия конвективных потоков влаги для рассмотренных консервативных условий моделирования. Показано, что для реального хранилища условие превышения уровня вмешательства для ^{36}Cl определяется существенно меньшей активностью ^{36}Cl по сравнению с ^{14}C (более 3-х порядков), а также многократным разбавлением концентрации ^{36}Cl по мере удаления от источника конечной геометрии.

Ключевые слова:

Радионуклид, хранилище радиоактивных отходов, облученный графит, миграция, диффузия.

Введение

В соответствии с Постановлением Правительства Российской Федерации № 1069 от 19.10.2012 «О критериях отнесения...» графит кладок активной зоны энергетических уран-графитовых реакторов (УГР) относится к классу 2 удаляемых твердых РАО (долгоживущие отходы средней категории активности с периодом полураспада отдельных радионуклидов более 31 года) и подлежит захоронению в пунктах глубинного захоронения РАО (ПЗРО). Также ко 2-му классу удаляемых

РАО относится большая часть аварийного графита, содержащего просыпи ОЯТ. Графитовые РАО класса 3 могут быть захоронены в приповерхностных ПЗРО.

Система захоронения РАО – это совокупность природно-геологических образований (вмещающие и покрывающие породы), конструктивных элементов пункта захоронения, материала захораниваемых РАО (облученный графит – основной источник активности) и создаваемых инженерных барьеров безопасности. Данный подход позволяет

решить проблему радиоактивных отходов, в первую очередь графитовых.

Класс РАО основной массы облученного графита (более 90 %) определяется главным образом наличием в составе деталей графитовых кладок долгоживущих радионуклидов (прежде всего, ^{14}C , ^{36}Cl) и их содержанием. Применительно к графиту энергетических УГР класс РАО определяет ^{14}C , удельная активность которого лежит в диапазоне 10^4 – 10^6 Бк/г. Другой долгоживущий изотоп – ^{36}Cl , не является определяющим, поскольку его удельная активность составляет величину 10^2 – 10^3 Бк/г (ниже границы САО-НАО).

Основной задачей обоснования выбора варианта захоронения основной массы графитовых РАО является удовлетворение требованиям гарантированной изоляции данных радионуклидов на весь период сохранения ими потенциальной опасности.

Надежная изоляция радионуклидов может быть достигнута при создании дополнительных барьеров безопасности, состоящих из природных глин. Противомиграционные и противодиффузионные свойства таких барьеров зависят от сорбционных, водно-физических и химических характеристик используемого материала. При этом в ряде случаев даже незначительные вариации параметров, характеризующих данные свойства, могут определять применимость материала для создания дополнительных барьеров безопасности.

Таким образом, целью настоящей работы является оценка влияния вариации параметров, характеризующих «барьерные» свойства материала, на динамику распространения долгоживущих радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl из пункта размещения графитовых радиоактивных отходов.

Разработка математической модели

Известно, что радионуклиды, попадающие во вмещающие породы из хранилища радиоактивных отходов, под действием внешних сил могут мигрировать в горизонтальном и вертикальном направлениях, что способствует их поступлению в грунтовые воды, в воды водоемов. К таким силам можно отнести: капиллярный поток влаги к поверхности в результате испарения жидкости, фильтрация атмосферных осадков и влаги техногенного происхождения в почве, массоперенос влаги под действием градиента температур, диффузия адсорбированных и свободных ионов, перенос на мигрирующих коллоидных частицах и др. [1]. Дополнительно к этому при расчете миграции радионуклидов необходимо учитывать процессы радиоактивного распада, энерговыделения в результате радиоактивного распада, конвективного и кондуктивного теплообмена [2]. Поэтому моделирование такой гетерогенной системы затруднено в силу наличия большого количества внешних факторов, влияющих на процесс массопереноса.

В рамках настоящего исследования рассматривается сценарий вероятного обводнения условного хранилища графитовых радиоактивных отходов

влажной техногенной или природной происхождения, которая движется в горизонтальном направлении с постоянной скоростью U_0 , т. е. имеет место конвективный перенос (рис. 1) [3–6]. Предполагалось, что в результате внешнего воздействия на объект захоронения ТРО происходит выход наиболее мобильных долгоживущих радионуклидов из облученного графита. Графит при нормальных температурных условиях является практически «неокисляемым» материалом, поэтому выход радионуклидов из графитовых РАО будет определяться исключительно параметрами их селективного выщелачивания [7]. За счет диффузионного и конвективного перемещения влаги происходит миграция радионуклидов из облученного графита в искусственные глинистые барьеры безопасности, характеризующиеся высокими противодиффузионными и противомиграционными свойствами, шириной L_1 . Со временем возможен выход радионуклидов в естественный грунт протяженностью L_2 . При этом в расчетной модели предлагалось, что ширина глинистого барьера намного меньше ширины естественного грунта ($L_1 < L_2$).

