

УДК 631.438

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ГЛИНИСТЫХ МАТЕРИАЛОВ ДЛЯ СОЗДАНИЯ БАРЬЕРА БЕЗОПАСНОСТИ ВЫВОДИМОГО ИЗ ЭКСПЛУАТАЦИИ РЕАКТОРА АД

Чубреев Дмитрий Олегович,

аспирант Физико-технического института Национального
исследовательского Томского политехнического университета,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30. E-mail: d.chubreev@gmail.com

Кузнецов Гений Владимирович,

доктор физико-математических наук, заведующий кафедрой
теоретической и промышленной теплотехники Энергетического института
Национального исследовательского Томского политехнического университета,
Россия, 634050, г. Томск, пр. Ленина, 30. E-mail: marisha@tpu.ru

Предметом настоящей публикации являются результаты математического моделирования процессов диффузии и фильтрации C^{14} в создаваемом глинистом барьере.

Актуальность работы обусловлена необходимостью создания дополнительных природных барьеров безопасности, обеспечивающих выполнение требований радиационной безопасности, при выводе реакторов из эксплуатации по варианту радиационно-безопасного захоронения на месте.

Цель работы: оценка влияния свойств глинистых пород на долговечность барьера и определение оптимального типа материала для использования в качестве барьерного; показать, что влияние вертикальной диффузии и процесса конвективного переноса радионуклидов в увлажнённом слое грунта водами, фильтрующимися через слой твёрдых отходов, играют определяющую роль в процессе распространения радионуклидов.

Методы исследования: математические расчеты уравнения нестационарной диффузии методом конечных разностей в программном комплексе MatLab.

Результаты. Построена математическая модель оценки миграции радиоуглерода в барьере безопасности выводимого из эксплуатации реактора АД. Определено распределение удельной активности радионуклида по глубине глинистого барьера безопасности, а также наиболее надежный тип глины, который будет сохранять свои гидроизолирующие и барьерные свойства спустя длительный период времени. Показано, что через длительный временной интервал пласты глины будут сохранять свои гидроизолирующие и барьерные свойства, а сооруженный за пределами влияния тектонических разломов пункт захоронения радиоактивных отходов за время своей эксплуатации и консервации не будет разрушен и заполнен водой. Определено, что размещение радиоактивных отходов в геологических формациях с многобарьерной геотехнологической системой защиты – оптимальный по безопасности вариант научно обоснованного и технически доступного решения проблемы удаления радиоактивных отходов.

Ключевые слова:

Вывод из эксплуатации, пункт захоронения радиоактивных отходов, барьеры безопасности, миграция, метод конечных разностей.

Введение

Реактор АД представляет собой одноцелевой проточный промышленный уран-графитовый реактор на тепловых нейтронах, размещенный в глубине горного массива в скальных выработках Ангаро-Канского гидрогеологического массива. Данные породы характеризуются низкой пористостью и проницаемостью. Скорость фильтрации воды находится в диапазоне 0,15–110 м/год [1]. Реактор остановлен 30.06.1992 г. для вывода из эксплуатации по варианту безопасного захоронения на месте.

Согласно ФЗ «Об использовании атомной энергии» при хранении или при захоронении радиоактивных отходов должны быть обеспечены их надежная изоляция от окружающей среды, защита настоящего и будущих поколений, биологических ресурсов от радиационного воздействия сверх установленных норм.

В соответствии с [2] для изоляции радионуклидов от окружающей среды создаются дополнительные барьеры безопасности, которые сооружаются за пределами и в пределах шахты реактора и хра-

нилищ твердых радиоактивных отходов (РАО), находящихся на площадке размещения реактора.

В работе [3] рассмотрен процесс миграции C^{14} в окружающую среду. С целью обоснования пригодности использования глин при выводе из эксплуатации реактора АД ФГУП «ГХК» по варианту захоронения на месте проведено дополнительное исследование влияния свойств глинистых пород, в частности вермикулита вспученного, бентонита камалинского, каолининовой глины и суглинка березовского, на долговечность глинистого барьера безопасности.

