

УДК (620.267 : 621.039.7) : 001.891.3

## **Исследование диффузионного переноса долгоживущих радионуклидов в инженерных барьерах объектов долговременного хранения отработавшего ядерного топлива и захоронения радиоактивных отходов**

**П.В. Амосов<sup>1,2</sup>, А.В. Наумов<sup>1,3</sup>, Н.В. Новожилова<sup>1</sup>**

<sup>1</sup> Горный институт Кольского научного центра РАН, Апатиты

<sup>2</sup> Физико-энергетический факультет Кольского филиала ПетрГУ, кафедра теплофизики

<sup>3</sup> Горный факультет Кольского филиала ПетрГУ, кафедра прикладной механики и инженерной графики

**Аннотация.** Изучен диффузионный перенос долгоживущих радионуклидов в инженерных барьерах подземного объекта долговременного хранения ОЯТ и захоронения РАО. Рассмотрены две схемы барьеров: постоянная толщина нарушенной зоны массива и постоянная толщина ближней зоны. В качестве материалов инженерных барьеров рассматривались бетон и бентонит. Обоснован выбор принятых к рассмотрению радионуклидов, их миграционные параметры в рассматриваемых средах, временной период исследования и параметры подземного объекта. В качестве сценария эволюции подземного объекта хранения/захоронения радиационно-опасных материалов принят сценарий нормальной эволюции, предполагающий считать в ближней зоне объекта доминирующим механизмом переноса диффузию. Математическим аппаратом предложенных моделей выбран алгоритм численного решения диффузионного уравнения с учетом механизма радиоактивного распада с помощью компьютерного кода PORFLOW. В результате проведенных расчетов получены пространственные распределения концентраций анализируемых радионуклидов по толщине системы барьеров, а также динамика концентрации мигрирующих изотопов на выходе из ближней зоны подземного объекта. Анализ результатов позволил, во-первых, определить максимальную концентрацию радионуклидов вблизи границы раздела "нарушенная зона массива – вмещающая формация", необходимую для выполнения оценок экологической безопасности объекта, и, во-вторых, показать "в цифре" влияние толщины бетона и бентонита на снижение концентрации радионуклидов.

**Abstract.** The diffusion transfer of long-lived radionuclides in engineered barriers of an underground spent fuel and radioactive waste disposal facility has been studied. Two schemes of barriers have been considered: the constant thickness of the excavation disturbed zone of a rock mass and the constant thickness of the near-field zone. Concrete and bentonite are considered as materials to be used in engineered barriers' construction. The choice of nuclides, the parameters for their migration in the studied media, the time period of investigation and the underground facility parameters has been substantiated for consideration. The scenario of normal evolution is taken as a scenario of evolution of an underground radiation-hazardous materials disposal facility. According to this scenario, diffusion is considered to be the transfer mechanism dominating in the near-field zone of the facility. Using the PORFLOW code, an algorithm of numerical solution of a diffusion equation have been chosen as an mathematical apparatus of the models proposed, taking the mechanism of radioactive decay into account. As a result, the spatial distributions of radionuclide concentrations through the thickness of the barrier system as well as the migrating isotopes' concentration dynamics in the near-zone of the underground facility have been calculated. The results analysis has enabled, firstly, to estimate the maximum radionuclide concentration in the conjugate zone between the "excavation disturbed zone" and "host geological formation", and, secondly, to show "in digits" the decrease in the radionuclide concentration due to the concrete and bentonite thickness.

### **1. Введение**

В рамках методологии оценки безопасности объектов захоронения радиоактивных отходов (РАО) и долговременного хранения отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) имеет место задача определения максимальных значений концентрации радионуклидов на границе раздела ближнего и дальнего полей указанных объектов. При решении такой задачи решаются уравнения переноса (различной полноты) радионуклидов в ближнем поле. Максимальные расчетные значения концентрации радионуклидов могут быть использованы в задаче экологической безопасности объектов.