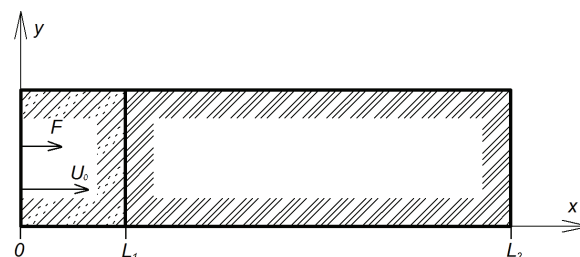


Рис. 1. Схема расчетной области

Fig. 1. Scheme of calculation area

Для моделирования процесса массопереноса в системе облученный графит – барьер – порода использовали второй закон Фика и решали квазиодномерные нестационарные уравнения диффузии в декартовой системе координат (1), (2) с учетом фильтрационного движения влаги и снижения активности долгоживущих радионуклидов за счет радиоактивного распада [8]:

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D_{1i} \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - u_{1i} \frac{\partial C_i}{\partial x} - \lambda_i C_i, \quad 0 < x < L_1; \quad (1)$$

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = D_{2i} \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - u_{2i} \frac{\partial C_i}{\partial x} - \lambda_i C_i, \quad L_1 < x < L_2; \quad (2)$$

где C_i – концентрация i -го долгоживущего радионуклида в геологической формации, Бк/м³; D_{1i} и D_{2i} – коэффициент диффузии i -го радионуклида в барьере безопасности и грунте соответственно, м²/с; u_{1i} и u_{2i} – скорость движения i -го радионуклида в барьере безопасности и грунте соответственно, м/с; λ_i – постоянная распада i -го радионуклида, которая однозначно связана с периодом полураспада, с⁻¹; t – время, с.

Существуют различные способы определения скорости поступления i -го радионуклида в барьер безопасности. Например, в работе [9] на одной из

границ расчетной области задавались граничные условия I рода, что предполагало постоянство концентрации на ней. В другой работе [10] для этого вводилась специальная функция φ , которая учитывала время выщелачивания радионуклидов из графитовой кладки и их неравномерность распределения. Однако такой способ учета поступления радионуклидов в барьеры безопасности и выбранная постановка задачи приводят к неточностям в оценке скорости миграции и времени защитного действия барьеров, так как подразумевают наличие объемного источника внутри самого барьера. Для устранения этого недостатка целесообразно исходить из предположения, что на одной из границ расчетной области существует постоянный по времени массовый поток F i -го радионуклида в барьер безопасности, который образуется при выщелачивании этого радионуклида с поверхности графитовых РАО под действием внешнего потока влаги U_0 :

$$-D_{1i} \frac{\partial C_i}{\partial x} \Big|_{x=0} = Ra_0 e^{-\lambda t} = F_0 e^{-\lambda t} = F, \quad (3)$$

где a_0 – удельная активность i -го радионуклида, Бк/г; R – скорость выщелачивания i -го радионуклида, г/(см²·сут) [11]; F_0 – интенсивность выхода i -го радионуклида с единицы поверхности РАО и переход его в мобильную форму, Бк/(см²·сут); F – интенсивность выхода i -го радионуклида с единицы поверхности РАО и переход его в мобильную форму с учетом радиоактивного распада, Бк/(см²·сут).

В месте контакта глинистого барьера безопасности и породы будет соблюдаться равенство диффузионных потоков:

$$D_{1i} \frac{\partial C_i}{\partial x} \Big|_{x=L1} = D_{2i} \frac{\partial C_i}{\partial x} \Big|_{x=L1}. \quad (4)$$

Условие на правой границе выбиралось из соображений гарантированного отсутствия i -го радионуклида в этом месте через время, сравнимое с периодом полураспада выбранного радионуклида:

$$C_i \Big|_{x=L2} = 0. \quad (5)$$

Средняя линейная скорость движения радионуклида под действием влаги в барьере безопасности и природном грунте u_{1i} и u_{2i} с учетом фильтрационного потока и пористости материала в общем случае определялось из уравнения [12–14]:

$$u = \frac{\theta u_0}{K_d \rho_\varepsilon}, \quad (6)$$

где θ – средняя влажность геологического материала, %; K_d – коэффициент межфазного распределения i -го радионуклида, см³/кг; ρ_ε – плотность материала с учетом пористости.

Предполагалось, что в начальный момент времени активность и, соответственно, концентрация i -го радионуклида в барьерном материале и природном грунте равна нулю:

$$C_i \Big|_{t=0} = 0. \quad (7)$$

Поставленная задача решалась с учетом допущений, что долгоживущие радионуклиды химически инертны к материалу геологических формаций, влага перемещается с постоянной скоростью вне зависимости от термодинамических условий. Решение уравнений (1), (2) с граничными (3)–(5) и начальными (7) условиями проводилось в математическом пакете MathLab [15–17]. При этом дифференциальные операторы заменялись на конечно-разностные аналоги. Разностные аналоги дифференциальных уравнений решались локально-одномерным методом. Для решения одномерных разностных уравнений применялся метод прогонки с использованием неявной схемы. Нелинейные уравнения решались методом итераций.

Получение исходных данных

На территории площадок размещения реакторных установок с графитовым замедлителем пункты хранения твердых радиоактивных отходов, содержащих облученный графит, расположены в приповерхностном слое грунта. Вмещающие хранилища породы представлены песками и суглинками. Минералогический состав пород включает: кварц (60–80 %), 5 % полевые шпаты (5–15 %), глинистые минералы (10–20 %), остальное хлорит, слюды, обломочные материалы.

Пески в основном мелкие и средней крупности, отчасти пылеватые. По степени плотности сложенные – рыхлые, средней плотности и плотные, причем плотность песков закономерно увеличивается с глубиной. В среднем плотность составляет до 1,75 г/см³, коэффициент пористости – 0,60. По степени увлажнения пески в верхней части разреза маловлажные и влажные, в нижней части разреза – влажные.

В настоящее время приреакторные хранилища, содержащие графитовые радиоактивные отходы и относящиеся к «ядерному наследию», не в полной мере удовлетворяют более жестким современным требованиям хранения радиоактивных материалов. Выполнение таких требований возможно только при условии создания в существующих приреакторных хранилищах дополнительных барьеров безопасности, образующих совместно с вмещающими хранилище породами (природный барьер) многобарьерную защитную систему. При этом конструктивные элементы хранилища (стены, пол и др.) в качестве барьеров безопасности не рассматриваются, так как время сохранения свойств конструктивных материалов пренебрежимо мало по сравнению периодом сохранения потенциальной опасности рассматриваемых радионуклидов.