Предметом настоящей публикации являются результаты математического моделирования процессов диффузии и фильтрации C^{14} в создаваемом глинистом барьере.

Основными требованиями, предъявляемыми к барьерным материалам, являются: низкая водопроницаемость, высокая сорбционная способность по отношению к радионуклидам, стабильность свойств на протяжении времени, высокая пластичность и достаточная несущая способность.

ИФХЭ РАН проведен комплекс исследований образцов глинистых пород, включающий определение гранулометрического и минералогического состава пород, их химических, водно-физических и сорбционных свойств (табл.) [4].

Таблица. Характеристики глинистых пород

Table. Clay material characteristics

Глинистая порода Clay material		Вермикулит вспученный Vermiculite expanded	Бентонит камалинский Bentonite Samalinsky	Каолинитовая глина Kaolinite clay	Суглинок березовский Loam Berezovsky
Параметры Characteristic					
Содержание фракций частиц породы (%) Fraction content [5, 6]	Гравий gravel	19,5	0,6	–	–
	Песок sand	74,6	30,6	12,7	5,2
	Пыль dust	–	54,7	66,7	90
	Ил silt	–	14,1	20,6	4,8
Коэффициент межфазного распределения, K_d (м ³ /кг) Constant of interface distribution		0,25	0,12	0,0	0,1
Фактор задержки, R Delay factor		600	3200	65	320
Плотность, ρ (кг/м ³) Density		150	1190	880	1310
Средняя влажность, θ (%) Average humidity		71,4	55	58,8	31,8
Коэффициент диффузии, D (м ² /год) Diffusion constant		0,76	$1,58 \cdot 10^{-3}$	$2,75 \cdot 10^{-3}$	$3,16 \cdot 10^{-4}$

Вертикальная диффузия и процесс конвективного переноса радионуклидов в слое грунта, увлажнённого водами, фильтрующимися через слой твёрдых отходов, играют определяющую роль в процессе распространения радионуклидов [4]. За время существования пункта захоронения радиоактивных отходов (ПЗРО) радионуклиды могут проникнуть на значительную глубину, достигая уровня грунтовых вод [7, 8, 9]. Поэтому представляет практический интерес использование математических моделей, позволяющих быстро находить содержание радионуклидов в почве в любой момент времени. Результаты моделирования могут быть в дальнейшем использованы для анализа экологических последствий распространения загрязняющих веществ в окружающей среде.

Задача. Требуется оценить распределение объемной активности радиоуглерода во времени и по глубине глинистого барьера безопасности, а также выявить наиболее подходящий материал для создания барьера безопасности.

Процесс распространения радиоуглерода описывается дифференциальным уравнением нестационарной диффузии при наличии фильтрационного движения влаги:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - v \frac{\partial C}{\partial x} - \lambda C + \varphi, \quad (1)$$

где C – концентрация радионуклида в глине; t – время; x – пространственная координата; D – коэффициент диффузии радионуклида в глине; v – скорость движения радионуклида в глине под действием влаги; λ – постоянная распада радионуклида; φ – функция источника поступления радионуклида в глину.

Функция φ учитывает время t выщелачивания радиоуглерода из графитовой кладки и неравномерность распределения радионуклидов в ней, λC учитывает радиоактивный распад радионуклидов.

Для решения поставленной задачи приняты следующие допущения: слой глины представляет собой пористую однородную среду $0 < x < H$; влага фильтруется с постоянной скоростью; в качестве загрязняющего вещества рассмотрен C^{14} , который не вступает в химическое взаимодействие. Также принято допущение, что процесс выщелачивания C^{14} из графитовой кладки происходит с постоянной скоростью. Численные решения нестационарного уравнения диффузии проводились методом конечных разностей в программном комплексе MatLab [10–12].