При изучении миграции радионуклидов в защитных инженерных барьерах радиационно-опасных подземных объектов и определении максимальных концентраций на границе ближнего и дальнего полей имеются определенные основания рассматривать единый объект хранения/захоронения радиоактивных материалов. В частности, согласно предложенным Горным институтом КНЦ РАН концепциям долговременного подземного хранения/захоронения проблемных видов регионального ОЯТ и окончательного захоронения РАО в геологических формациях (Мельников и др., 2005; 2003а; 2003б; 2001) рассматриваются варианты размещения обозначенных подземных объектов на территории единой площадки на глубинах порядка 100 м от поверхности. В качестве материалов инженерных барьеров для таких сооружений рассматриваются железобетон, песок, гравий, бетон и бентонит. В ходе выполнения описываемых исследований внимание авторов уделено бетону и бентониту. Поскольку в настоящее время предложенные варианты проектов носят концептуальный характер, то толщина указанных материалов в ходе проведения численных экспериментов варьировалась. Выполненное исследование преследовало две цели. Во-первых, для выполнения в дальнейшем оценок экологической безопасности объекта необходимо получить максимальную концентрацию радионуклидов вблизи границы раздела "нарушенная зона массива (НЗМ) – вмещающая формация". Во-вторых, показать "в цифре" влияние толщины бетона и бентонита на снижение концентрации радионуклидов.

## 2. Концептуальная и математическая модели

Рассматриваемые радионуклиды. В задачах оценки безопасности объектов захоронения РАО и долговременного хранения ОЯТ в первую очередь рассматриваются долгоживущие радионуклиды, а также радиоактивные изотопы, имеющие максимальные активности с потенциально высокой радиологической опасностью. На предыдущих этапах исследований миграции радионуклидов во вмещающем массиве с использованием освоенных на соответствующие моменты времени методологий и программных продуктов (Мельников и др., 2003а; 2003б; 2001) рассматривались следующие радиоактивные изотопы:

- для могильника РАО –  $^{14}\text{C}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ;
- для хранилища ОЯТ –  $^{235}\text{U}$ ,  $^{265}\text{U}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{237}\text{Np}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{107}\text{Pd}$ ;
- для временного хранилища ОЯТ, которое, согласно принятому сценарию, после пожара и взрыва переводилось в статус объекта окончательного неконтролируемого захоронения, –  $^{129}\text{I}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^3\text{H}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ .

По результатам исследований миграции обозначенных выше радионуклидов во вмещающем массиве было показано, что особое внимание следует уделить следующим радионуклидам:  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{79}\text{Se}$ .

В рамках поставленной задачи в этот список добавлены  $^{94}\text{Nb}$ , как радионуклид, который ранее нами не изучался, и для которого коэффициенты распределения в различных материалах достаточно низкие, а также два изотопа плутония –  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{240}\text{Pu}$ , как представители сильно сорбирующихся, но долгоживущих радионуклидов.

Временной диапазон исследования миграции радионуклидов. В своих предыдущих исследованиях по проблеме долговременного хранения и захоронения ядерных материалов авторы рассматривали временной диапазон от 10 000 до 1 млн лет. Как указывалось ранее в работе (Мельников и др., 2001), временные рамки исследования безопасности хранилищ РАО и ОЯТ в ряде стран (Швейцария, Канада) определены в 10 000 лет. В других странах (Швеция, Финляндия, Великобритания и Испания) нет строгого ограничения временного диапазона для аналогичных исследований. В действующем с марта 2001 г. российском документе (*Оценка безопасности...*, 2002) временной интервал выбирается из условия установления равновесия всех значимых физико-химических процессов, влияющих на безопасность хранилища. При наличии долгоживущей активности, которая может постепенно расти со временем (например,  $^{237}\text{Np}$ ), когда "пиковые" концентрации радионуклидов могут достигать своих максимальных значений за существенно более длительные сроки, можно вести речь о временах более 10 тыс. лет.

Принимая серьезность аргумента оппонентов, что рассмотрение отдаленных сроков может привести к весьма заметным ошибкам в силу возрастающих неопределенностей как при выборе миграционных параметров, так и в силу изменяющихся климатических и геологических условий на Земле, а также по причине непредсказуемости человеческой деятельности, временной диапазон исследований расширен до компромиссного значения: 50 тыс. лет. Основания для увеличения временного срока для условий принятой математической модели подземного объекта долговременного хранения и захоронения радиационно-опасных материалов следующие:

- принята во внимание позиция надзорных и регламентирующих органов России, а также указанных выше европейских стран (в частности, скандинавских);
- целостность подземного хранилища высокоактивных и долгоживущих отходов, согласно концепции многобарьерной системы изоляции с инженерными и природными барьерами, обеспечивается в течение длительного периода времени –  $10^4$ - $10^5$  лет (Шульга, 2005);

- предварительные численные эксперименты показали, что на время  $10^4$  лет для большинства рассматриваемых радионуклидов все еще наблюдается рост концентрации растворенной активности на границе раздела ближнего и дальнего поля объекта, т.е. значение концентрации на  $10^4$  лет было бы в дальнейших оценках экологической безопасности объекта недооцененным.