Создаваемая барьерная система должна обеспечивать условия размещения ТРО, при которых перенос радионуклидов возможен только за счет процессов диффузии. При этом коэффициенты диффузии в материале барьера радионуклидов должны быть настолько низкими, чтобы уровень их активности при выходе за пределы хранилища не превышал уровни вмешательства.

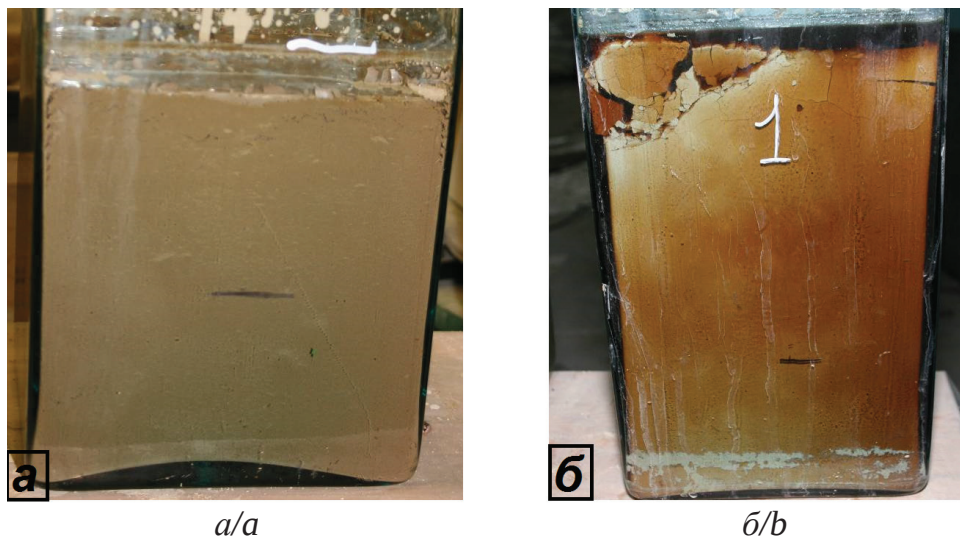


Рис. 2. Макет, имитирующий глиняный барьер безопасности: а) сухой; б) обводненный

Fig. 2. Model imitating the safety barrier: a) dry; b) watered

В качестве перспективного варианта решения проблемы в АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов» (АО «ОДЦ УГР») рассматривается вариант создания дополнительных барьеров безопасности путем заполнения свободного пространства хранилища глинистым раствором. Барьер сооружается внутри хранилища путем нагнетания глиняного раствора через перфорированные трубы, шаг размещения которых определяется с таким расчетом, чтобы нагнетаемая глинистая масса распределялась по всему объему хранилища. После высыхания глины в хранилище образуется глиняный монолит, содержащий твердые радиоактивные отходы и препятствующий миграции радионуклидов. Пример созданных барьеров безопасности на макете, имитирующем хранилище графитовых РАО, представлен на рис. 2, а. Случай альтернативного сценария, в котором происходит обводнение хранилища, заполненного радиоактивными отходами и барьерным материалом, представлен на рис. 2, б.

Наведенная активность облученного графита определяется в основном ^{14}C , ^{36}Cl , ^3H , ^{60}Co , при этом 95 % активности облученного графита составляет долгоживущий радионуклид ^{14}C . Хотя активность ^{36}Cl приблизительно в 1000 раз меньше, чем ^{14}C , но за счет более высокого периода полураспада ^{36}Cl относительно ^{14}C (^{14}C $T_{1/2}=5730$ лет, а ^{36}Cl $T_{1/2}=3\cdot 10^5$ лет), то проводить оценку миграции необходимо как для ^{14}C , так и для ^{36}Cl .

Экспериментально и также путем анализа имеющихся литературных данных были определены основные характеристики (сорбционные, водно-физические и химические) пород и используемых глинистых барьеров безопасности по отношению к выбранным долгоживущим радионуклидам. Сводная информация представлена в табл. 1 и 2.

Таблица 1. Параметры, необходимые для проведения расчетов (для ^{14}C)

Table 1. Parameters required for calculations (for ^{14}C)

Объект Object	Коэффициент диффузии, D Diffusion coefficient, D	Коэффициент межфазного распределения, K_d Interfacial distribution coefficient, K_d	Плотность, ρ_e (г/см ³) Density, ρ_e (g/cm ³)	Средняя влажность, θ (%) Average humidity, θ
Глина Clay	10^{-5} м ² /год	(0–0,12) м ³ /кг [10]	(1–1,5) г/см ³	(10–23)
Грунт Soil	10^{-11} м ² /с [18]	0	(1,75–1,8)	

Таблица 2. Параметры, необходимые для проведения расчетов (для ^{36}Cl)

Table 2. Parameters required for calculations (for ^{36}Cl)

Объект Object	Коэффициент диффузии, D Diffusion coefficient, D	Коэффициент межфазного распределения, K_d Interfacial distribution coefficient, K_d	Плотность, ρ_e (г/см ³) Density, ρ_e (g/cm ³)	Средняя влажность, θ (%) Average humidity, θ
Глина Clay	$(1,5–2,1)\cdot 10^{-10}$ м ² /с [19] $(3–6)\cdot 10^{-6}$ см ² /с [20]	0 м ³ /кг [21]	(1–1,5)	(10–23)
Грунт Soil	10^{-5} см ² /сут [1]		(1,75–1,8)	