Исходные данные:

- толщина глинистого барьера (H) – 6 м;
- скорость движения почвенной влаги (u) –
1) 0,15 м/год;
2) 55 м/год;
3) 110 м/год;
- период полураспада радиоуглерода (T) – 5730 лет;
- скорость поступления радионуклида в глину (φ) – $10^{-5} \dots 10^{-6}$ кг/м²·сут [13];
- начальная концентрация радионуклида на границе барьера (C_0) – $6,8 \cdot 10^{14}$ Бк/кг.

Начальные и граничные условия:

$$t = 0 : C = C_0, \quad 0 \leq x \leq H;$$

$$x = 0 : -D \frac{\partial C}{\partial x} = 0, \quad t > 0;$$

$$x = H : -D \frac{\partial C}{\partial x} = 0, \quad t > 0.$$

Методика решения

На рис. 1 представлена геометрия данной задачи. Для ее решения методом конечных разностей построена конечно-разностная сетка (рис. 2). Определено значение концентрации в i -м узле в момент времени $t = t_n = n\tau$ как $C(x_i, t_n) = C_i^n$, где τ – шаг интегрирования по временной координате, n – номер шага по времени.

В уравнении (1) дифференциальные операторы заменены на их конечно-разностные аналоги и получено уравнение вида

$$\frac{C_i^{n+1} - C_i^n}{\tau} = D \cdot \left(\frac{C_{i+1}^{n+1} - 2C_i^{n+1} + C_{i-1}^{n+1}}{h^2} \right) - v \cdot \left(\frac{C_{i+1}^{n+1} - C_i^{n+1}}{h} \right) - \lambda \cdot \left(\frac{C_{i+1}^{n+1} - C_i^{n+1}}{\tau} \right) + \varphi.$$

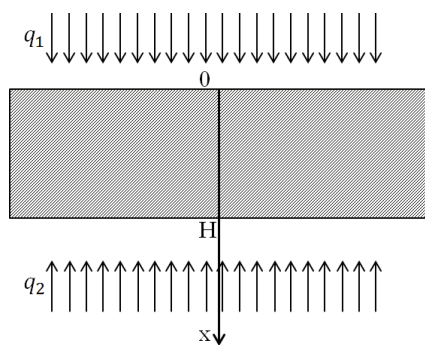


Рис. 1. Геометрия задачи

Fig. 1. Task geometry

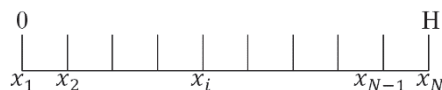


Рис. 2. Конечно-разностная сетка: $x_2, x_3, \dots, x_{N-1}$ – координаты внутренних узлов; x_1, x_N – координаты граничных узлов

Fig. 2. Finite-difference mesh: $x_2, x_3, \dots, x_{N-1}$ – internal node coordinates; x_1, x_N – boundary node coordinates

Проведена дискретизация граничных условий II рода с погрешностью $O(h^2)$. После ряда математических преобразований получены выражения для определения удельной активности радионуклида в первом и последнем узлах [14, 15]:

$$C_1^{n+1} = \frac{2D\tau}{2D\tau - h^2} \cdot C_2^{n+1} + \frac{h(1 - \lambda\tau)}{2D\tau - h^2} \cdot C_1^n + \frac{h^2\varphi\tau}{2D\tau - h^2}; \quad (2)$$

$$C_N^{n+1} = \frac{hC_N^n(2D\alpha_{N-1} + h(1 - \lambda)) + 2D\tau\beta_{N-1} - h^2\varphi}{2D + h^2}. \quad (3)$$

Для определения средней линейной скорости движения радиоуглерода под действием влаги использовано выражение $v = \frac{\theta u}{K_d \rho}$ [16, 17].