Геометрические параметры модели и начальные активности. Основываясь на предыдущих исследованиях (Мельников и др., 2003а; 2003б; 2001), для конкретизации расчетов были выбраны следующие параметры выработок, предназначенных для размещения рассматриваемых радиационно-опасных материалов. Поперечный размер выработки принят одинаковым как для РАО, так и для ОЯТ – (ширина и высота)  $10 \times 10$  м. Поскольку все дальнейшие расчеты выполнены в плоской постановке, то длина выработки необходима только с точки зрения расчета активности, приходящейся на 1 м ее длины. Поэтому указанный параметр соответствует размеру выработки соответствующего вида радиационно-опасных материалов:

- длина 52 м для объекта с ОЯТ ( $^{99}\text{Tc}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ );
- 90 и 120 м для объекта с РАО (высокоактивными твердыми РАО ( $^{59}\text{Ni}$ ) и эксплуатационными РАО среднего уровня активности ( $^{94}\text{Nb}$ ) Кольской АЭС, соответственно).

Для всех рассматриваемых радионуклидов начальная активность соответствует данным работы (Мельников и др., 2001).

Схематический вид модели для исследования миграции радионуклидов в инженерных барьерах представлен на рис. 1а и 1б. Вследствие симметрии расчетная область составляет лишь одну четвертую часть от общей площади поперечного сечения выработки, содержащей как зону отходов, так и материалы инженерных барьеров. Размеры расчетной области для принятых к рассмотрению моделей указаны на рис. 1а и 1б. В модели рассматриваются три зоны материалов: зона отходов (по предположению, гомогенных), инженерные барьеры (материал на основе цемента, например, цементный раствор (барьер 1) и бентонит (барьер 2)), и НЗМ.

Сценарий эволюции объекта и "инструмент" исследования. Граничные условия для концентрации растворенной примеси, соответствующие сценарию нормальной эволюции хранилища, следующие: на внешних границах области – нулевое значение, а на внутренних границах области – нулевое значение потока. Использование таких граничных условий обусловлено предположением наличия трещин во вмещающем массиве, что приводит к относительно быстрому перемещению радионуклидов, покидающих ближнее поле. Как и в работе (Предварительная оценка..., 2000), предполагается, что перенос радионуклидов в грунтовые воды происходит без сопротивления на внешней границе нарушенной зоны. На данном этапе исследований было принято решение ограничиться только диффузионным механизмом переноса радионуклидов в инженерных барьерах.

На внешней границе нарушенной зоны отслеживаются потоки радионуклидов, а значения концентрации в поровой воде фиксируются в одном из узлов, расположенном наиболее близко к внешней границе и вблизи границы нулевого потока.

Численные эксперименты в рамках сценария нормальной эволюции при доминирующей роли диффузионного переноса выполнялись с помощью программного кода PORFLOW (PORFLOW..., 1997). Указанный программный продукт разработан в лаборатории аналитических и вычислительных исследований (ACRi, США) и предназначен для моделирования течения многофазных потоков, процессов тепло- и массопереноса в пористых средах с различной степенью насыщения. Код предназначен для решения одно-, двух- и трехмерных задач. В рамках принятого сценария нормальной эволюции хранилища управляющее уравнение, описывающее нестационарный диффузионный перенос растворенной активности  $C$  в декартовой системе координат, в двухмерной постановке имеет стандартный вид:

$$\partial C / \partial t = \partial / \partial x (D_a \partial C / \partial x) + \partial / \partial y (D_a \partial C / \partial y) - \lambda C,$$

где  $D_a$  – наблюдаемый коэффициент диффузии,  $\text{м}^2/\text{с}$  (Мельников и др., 2001),  $\lambda$  – постоянная распада.