При решении уравнений (1), (2) с граничными (3)–(5) и начальным (7) условиями в качестве постоянных величин выбирались коэффициент диффузии D , коэффициент межфазного распределения K_d , постоянная распада долгоживущих радионуклидов λ . Расчет скорости миграции проводили при следующих значениях изменяемых параметров:

- интенсивность выхода ^{14}C с единицы поверхности графита F_0 , Бк/(см²·сут): 1; 0,1; 0,01;
- интенсивность выхода ^{36}Cl с единицы поверхности графита F_0 , Бк/(см²·сут): 10⁻²; 10⁻³; 10⁻⁵;
- скорость движения влаги U_0 , м/год: 0; 1; 5; 10;
- плотность глинистого барьера безопасности ρ_e , г/см³: 1; 1,4; 1,8;
- толщина глинистого барьера безопасности l : 1 м; 5 м; 10 м;
- влажность глинистого барьера безопасности θ , %: 13; 23; 30.

По результатам расчета был накоплен массив данных, отражающий скорость миграции основных долгоживущих радионуклидов и время защитного действия барьеров.

Обсуждение полученных результатов

По имеющимся данным (табл. 1 и 2) проведен расчет скорости миграции радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl из хранилища графитовых РАО под действием потока влаги при различных параметрах глинистого барьера безопасности и прилегающего грунта. На рис. 3 представлен профиль концентрации ^{14}C по толщине барьера в течение 10000 лет после начала обводнения хранилища при условиях: $U_0=1$ м/год, $l=5$ м, $\theta=23$ %, $\rho_e=1,4$ г/см³, $F_0=0,01$ Бк/(см²·сут), $K_d=0,12$ м³/кг. Из графика 3 видно, что искусственно созданный глинистый барьер безопасности позволяет надежно изолировать графитовые РАО, поскольку за время 10000 лет радионуклид ^{14}C проникает в глубь барьера не более чем на 2,5 см. При этом определяющим является процесс конвективного переноса ^{14}C . Диффузионные потоки в данном случае слабо влияют на процесс миграции из-за относительно небольших значений коэффициентов диффузии (10⁻⁵ м²/год), что приводит к накоплению радионуклидов на границе облученный графит – глинистый барьер (до 3·10⁻⁸ Бк/м³). Поэтому скорость миграции ^{14}C будет определяться коэффициентом межфазного распределения и скоростью фильтрации, которая для выбранной глины составляет (10⁻⁵–10⁻³) м/сут. Исходя из этого, при максимально возможной интенсивности выхода ^{14}C из графита 1 Бк/(см²·сут), плотности глинистого материала 1 г/см³ и скорости движения влаги до 10 м/год необходимо и достаточно создавать глинистый барьер безопасности толщиной до 1 м. Это исключит превышение уровня вмешательства в течение длительного времени.

Необходимо отметить, что коэффициент межфазного распределения ^{14}C для различных глин варьируется в диапазоне $K_d=0$ –0,12 м³/кг. Следует учесть, что в случае отсутствия сорбции ($K_d=0$) скорость движения диффузионного профиля будет полностью определяться либо скоростью направленного потока влаги (в случае его наличия), либо коэффициентом диффузии ^{14}C во влажной глине. Таким образом, на работоспособность барьера по отношению к ^{14}C оказывают существенное влияние сорбционные характеристики материала.

Так, например, при расчете миграции радионуклидов из пункта консервации ПУГР ЭИ-2 [4] было принято консервативное допущение по отсутствию сорбции ^{14}C и ^{36}Cl в материале барьера и вмещающих породах. При этом учет гидрогеологических и ряда других условий в районе размещения объекта при моделировании всего процесса распространения данных радионуклидов привел к результату, свидетельствующему о многократном запасе до превышения уровней вмешательства в местах разгрузки водных горизонтов.

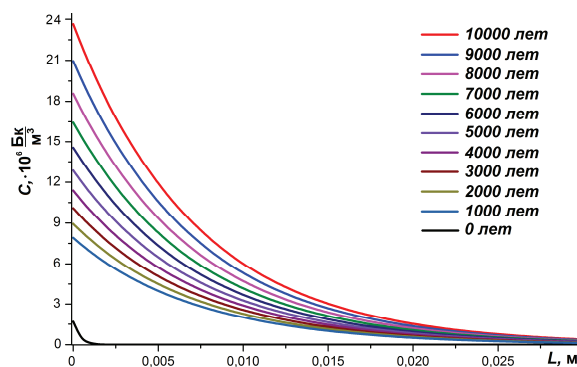


Рис. 3. Изменение профиля концентрации ^{14}C по толщине барьера с течением времени при: $U_0=1$ м/год, $l=5$ м, $\theta=23$ %, $\rho_e=1,4$ г/см³, $F_0=0,01$ Бк/(см²·сут), $K_d=0,12$ м³/кг

Fig. 3. Changing the profile of ^{14}C concentration in the barrier thickness over time with: $U_0=1$ m/year, $l=5$ m, $\theta=23$ %, $\rho_e=1,4$ g/cm³, $F_0=0,01$ Bq/(cm²·day), $K_d=0,12$ m³/kg

Аналогичные расчеты были проведены для другого долгоживущего радионуклида – ^{36}Cl , который по своим физико-химическим и сорбционным свойствам отличается от ^{14}C . Известно, что данный радионуклид фактически не сорбируется глинами (табл. 2), а скорость его миграции будет определяться скоростью движения влаги. Это подтверждается результатами расчетов (рис. 4).