Результаты и обсуждение

Ранее [3] было установлено, что только в первые 1100 лет после создания барьеров безопасности возможно превышение уровня вмешательства удельной концентрации радиоуглерода на выходе из графитовой кладки. В связи с этим для данного периода времени и четырех типов глинистых пород построена зависимость удельной концентрации радиоуглерода на выходе из глинистого барьера безопасности.

На рис. 3 видно, что лучшими глинистыми породами на пути миграции радионуклида являются бентонит камалинский (3) и вермикулит вспученный (4). Для данных пород проведен анализ влияния сильных осадков на барьерную способность.

На рис. 4 приведено распределение удельной концентрации C^{14} по толщине глинистого барьера для скорости фильтрации влаги.

На рис. 4 видно, что для бентонита камалинского, при интенсивном увлажнении, например в

сезоны дождей, концентрация радиоуглерода по толщине барьера практически не меняется в отличие от вермикулита вспученного. Это обусловлено сильным отличием диффузионных свойств пород [18]. Кроме того, на величину водопроницаемости в сильной степени влияет пористость глинистой породы. Со временем происходит постепенное уплотнение и заиливание порового пространства [19, 20].

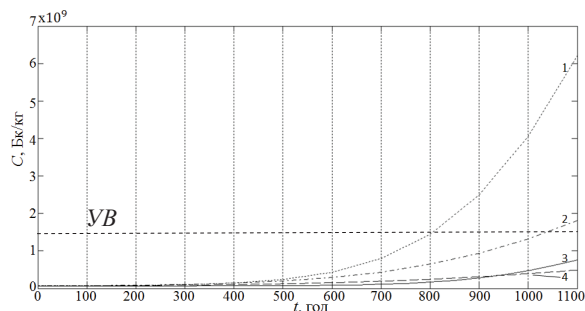


Рис. 3. Удельная концентрация C^{14} на выходе из глинистого барьера: 1 – суглинок березовский, 2 – каолинистая глина, 3 – бентонит камалинский, 4 – вермикулит вспученный

Fig. 3. C^{14} specific concentration on the going out of clayey barrier: Berezovsky loam (1), kaolinite clay (2), Camalinsky bentonite (3), expanded vermiculite (4)

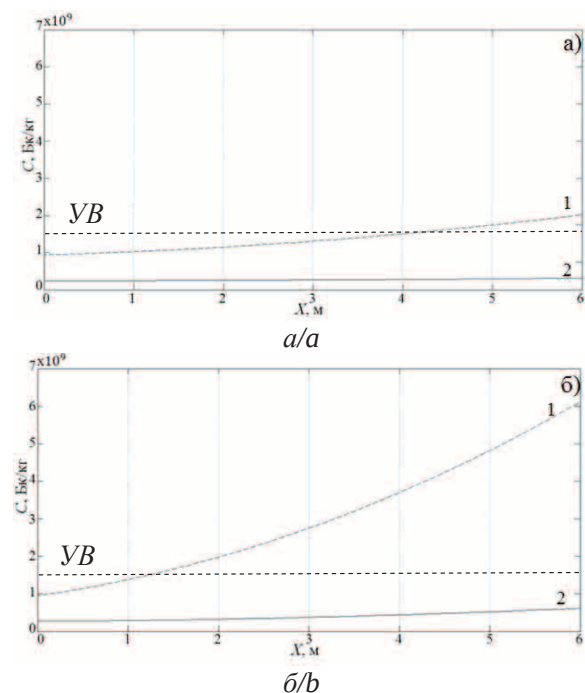


Рис. 4. Удельная концентрация C^{14} по толщине барьера: а – 55 м/год; б – 110 м/год; 1 – вермикулит вспученный; 2 – бентонит камалинский

Fig. 4. C^{14} specific concentration along the barrier thickness: а) 55 m/year; б) 110 m/year; expanded vermiculite (1), Camalinsky bentonite (2)

Бентонит камалинский и вермикулит вспученный пригодны для использования в качестве материалов для создаваемых барьеров безопасности.