При выполнении расчетов постулировалось, что толщина барьеров 1 и 2 в сумме не превышает 1.5 м. В табл. 1 приведены толщины барьеров, используемых в расчетах. Принципиальное отличие схемы рис. 1а от схемы рис. 1б состоит в следующем:

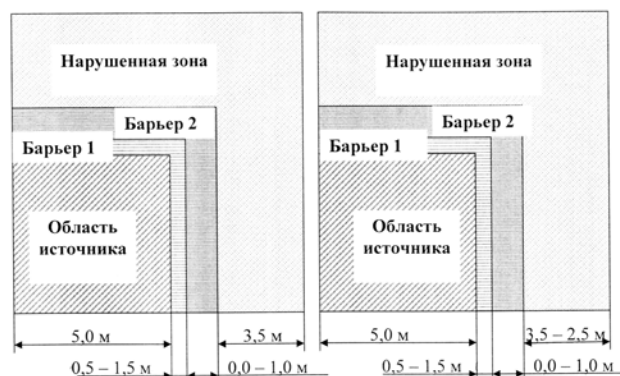


Рис. 1. Схематическое изображение моделируемой области  
(а – постоянная толщина НЗМ;  
б – постоянная толщина ближней зоны)

Таблица 1. Толщины барьера 1 и барьера 2 в первой серии численных экспериментов

№	Толщина барьера 1 $L_1$ , м	Толщина барьера 2 $L_2$ , м				
		0.00	0.25	0.50	0.75	1.00
1	0.50	0.00	0.25	0.50	0.75	1.00
2	0.75	0.00	0.25	0.50	0.75	
3	1.00	0.00	0.25	0.50		
4	1.25	0.00	0.25			
5	1.50	0.00				

- на схеме рис. 1а выдерживается постоянной толщина НЗМ, поэтому увеличение толщины барьера 2 при постоянной толщине барьера 1 приводит к росту размера всей исследуемой области;
- на схеме рис. 1б выдерживается постоянной толщина ближней зоны, т.е. увеличение толщины барьера 2 при постоянной толщине барьера 1 приводит к уменьшению толщины НЗМ.

В рамках принятой схемы были проведены две серии расчетов:

серия А: барьер 1 – бетон, а барьер 2 – бентонит;

серия Б: барьер 1 – бентонит, а барьер 2 – бетон.

Обобщение миграционных характеристик радионуклидов (коэффициенты распределения и пределы растворимости) во вмещающем массиве было выполнено авторами ранее (Амосов и др., 2004). Дополнительно для обоснования коэффициентов распределения радионуклидов в выбранных инженерных барьерах были проанализированы соответствующие данные финских, шведских и швейцарских отчетов, представленных в библиографии работ (Мельников и др., 2003а; 2001). Кроме того, использованы результаты японских специалистов по выбору коэффициентов распределения радионуклидов в буферных материалах (*H-12: Project...*, <http://www.jnc.go.jp/kaihatu/tisou/zh12>). На основе анализа имеющейся информации по коэффициентам распределения радионуклидов в материалах на цементной основе и в бентонитах в качестве исходных данных по миграционным характеристикам радионуклидов в материалах инженерных барьеров выбраны параметры, представленные в табл. 2.

Таблица 2. Рекомендуемые коэффициенты распределения  $K_d$  некоторых радионуклидов в материалах инженерных барьеров, м<sup>3</sup>/кг

Элемент	Se	Nb	Tc	Ni	I	Pu
Бетон	0.0003	0.053	0.5	0.123	0.064	4.3
Бентонит	0	0.2	0.1	0.5	0	10

### 3. Обсуждение результатов численных экспериментов

По результатам расчетов были построены кривые пространственного распределения всех выбранных радионуклидов на обоснованное выше расчетное время для обеих серий А и Б. Построенные кривые позволили достаточно отчетливо проследить влияние наблюдаемого коэффициента диффузии радионуклидов в различных материалах на основные интересующие нас параметры: влияние бетона и бентонита на поведение кривых пространственного распределения и величину концентрации радионуклидов вблизи границы раздела ближнего поля и дальнего поля. Вместе с тем анализ результатов выполненных расчетов показал, что для ряда радионуклидов максимальное значение концентрации не может быть принято на основании только пространственного распределения. Поэтому для всех изучаемых радионуклидов были также построены кривые, описывающие динамику концентрации изотопов вблизи границы раздела ближнего поля и дальнего поля.