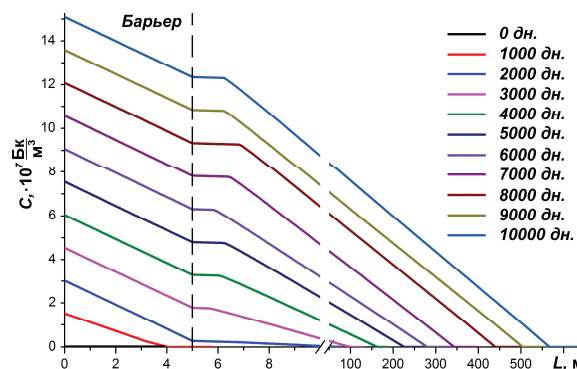


Рис. 4. Изменение профиля концентрации ^{36}Cl по толщине барьера и прилегающего грунта с течением времени при: $U_0=1$ м/год, $l=5$ м, $\theta=23$ %, $\rho_e=1,4$ г/см³, $F_0=0,01$ Бк/(см²·сут), $K_d=0,12$ м³/кг

Fig. 4. Changing the profile of ^{36}Cl concentration in the barrier and soil thickness over time with: $U_0=1$ m/year, $l=5$ m, $\theta=23$ %, $\rho_e=1,4$ g/cm³, $F_0=0,01$ Bq/(cm²·day), $K_d=0,12$ m³/kg

Из графиков видно, что искусственно созданный барьер безопасности снижает скорость миграции радионуклида ^{36}Cl , однако полностью его не задерживает. Вероятно это связано с тем, что коэффициент диффузии в глине и прилегающем грунте различен ($(1,5-2,1) \cdot 10^{-10} \text{ м}^2/\text{с}$ для глины и $10^{-5} \text{ см}^2/\text{сут}$ для грунта). При этом глинистый барьер безопасности толщиной не более 5 м и $\theta=23\%$, $\rho_s=1,4 \text{ г/см}^3$, $F_0=0,01 \text{ Бк/(см}^2\cdot\text{сут)}$ будет препятствовать распространению ^{36}Cl в течение не более 1500 дней. С увеличением толщины барьера безопасности время защитного действия увеличивается, однако оно несопоставимо со временем защитного действия для ^{14}C . Стоит отметить, что в отличие от ^{14}C концентрация радионуклида ^{36}Cl за время длительной консервации графитовых РАО (до 10000 лет) практически не снижается за счет естественного распада. Это накладывает дополнительные требования к материалу создаваемых барьеров.

Были получены значения скорости миграции радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl в зависимости от плотности барьеров безопасности и скорости движения влаги (рис. 5). Поскольку фильтрационный поток для ^{36}Cl в глине и грунте отсутствует, то плотность геологических материалов почти не влияет на скорость миграции этого радионуклида и составляет порядка 60 мм/день. Фактически движение радиоактивного хлора происходит под действием диффузионного и конвективного потоков при их совместном действии без сопротивления. Совершенно другая зависимость наблюдается для ^{14}C . Скорость миграции данного радионуклида существенно зависит от величины уплотнения глинистого барьера безопасности. При этом она линейно снижается при увеличении плотности барьерного материала и для выбранного расчетного диапазона может составлять (37–70) мм/год.

С увеличением скорости движения влаги через глинистый барьер безопасности и прилегающий грунт также возрастает скорость миграции радионуклидов (рис. 5, б). При этом данная зависимость носит почти линейный характер. Отклонение от

прямой линии в некоторых точках связано с увеличением доли диффузионного потока для выбранных радионуклидов. Однако определяющим является скорость фильтрации, поскольку скорость движения ^{14}C и ^{36}Cl внутри глины отличается на несколько порядков при условии, что водяной поток с углеродом подвержен фильтрации.

Заключение

Таким образом, безопасность пункта захоронения графитовых РАО определяется параметрами миграции долгоживущих радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl , которые подвержены выщелачиванию в случае попадания воды в хранилище из-за возможного наличия трещин в барьере. Поэтому основными требованиями к материалу барьеров безопасности являются высокие противотифльтрационные и противомиграционные характеристики. При этом такие барьеры должны обеспечивать надежную гидроизоляцию.

В работе было показано, что для выбранных радионуклидов диффузионные потоки в природных глинах незначительны и практически не влияют на процесс миграции. Наиболее значимым фактором является вынужденная конвекция под действием движущейся влаги. В результате происходит перенос радионуклидов через барьеры безопасности в грунт. Однако из-за наличия фильтрационных потоков для ^{14}C скорость миграции не превышает (37–70) мм/год, что не позволяет ему за длительный период времени (порядка 10000 лет) диффундировать через глинистый барьер в грунт. В отличие от ^{14}C радионуклид ^{36}Cl практически не фильтруется и не задерживается в глинистом материале, что приводит к его выходу за пределы барьера уже через несколько десятков лет.

Таким образом, используемые в настоящее время глиносодержащие барьеры безопасности надежно изолируют радионуклид ^{14}C в пункте консервации или захоронения облученного ядерного графита даже в случае их обводнения. При этом непревышение уровня вмешательства для ^{36}Cl в таком барьере безопасности возможно только при