В течение периода времени 1100 лет рассматриваемые материалы не допустят выхода радиоуглерода за пределы ПЗРО, кроме ситуаций, связанных с интенсивным выпадением осадков. В случае обильных осадков противифльтрационные и противомиграционные свойства вермикулита заметно уступают бентониту.

Заключение

Данная модель миграции использована для оценки диффузии и фильтрации радионуклида в барьере безопасности выводимого из эксплуатации реактора АД.

Размещение в геологических формациях с многобарьерной геотехнологической системой защиты – оптимальный по безопасности вариант

научно обоснованного и технически доступного решения проблемы удаления радиоактивных отходов.

Пункт захоронения радиоактивных отходов является сложной многоуровневой геотехнологической системой, основное назначение которой – сохранить стабильность первоначальных условий изоляции радионуклидов в пространственно ограниченном объеме недр в течение заданного интервала времени.

Наиболее вероятно, что и через 500 лет пласты глины будут сохранять свои гидроизолирующие и барьерные свойства, а сооруженный за пределами влияния тектонических разломов ПЗРО за время своей эксплуатации и консервации не будет разрушен и заполнен водой.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Сбор и систематизация имеющихся сведений о природных и техногенных условиях горного массива, вмещающего основные сооружения ФГУП «ГХК» для обоснования безопасности долговременной изоляции ОЯТ и/или РАО в подземных сооружениях комбината. – Железногорск: ЗАО «Геоспецэкология», 2008. – 95 с.
2. Антоненко М.В., Чубреев Д.О., Кузнецов Г.В. Моделирование процесса диффузии радиоуглерода из активной зоны выводимого из эксплуатации ПУГР АД // Атомная энергия. – 2015. – Т. 118. – С. 63–68.
3. Захарова Е.В., Горбунова О.А., Волкова А.Г. Отчет «Определение сорбционных характеристик образцов глинистых пород». – М.: ИФХЭ РАН, 2013. – 76 с.
4. Прохоров В.М. Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. – М.: Энергоиздат, 1981. – 98 с.
5. Савоненков В.Г., Андерсон Е.Б., Шабалев С.И. Глины как геологическая среда для изоляции радиоактивных отходов. – СПб.: ИД «Инфо Ол», 2012. – 215 с.
6. Lab scale experiments for permeable reactive barriers against contaminated groundwater with ammonium and heavy metals / J. Park, S. Lee, J. Lee, C. Lee // Journal of Hazardous Materials. – 2012. – V. 95. – P. 65–79.
7. Smith G.E. Fractionation of Actinide Elements in Sediments via an Optimized Protocol for Sequential Chemical Extractions. Florida: Florida state University, 1998. – 115 p.
8. Bowman R.S. Applications of surfactant-modified zeolites to environmental remediation // Microporous Mesoporous. – 2014. – V. 61. – P. 43–56.
9. Germanskaia A.A. Natural Background Radioactive Carbon and the Natural Death Rate of People // Rejuvenation Research. – 2006. – V. 9. – P. 302–308.
10. Воробьева Л.А. Химический анализ почв. – М.: Изд-во МГУ, 1998. – 272 с.
11. Шарафутдинов Р.Б. Моделирование диффузии радионуклидов из приповерхностных хранилищ жидких РАО // Ядерная и радиационная безопасность. – 2008. – № 1. – С. 18–25.
12. Шейн Е.В. Курс физики почв. – М.: Изд-во МГУ, 2005. – 432 с.
13. Миронов В.П. Обращение с радиоактивными отходами. – Минск: МГЭУ им. А.Д. Сахарова, 2009. – 172 с.
14. Лыков А.В. Тепломассообмен. – М.: Энергия, 1978. – 479 p.
15. Tesser A., Campbell P.G.C., Bisson M. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals // Analytical Chemistry. – 1979. – V. 51. – P. 844–851.
16. Базылев В.В. Параметры миграции радионуклидов из грунтовых могильников твердых радиоактивных отходов // Вопросы радиационной безопасности. – 1997. – № 1. – С. 31–35.
17. 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.
18. Соколова Т.А., Дронова Т.Я., Толпешта И.И. Глинистые минералы в почвах. – Тула: Гриф и К, 2005. – 336 с.
19. Орлов Д.С. Химия почв. – М.: Изд-во МГУ, 1992. – 400 с.
20. Содержание трансурановых элементов в почвах и донных отложениях / Ф.И. Павлоцкая, Т.И. Гряченкова, И.Е. Казинская, В.В. Ткачев, Б.Ф. Мясоедов // Радиохимия. – 2003. – Т. 45. – № 5. – С. 471–478.