Ввиду ограниченного объема статьи приводим только часть проанализированных кривых для двух изотопов – <sup>129</sup>I и <sup>59</sup>Ni. Основанием такого выбора послужил анализ наблюдаемых коэффициентов диффузии радионуклидов в материалах инженерных барьеров (табл. 3). Обращает на себя внимание тот факт, что для всех анализируемых радионуклидов наблюдаемый коэффициент диффузии в бентоните ( $D_{bent}$ ) превышает этот же параметр в бетоне ( $D_{conc}$ ). Причем отношение  $D_{bent}/D_{conc}$  изменяется в весьма широком диапазоне: от ~ 4000 для <sup>129</sup>I до 2.1 для изотопа <sup>94</sup>Nb.

Пример пространственного распределения концентрации изотопа <sup>129</sup>I через 50 тыс. лет при толщине 1-го барьера 0.50 м (серия А и серия Б) для схемы рис. 1а представлен на рис. 2. Аналогичное распределение для схемы рис. 1б представлено на рис. 3.

Таблица 3. Наблюдаемые коэффициенты диффузии долгоживущих радионуклидов в материалах инженерных барьеров

Барьеры	Наблюдаемые коэффициенты диффузии, м <sup>2</sup> /с					
	<sup>129</sup> I	<sup>99</sup> Tc	<sup>79</sup> Se	<sup>239</sup> Pu	<sup>59</sup> Ni	<sup>94</sup> Nb
Нарушенная зона	$1.00 \cdot 10^{-10}$	$3.17 \cdot 10^{-14}$	$3.08 \cdot 10^{-12}$	$3.17 \cdot 10^{-15}$	$1.59 \cdot 10^{-14}$	$7.93 \cdot 10^{-14}$
Бентонит	$3.40 \cdot 10^{-10}$	$6.41 \cdot 10^{-13}$	$3.40 \cdot 10^{-10}$	$6.42 \cdot 10^{-15}$	$1.28 \cdot 10^{-13}$	$3.21 \cdot 10^{-13}$
Бетон	$8.49 \cdot 10^{-14}$	$1.09 \cdot 10^{-14}$	$1.69 \cdot 10^{-11}$	$1.26 \cdot 10^{-15}$	$4.42 \cdot 10^{-14}$	$1.5 \cdot 10^{-13}$

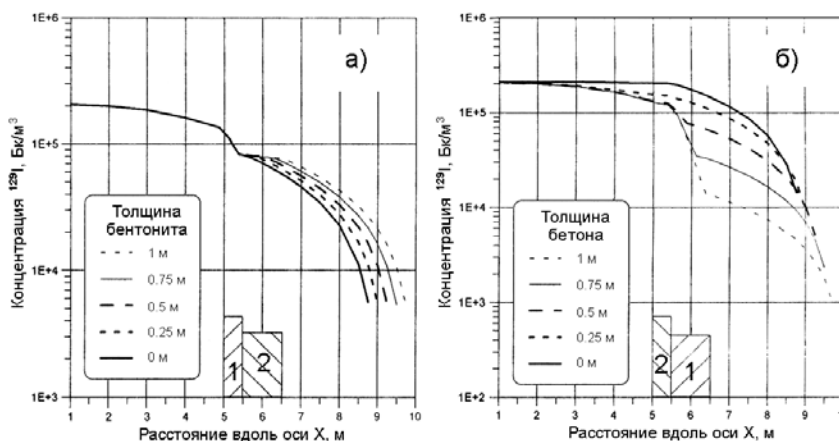


Рис. 2. Пространственное распределение концентрации <sup>129</sup>I в схеме постоянной толщины НЗМ через 50 тыс. лет при толщине первого барьера 0.50 м (а – серия А и б – серия Б; 1 – слой бетона, 2 – слой бетонита).

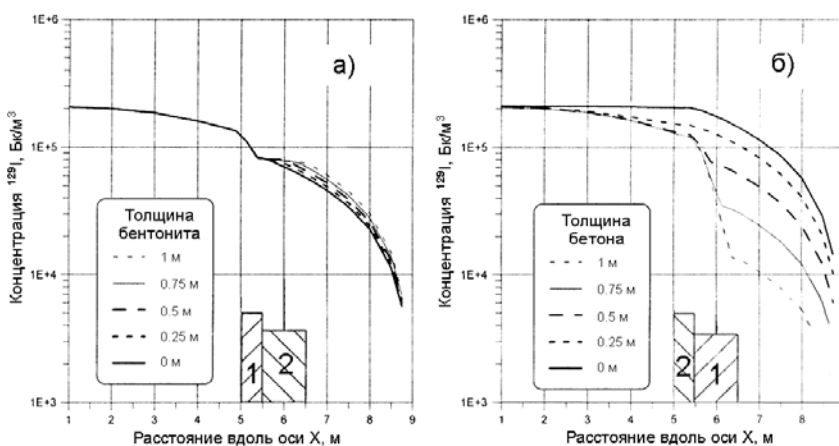


Рис. 3. Пространственное распределение концентрации <sup>129</sup>I в схеме постоянной толщины ближнего поля через 50 тысяч лет при толщине первого барьера 0.50 м (а – серия А и б – серия Б; 1 – слой бетона, 2 – слой бетонита).