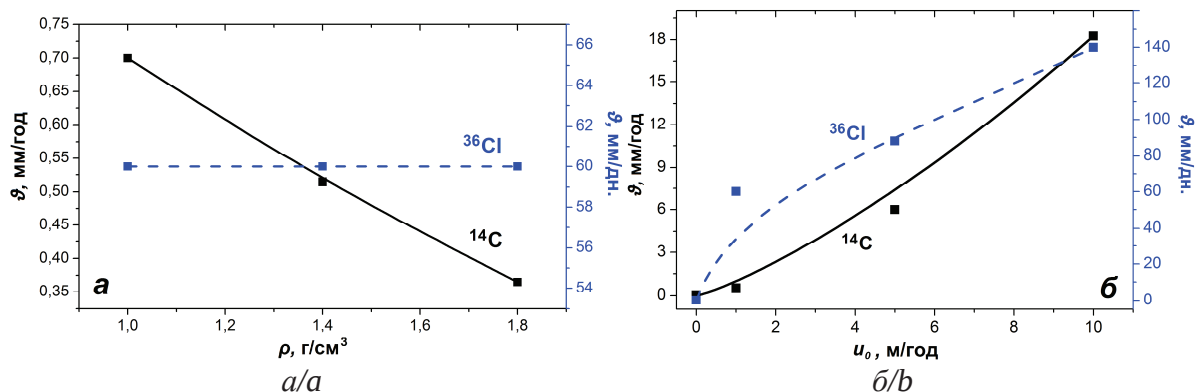


Рис. 5. Зависимость скорости миграции радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl от: а) плотности барьеров безопасности; б) скорости движения влаги

Fig. 5. Dependence of migration rate of radionuclides ^{14}C and ^{36}Cl on: a) density of safety barriers; b) rate of moisture movement

условии отсутствия конвективных потоков влаги для рассмотренных консервативных условий моделирования (поверхность источника – бесконечная плоскость). Для реального хранилища условие неперевышения уровня вмешательства для ^{36}Cl

определяется существенно меньшей активностью ^{36}Cl по сравнению с ^{14}C (более 3-х порядков), а также многократным разбавлением концентрации ^{36}Cl по мере удаления от источника конечной геометрии.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Прохоров В.М. Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. Физико-химические механизмы и моделирование / под ред. Р.М. Алексахина. – М.: Энергоиздат, 1981. – 98 с.
2. Истомин А.Д., Кораблев С.А., Носков М.Д. Математическое моделирование миграции радионуклидов в поверхностном слое грунта // Известия Томского политехнического университета. – 2005. – Т. 308. – № 3. – С.74–78.
3. Антоненко М.В., Чубреев Д.О., Кузнецов Г.В. Моделирование процесса диффузии радиоуглерода из активной зоны выводимого из эксплуатации ПУТР АД // Атомная энергия. – 2015. – Т. 118. – С. 63–68.
4. Izmetiev A., Pavliuk A., Kotlyarevsky S. Application of void-free filling technology for additional safety barriers creation during uranium-graphite reactors decommissioning // Advanced Materials Research. – 2015. – V. 1084. – P. 613–619.
5. Базылев В.В. Параметры миграции радионуклидов из грунтовых могильников твердых радиоактивных отходов // Вопросы радиационной безопасности. – 1997. – № 1. – С. 31–35.
6. Ferroni L., Miracapillo C. Radionuclides migration in the far field of geological repositories: a numerical example // Energy Procedia. – 2014. – № 45. – P. 691–700.
7. Experimental simulation of the radionuclide behaviour in the process of creating additional safety barriers in solid radioactive waste repositories containing irradiated graphite / A.O. Pavliuk, S.G. Kotlyarevskiy, E.V. Bepala, E.V. Zaharova, N.I. Rodygina, V.M. Ermolaev, I.M. Proshin, A.G. Volkova // IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering. – 2016. – № 142. – P. 1–7.
8. Shackelford C.D., Moore S.M. Fickian diffusion of radionuclides for engineered containment barriers: Diffusion coefficients, porosities, and complicating issues // Engineering Geology. – 2013. – V. 152. – P. 133–147.
9. Abdel Rahman R.O., Zaki A.A., El-Kamash A.M. Modeling the long-term leaching behavior of ^{137}Cs , ^{60}Co , and $^{152,154}\text{Eu}$ radionuclides from cement-clay matrices // Journal of Hazardous Materials. – 2007. – V. 145. – P. 372–380.
10. Чубреев Д.О., Кузнецов Г.В. Использование глинистых материалов для создания барьера безопасности выводимого из эксплуатации реактора АД // Известия Томского политехнического университета. Инжиниринг георесурсов. – 2016. – Т. 327. – № 2. – С. 83–87.
11. Экспериментальное моделирование поведения радионуклидов при создании дополнительных барьеров безопасности в хранилищах твердых радиоактивных отходов, содержащих облученный графит / А.О. Павлюк, А.М. Измestьев, С.Г. Котляревский, Е.В. Беспала // Вопросы радиационной безопасности. – 2016. – № 1. – С. 64–69.
12. Кудряшов Н.А., Серебрякова И.Е. Математическое моделирование миграции долгоживущих радионуклидов в почве в результате радиоактивных выпадений // Атомная энергия. – 1993. – Т. 74. – С. 243–247.
13. Modeling of irradiated graphite ^{14}C transfer through engineered barriers of a generic geological repository in crystalline rocks / P. Poskas, D. Grigaliuniene, A. Narkuniene, R. Kilda, D. Justinavicius // Science of the Total Environment. – 2016. – V. 569–570. – P. 1126–1135.
14. Van Loon L.R., Mibus J. A modified version of Archie's law to estimate effective diffusion coefficients of radionuclides in argillaceous rocks and its application in safety analysis studies // Applied Geochemistry. – 2015. – V. 59. – P. 85–94.
15. Pacciarini P., Rozza G. Stabilized reduced basis method for parametrized advection-diffusion PDEs // Comput. Methods Appl. Mech. Engrg. – 2014. – V. 274. – P. 1–18.
16. Varatharajan N., DasGupta A. The effect of perturbed advection on a class of solutions of solution of a non-linear reaction-diffusion equation // Applied Mathematics and Computation. – 2016. – V. 290. – P. 33–35.
17. Benedetti I., Taddei V., Vath M. Evolution problems with nonlinear nonlocal boundary conditions // J. Dynam. Differential Equation. – 2013. – V. 25. – № 2. – P. 477–503.
18. Modeling the migration of fallout radionuclides to quantify the contemporary transfer of fine particles in Luvisol profiles under different land uses and farming practices / M. Jagercikova, O. Evrard, J. Balesdent, I. Lefevre, S. Cornu // Soil & Tillage Research. – 2014. – V. 140. – P. 82–97.
19. Hendry M.J., Wassenaar L.I., Kotzer T. Chloride and chlorine isotopes (^{36}Cl and ^{37}Cl) as tracers of solute migration in a thick, clay-rich aquitard system // Water resource research. – 2000. – V. 36. – № 1. – P. 285–296.
20. Crooks V.E., Quigley R.M. Saline leachate migration through clay: a comparative laboratory and field investigation // Can. Geotech. J. – 1984. – V. 21. – P. 349–362.
21. Conceptual and numerical models of solute diffusion around a HLW repository in clay / J. Samper, A. Naves, C. Lu, Y. Li, B. Fritz, A. Clement // Physical and Chemistry of the Earth. – 2011. – V. 36. – P.1714–1720.