Поступила 01.12.2015 г.

UDK 631.438

USING CLAY MATERIALS FOR DEVELOPING SAFETY BARRIER OF DECOMMISSIONING AD REACTOR

Dmitry O. Chubreev,

Tomsk Polytechnic University,

30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia. E-mail: d.chubreev@gmail.com

Geny V. Kuznetsov,

Tomsk Polytechnic University,

30, Lenin avenue, Tomsk, 634050, Russia. E-mail: marisha@tpu.ru

The relevance of the research is caused by the necessity of developing the additional safety barriers providing implementation of radiation safety requirements in the time of reactor decommissioning by the method of burial site.

The aim of the research is to evaluate the impact of clay materials properties on barrier durability and to determine the optimum type of material for applying as a barrier; to show that the effect of the vertical diffusion and convective transport of radionuclides in the soil moistened layer with water, filtered through a bed of solid wastes, play a decisive role in distribution of radionuclides. The results of mathematical modeling of diffusion and filtration of radiocarbon in the generated clay barrier are the subject of the paper.

Methods: unsteady-state diffusion math equation by finite difference method in MatLab software package.

Results. The authors have developed the mathematical model for estimating radiocarbon migration in the decommissioning reactor AD safety barrier and defined the most reliable clay type as well as the radionuclide specific activity distribution in clay safety barrier thickness. It is shown that in a long time interval the clay layers will maintain their waterproofing and barrier properties, and the burial site of radioactive wastes, built outside the influence of tectonic faults, won't be destroyed and filled with water during its operation and conservation. It was determined that the placement of a radioactive waste in geological formations with a multi-barrier geotechnological protection system is the optimum security option of scientifically sound and commercially available solution to the problem of radioactive waste disposal.

Key words:

Decommissioning, disposal of radioactive waste, safety barrier, migration, finite difference method.