Таблица 4. Коэффициенты снижения концентрации материалами защитных барьеров

Материал барьера	Радио-нуклид	Толщина защитного барьера, м		
		0.5	1.0	1.5
Бетон	<sup>129</sup> I	2.59	14.18	1.37·10 <sup>2</sup>
	<sup>94</sup> Nb	2.78	9.95	55.93
	<sup>59</sup> Ni	21.99	5.05·10 <sup>2</sup>	2.48·10 <sup>4</sup>
	<sup>239</sup> Pu	3.14·10 <sup>4</sup>	6.13·10 <sup>8</sup>	3.13·10 <sup>13</sup>
	<sup>240</sup> Pu	3.14·10 <sup>4</sup>	6.14·10 <sup>8</sup>	3.14·10 <sup>13</sup>
	<sup>79</sup> Se	1.13	1.22	1.35
	<sup>99</sup> Tc	88.57	2.29·10 <sup>4</sup>	1.48·10 <sup>7</sup>
Бентонит	<sup>129</sup> I	1.08	1.09	1.10
	<sup>94</sup> Nb	2.86	6.41	17.84
	<sup>59</sup> Ni	8.67	50.96	5.00·10 <sup>2</sup>
	<sup>239</sup> Pu	2.42·10 <sup>3</sup>	1.92·10 <sup>6</sup>	3.90·10 <sup>9</sup>
	<sup>240</sup> Pu	2.43·10 <sup>4</sup>	1.93·10 <sup>6</sup>	3.92·10 <sup>9</sup>
	<sup>79</sup> Se	1.06	1.07	1.08
	<sup>99</sup> Tc	2.08	3.42	7.47

Отметим несколько наиболее существенных моментов, вытекающих из анализа пространственных распределений радионуклидов. Различие в значениях наблюдаемого коэффициента диффузии для радионуклидов <sup>129</sup>I и <sup>99</sup>Tc в бентоните и бетоне более существенно, чем для <sup>59</sup>Ni. Поэтому построенные для <sup>129</sup>I кривые пространственного распределения в области инженерных барьеров имеют существенно более ломаный вид, чем аналогичные кривые для <sup>59</sup>Ni. Очевидно, что по сравнению с бетоном бентонит не является существенной преградой для радионуклидов <sup>129</sup>I и <sup>99</sup>Tc, а также <sup>79</sup>Se. Другими словами, для слабо сорбирующихся радионуклидов изменение уровня концентрации при миграции в бентоните практически не наблюдается. Для этих радионуклидов заметное снижение уровня концентрации начинает проявляться только в области бетона.

Можно отметить, что для <sup>59</sup>Ni более серьезным барьером выступает сама вмещающая формация (в нашей геометрии – НЗМ), что также хорошо видно по результатам модели постоянной толщины ближнего поля. О том, что вмещающая порода в виде НЗМ обладает более высокими защитными свойствами, чем

любой из рассматриваемых инженерных барьеров, свидетельствуют цифры наблюдаемых коэффициентов диффузии, представленные в табл. 3, для таких радионуклидов, как  $^{94}\text{Nb}$ ,  $^{79}\text{Se}$  и  $^{129}\text{I}$ .

На основе проведенных численных экспериментов оценены параметры, которые могут характеризовать защитные функции бентонита и бетона. В частности, в табл. 4 представлены коэффициенты снижения концентрации изучаемых радионуклидов при различных толщинах барьеров: 0.50, 1.00 и 1.50 м. Коэффициент снижения определяется отношением уровней концентрации на входе и выходе первого барьера при отсутствии второго, но при наличии НЗМ, для которой диффузионные параметры были постоянными во всех численных экспериментах. Представленные коэффициенты позволяют делать вывод об определенной эффективности того или иного барьера для конкретного радионуклида и являются хорошим дополнением к кривым пространственного распределения активности радионуклидов по толщине инженерных барьеров.