Поступила 29.03.2017 г.

Информация об авторах

Павлюк А.О., кандидат физико-математических наук, руководитель группы Научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов».

Котляревский С.Г., ведущий инженер группы Научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов».

Беспала Е.В., кандидат физико-математических наук, инженер-физик группы Научно-исследовательских и опытно-конструкторских работ АО «Опытно-демонстрационный центр вывода из эксплуатации уран-графитовых ядерных реакторов».

Волкова А.Г., кандидат химических наук, научный сотрудник лаборатории экологических проблем обращения с радиоактивными и токсичными отходами Института физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина Российской академии наук.

Захарова Е.В., кандидат химических наук, заведующая лабораторией экологических проблем обращения с радиоактивными и токсичными отходами Института физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина Российской академии наук.

Андрющенко Н.Д., научный сотрудник лаборатории экологических проблем обращения с радиоактивными и токсичными отходами Института физической химии и электрохимии им. А.Н. Фрумкина Российской академии наук.

UDC: 631.438.2; 544.034.24; 532.5–1/-9

MODELLING MIGRATION PROCESS OF LONG-LIVED RADIONUCLIDES FROM GRAPHITE RADIOACTIVE WASTE

Alexander O. Pavlyuk¹,
seversknet@rambler.ru

Sergey G. Kotlyarevskiy¹,
skotkyarevkiy@rambler.ru

Evgeniy V. Bepala¹,
bepala_evgeny@mail.ru

Anna G. Volkova²,
E-mail: anna.agv@yandex.ru

Elena V. Zakharova²,
zevchem@rambler.ru

Nataliya D. Andryushchenko²,
nataliarchem@gmail.com

¹ Pilot and Demonstration Center for Uranium-Graphite Nuclear Reactor Decommissioning,
179a, Avtodoroga 13 street, Seversk, 63600, Russia.

² A.N. Frumkin Institute of Physical chemistry and Electrochemistry RAS,
31, Leninsky avenue, Moscow, 119071, Russia.

The relevance of the discussed issue is caused by the need to identify the properties of engineering clay safety barriers that characterize the reliability of isolation of long-lived radionuclides at the place of disposal of graphite solid radioactive waste.

The main aim of the study is to assess the effect of parameters variation, which characterize protective properties of material, on the dynamics of propagation of long-lived radionuclides ¹⁴C and ³⁶Cl from the repository of graphite radioactive waste.

The methods used in the study: mathematical modeling of the migration process of long-lived radionuclides taking into account diffusion and filtration flows by solving the quasi-one-dimensional nonstationary diffusion equation in the Mathlab software complex.

The results. The authors have developed the mathematical model of migration of long-lived radionuclides from irradiated graphite of uranium-graphite reactors in storage to clay safety barriers that takes into account the filtration movement of moisture and reduction of radionuclide activity due to radioactive decay. It was shown that the diffusion fluxes of radionuclides in natural clays are insignificant and have practically no effect on migration. The most significant factor is the forced convection when moving moisture. As a result, radionuclides are transported through safety barriers to host rocks. It was proved that the clay-containing safety barriers currently used reliably isolate the radionuclide ¹⁴C at the point of conservation or disposal of irradiated nuclear graphite even in the event of their watering. At the same time, the non-intervention level for ³⁶Cl in such a safety barrier is possible only if there are no convective moisture flows for the considered conservative modeling conditions. For a real repository, the condition of non-intervention of the level of interference for ³⁶Cl is determined by significantly lower activity of ³⁶Cl compared to ¹⁴C, and also by multiple dilution of the ³⁶Cl concentration as far as the distance from the source of the final geometry was shown in the article.

Key words:

Radionuclide, radioactive waste storage, irradiated graphite, migration, diffusion.