REFERENCES

1. *Sbor i sistematizatsiya imeyushchihisya svedeniy o prirodnnykh i tekhnogennykh usloviyakh gornogo massiva, vmeshchayshuchego osnovnye sooruzheniya GHK dly obosnovaniya bezopasnosti dolgovremennoy izolatsii OYAT v podzemnykh sooryzeniyakh* [Collection and systematization of information on natural and man-made conditions of the rock mass, enclosing the main structures of the FSUE «MCC» to substantiate the safety of long-term isolation of spent nuclear fuel and/or radioactive waste in underground constructions plant]. Zheleznogorsk, Geospetsekiologiya Publ., 2008. 95 p.
2. Antonenko M.V., Chubreev D.O., Kuznetsov G.V. Modelirovanie protsessov diffuzii radioiugleroda iz aktivnoy zony vyvodimogo iz ekspluatatsii PUGR AD [Modelling of radiocarbon diffusion from the core of decommissioned PUGR AD]. *Atomic Energy*, 2015, vol. 118, pp. 63–68.
3. Zakharova E.V., Gorbunova O.A., Volkova A.G. *Opreделение sorbtionnykh kharakteristik obraztsov glinistykh porod* [Determination of sorption characteristics of samples of argillaceous rocks]. Moscow, IFHE RAN Press, 2013. 76 p.
4. Prokhorov V.M. *Migratsiya radioaktivnykh zagryazneniy v pochvakh* [Migration of radioactive contaminants in soils]. Moscow, Energoizdat Publ., 1981. 98 p.
5. Savonenkov V.G., Anderson E.B., Shabalev S.I. *Gliny kak geologicheskaya sreda dlya izolatsii radioaktivnykh otkhodov* [Clay as a geological environment for radioactive waste disposal]. Saint-Petersburg, Info Ol Publ. House, 2012. 215 p.
6. Park J., Lee S., Lee J., Lee C. Lab scale experiments for permeable reactive barriers against contaminated groundwater with ammonium and heavy metals. *Journal of Hazardous Materials*, 2012, vol. 95, pp. 65–79.
7. Smith G.E. *Fractionation of Actinide Elements in Sediments via an Optimized Protocol for Sequential Chemical Extractions*. Florida, Florida state University, 1998. 115 p.
8. Bowman R.S. Applications of surfactant-modified zeolites to environmental remediation. *Microporous Mesoporous*, 2014, vol. 61, pp. 43–56.
9. Germanskaia A.A. Natural Background Radioactive Carbon and the Natural Death Rate of People. *Rejuvenation Research*, 2006, vol. 9, pp. 302–308.
10. Vorobeva L.A. *Khimichesky analiz pochv* [Chemical analysis of soil]. Moscow, MSU Press, 1998. 272 p.
11. Sharafutdinov R.B. Modelirovanie diffuzii radionuklidov iz pripo-verhnostnykh khranilishch zhidkikh RAO [Modelling of radionuclides diffusion from the near-surface storage facilities for liquid radioactive waste]. *Nuclear and Radiation Safety*, 2008, no. 1, pp. 18–25.
12. Shein E.V. *Kurs fiziki pochv* [The course of soil physics]. Moscow, MSU Press, 2005. 432 p.
13. Mironov V.P. *Obrashchenie s radioaktivnymi otkhodami* [Radioactive waste handling]. Minsk, MSEU im. A.D. Saharova Press, 2009. 172 p.
14. Lykov A.V. *Teplomassoobmen* [Heat and Mass Transfer]. Moscow, Energiya Publ., 1978. 479 p.
15. Tesser A., Campbell P.G.C., Bisson M. Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals. *Analytic Chemical*, 1979, vol. 51, pp. 844–851.
16. Bazylev V.V. Parametry migratsii radionuklidov iz gruntovykh mogilnikov tverdykh radioaktivnykh otkhodov [Migration of radionuclides from groundwater burial of solid radioactive waste]. *Radiation Safety Issues*, 1997, no. 1, pp. 31–35.
17. Kudryashov N.A., Serebryakova I.E. Matematicheskoe modelirovanie migratsii dolgozhivushchikh radionuklidov v pochve v rezultate radioaktivnykh vypadeniy [Mathematical modeling of migration of long-lived radionuclides in soil as a result of radioactive fallout]. *Atomic energy*, 1993, vol. 74, pp. 243–247.
18. Sokolova T.A., Dronova T.Ya., Tolpeshta I.I. *Glinistye materialy v poshvakh* [Clay minerals in soils]. Tula, Grif I K Publ., 2005. 336 p.
19. Orlov D.S. *Khimiya Pochv* [Soil Chemistry]. Moscow, MSU Press, 1992. 400 p.
20. Pavlockaya F.I., Gryachenkova T.I., Kazinskaya I.E., Tkachev V.V., Myasoedov B.F. Soderzhanie transuranovykh elementov v pochvakh i donnykh otlozheniyakh [The content of transuranic elements in soils and sediments]. *Radiochemistry*, 2003, vol. 45, no. 5, pp. 471–478.

Received: 1 December 2015.