В качестве примера динамика концентрации радионуклида  $^{59}\text{Ni}$  при толщине 1-го барьера 0.50 м (серия А и серия Б) представлена на рис. 4 для схемы рис. 1а и на рис. 5 для схемы рис. 1б.

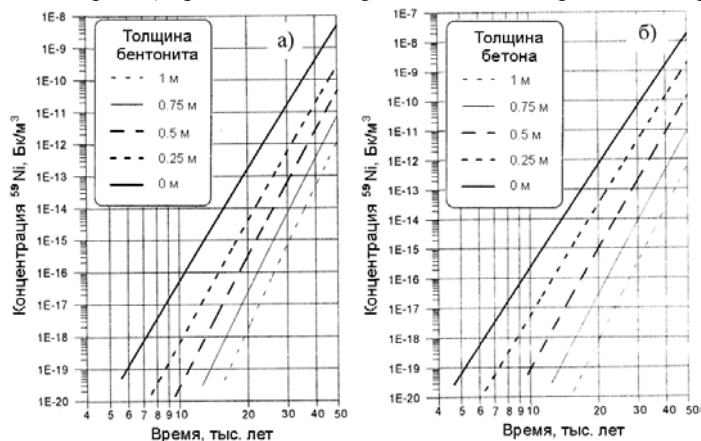


Рис. 4. Динамика концентрации  $^{59}\text{Ni}$  в схеме постоянной толщины НЗМ на выходе из нее при толщине барьера 1 0.50 м (а – серия А и б – серия Б).

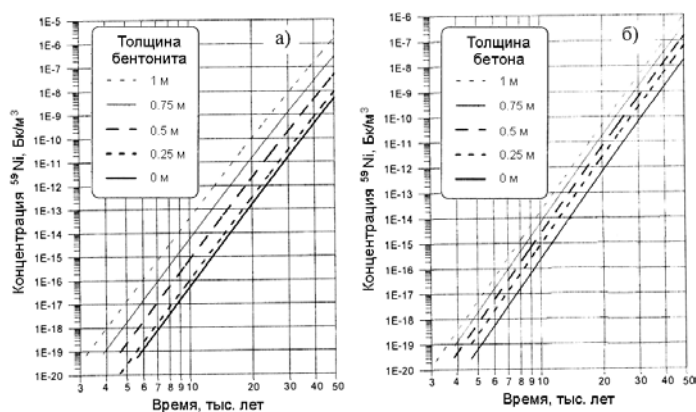


Рис. 5. Динамика концентрации  $^{59}\text{Ni}$  в схеме постоянной толщины ближнего поля на выходе из него при толщине барьера 1 0.50 м (а – серия А и б – серия Б).

Отметим результат, который для динамики концентрации радионуклидов является наиболее ярко выраженным. Для модели постоянной толщины НЗМ дополнительное введение инженерного материала приводит к снижению концентрации примеси на выходе из ближнего поля. Уровень концентрации на выходе из ближнего поля, конечно, будет ниже, чем в модели постоянной толщины ближнего поля. Для модели постоянной толщины ближнего поля при добавлении второго барьера возможно как увеличение, так и снижение концентрации примеси, что определяется соотношением наблюдаемых коэффициентов диффузии радионуклидов во втором барьере и нарушенной зоне.

Рассмотрим для примера радионуклид  $^{99}\text{Tc}$ . Если второй барьер – бентонит, то наблюдается рост концентрации. Причем этот рост весьма существенный – до трех порядков при метровой толщине барьера. Если же вторым барьером выбран бетон, то имеется снижение концентрации: при толщине барьера 1 м снижение составит почти 2 порядка. Для радионуклида  $^{59}\text{Ni}$  во всех ситуациях наблюдается увеличение концентрации. Причем если бентонит выступает в роли второго барьера, то рост концентрации более заметен. Такое поведение концентрации соответствует величинам наблюдаемых коэффициентов диффузии в материалах изучаемых инженерных барьеров.