REFERENCES

1. Prokhorov V.M. *Migratsia radioaktivnykh zagryazneniy v pochvu* [Migration of radioactive pollutions in soil]. Moscow, Energoizdat Publ., 1981. 98 p.
2. Istomin A.D., Korablev S.A., Noskov M.D. Mathematical simulation of radionuclides migration in surface layer of soil. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University*, 2005, vol. 308, no. 3, pp. 74–78. In Rus.
3. Antonenko M.V., Chubreev D.O., Kuznetsov G.V. Simulation of diffusion of radiocarbon from reactor core of decommissioning PUGR AD. *Atomnaya energiya*, 2015, vol. 118, pp. C.63–68. In Rus.
4. Izmetiev A., Pavliuk A., Kotlyarevsky S. Application of void-free filling technology for additional safety barriers creation during uranium-graphite reactors decommissioning. *Advanced Materials Research*, 2015, vol. 1084, pp. 613–619.
5. Bazylev V.V. Migration parameters of radionuclides from burial of solid radioactive waste. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti*, 1997, no. 1, pp. 31–35. In Rus.
6. Ferroni L., Miracapillo C. Radionuclides migration in the far field of geological repositories a numerical example. *Energy Procedia*, 2014, no. 45, pp. 691–700.
7. Pavliuk A.O., Kotlyarevskiy S.G., Bepala E.V., Zakarova E.V., Rodygina N.I., Ermolaev V.M., Proshin I.M., Volkova A.G. Experimental simulation of the radionuclide behaviour in the process of creating additional safety barriers in solid radioactive waste repositories containing irradiated graphite. *IOP Conf. Series: Materials Science and Engineering*, 2016, no. 142, pp. 1–7.
8. Shackelford C.D., Moore S.M. Fickian diffusion of radionuclides for engineered containment barriers: Diffusion coefficients, porosities, and complicating issues. *Engineering Geology*, 2013, vol. 152, pp. 133–147.

9. Abdel Rahman R.O., Zaki A.A., El-Kamash A.M. Modeling the long-term leaching behavior of ^{137}Cs , ^{60}Co , and $^{152,154}\text{Eu}$ radionuclides from cement-clay matrices. *Journal of Hazardous Materials*, 2007, vol. 145, pp. 372–380.
10. Chubreev D.O., Kuznetsov G.V. Using clay materials for developing safety barrier of decommissioning AD reactor. *Bulletin of the Tomsk Polytechnic University. Geo-Assets Engineering*, 2016, vol. 327, no. 2, pp. C. 83–87. In Rus.
11. Pavlyuk A.O., Izmetiev A.M., Kotlyarevskiy S.G., Bepala E.V. Experimental simulation of radionuclide behavior in forming additional safety barriers in solid radioactive waste repositories containing irradiated graphite. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti*, 2016, no. 1, pp. 64–69. In Rus.
12. Kudryashov N.A., Serebryakova I.E. Mathematical simulation of migration of long-lived radionuclides in soil due to radioactive falling. *Atomnaya energiya*, 1993, vol. 74, pp. 243–247. In Rus.
13. Poskas P., Grigaliuniene D., Narkuniene A., Kilda R., Justinavicius D. Modeling of irradiated graphite ^{14}C transfer through engineered barriers of a generic geological repository in crystalline rocks. *Science of the Total Environment*, 2016, vol. 569–570, pp. 1126–1135.
14. Van Loon L.R., Mibus J. A modified version of Archie's law to estimate effective diffusion coefficients of radionuclides in argillaceous rocks and its application in safety analysis studies. *Applied Geochemistry*, 2015, vol. 59, pp. 85–94.
15. Pacciarini P., Rozza G. Stabilized reduced basis method for parameterized advection-diffusion PDEs. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg*, 2014, vol. 274, pp. 1–18.
16. Varatharajan N., DasGupta A. The effect of perturbed advection on a class of solutions of solution of a non-linear reaction-diffusion equation. *Applied Mathematics and Computation*, 2016, vol. 290, pp. 33–35.
17. Benedetti I., Taddei V., Vath M. Evolution problems with nonlinear nonlocal boundary conditions. *J. Dynam. Differential Equation*, 2013, vol. 25, no. 2, pp. 477–503.
18. Jagercikova M., Evrard O., Balesdent J., Lefevre I., Cornu S. Modeling the migration of fallout radionuclides to quantify the contemporary transfer of fine particles in Luvisol profiles under different land uses and farming practices. *Soil & Tillage Research*, 2014, vol. 140, pp. 82–97.
19. Hendry M.J., Wassenaar L.I., Kotzer T. Chloride and chlorine isotopes (^{36}Cl and ^{37}Cl) as tracers of solute migration in a thick, clay-rich aquitard system. *Water resource research*, 2000, vol. 36, no. 1, pp. 285–296.
20. Crooks V.E., Quigley R.M. Saline leachate migration through clay: a comparative laboratory and field investigation. *Can. Geotech. J.*, 1984, vol. 21, pp. 349–362.
21. Samper J., Naves A., Lu C., Li Y., Fritz B., Clement A. Conceptual and numerical models of solute diffusion around a HLW repository in clay. *Physical and Chemistry of the Earth*, 2011, vol. 36, pp. 1714–1720.

Received: 29 March 2017.

Information about the authors

Alexander O. Pavlyuk, Cand. Sc., head of the group, Pilot and Demonstration Center for Uranium-Graphite Nuclear Reactor Decommissioning.

Sergey G. Kotlyarevskiy, chief engineer, Pilot and Demonstration Center for Uranium-Graphite Nuclear Reactor Decommissioning.

Evgeniy V. Bepala, Cand. Sc., physics engineer, Pilot and Demonstration Center for Uranium-Graphite Nuclear Reactor Decommissioning.

Anna G. Volkova, Cand. Sc., researcher, Laboratory researcher, A.N. Frumkin Institute of Physical chemistry and Electrochemistry RAS.

Elena V. Zakharova, Cand. Sc., head of laboratory, A.N. Frumkin Institute of Physical chemistry and Electrochemistry RAS.

Nataliya D. Andryushchenko, laboratory researcher, A.N. Frumkin Institute of Physical chemistry and Electrochemistry RAS.