Анализ представленных кривых позволяет сделать вывод, что для радионуклида  $^{99}\text{Tc}$  срок 50 тыс. лет, в принципе, является недостаточным для выхода на уровень максимальных значений для принятого сценария эволюции объекта. За пределами данного срока имеется потенциал дальнейшего загрязнения

дальнего поля. В то же время для радионуклида  $^{129}\text{I}$  указанного временного интервала вполне хватает (особенно когда в качестве первого барьера выбирается бентонит), чтобы выйти на максимальные значения. Кстати, именно для этого изотопа наблюдается наиболее контрастное поведение кривых: для случая первого барьера из бетона – кривые сгущаются; для случая первого барьера из бентонита – наоборот, кривые удалены далеко друг от друга, особенно на начальном этапе. Объяснение этого явления очень простое: значительное различие в значениях наблюдаемых коэффициентов диффузии этого изотопа в бентоните и бетоне и достаточно близкие и высокие значения в бентоните и НЗМ. Поведение кривых четко следует значениям наблюдаемых коэффициентов диффузии (табл. 3).

Важным результатом анализа рассчитанных временных и пространственных распределений концентрации того или иного радионуклида явилась возможность определить значение максимальной концентрации вблизи границы раздела ближнего поля и дальнего поля. Эти значения позволяют выполнить консервативную оценку экологической безопасности объектов хранения/захоронения радиационно-опасных материалов на рассматриваемых площадках. Время достижения этого максимального значения для всех радионуклидов, кроме радионуклида  $^{129}\text{I}$ , соответствует 50 тыс. лет.

Для указанного радионуклида время достижения максимальной концентрации имеет свои особенности. Для модельных представлений рис. 1а и рис. 1б в обоих вариантах размещения слоя бетона (на первом или на втором месте) время достижения максимальных значений концентрации отвечает максимальному расчетному времени – 50 тыс. лет. Данный факт соответствует принятому в исследовании значению коэффициента распределения этого радионуклида в бетоне, а значит, и наблюдаемому коэффициенту диффузии. При использовании на месте первого барьера бентонита имеются следующие варианты. Для модели постоянной толщины НЗМ время достижения максимума концентрации, а также сами значения этих максимумов, зависят от толщины барьера: значение максимума концентрации постепенно снижается, а соответствующее ему время растет от ~3700 до ~6000 лет с ростом толщины барьера от 0.50 до 1.50 м, соответственно. Для модели постоянной толщины ближнего поля, когда бентонит замещает нарушенную породу, имеем обратную картину: с ростом толщины бентонита, в котором наблюдаемый коэффициент диффузии выше почти в 3 раза, чем в нарушенной зоне, имеем постепенный рост максимума концентрации при снижении времени достижения этого максимума (3700-3000 лет). Объяснение столь ранним временам выхода кривых динамики концентрации радионуклида  $^{129}\text{I}$  на максимальные значения дано выше.

#### 4. Заключение

Изучен диффузионный перенос радионуклидов в инженерных барьерах подземного объекта долговременного хранения ОЯТ и захоронения РАО. Рассмотрены две схемы расположения барьеров. В первой схеме выдерживается постоянная толщина нарушенной зоны массива. Поэтому при увеличении толщины второго барьера и постоянной толщине первого имеем рост размера всей моделируемой области. Во второй схеме фиксируется толщина всей ближней зоны (инженерные барьеры плюс нарушенная зона). В такой постановке рост толщины второго барьера при постоянстве толщины первого ведет к снижению толщины нарушенной зоны. В качестве материалов инженерных барьеров рассматривались бетон и бентонит. В серии А численных экспериментов они располагались в указанном порядке, а в серии Б – в обратном. При этом максимальная полная толщина барьеров не превышала 1.50 м, а шаг изменения был равен 0.25 м.

Обоснован выбор принятых к рассмотрению радионуклидов, их миграционные параметры в рассматриваемых средах, временной период исследования и параметры подземного объекта. В качестве сценария эволюции подземного объекта хранения/захоронения радиационно-опасных материалов принят сценарий нормальной эволюции, предполагающий считать в ближней зоне объекта доминирующим механизмом переноса диффузию. При этом допускается перенос высвобождаемой радиоактивности без сопротивления на внешней границе нарушенной зоны в подземные воды дальней зоны. Математическим аппаратом предложенных моделей выбран алгоритм численного решения диффузионного уравнения с учетом механизма радиоактивного распада с помощью компьютерного кода PORFLOW. В результате проведенных расчетов получены пространственные распределения концентраций анализируемых радионуклидов по толщине системы барьеров, а также динамика концентрации мигрирующих изотопов на выходе из ближней зоны подземного объекта.

Основные результаты выполненных исследований в рамках принятых модельных представлений сводятся к следующим выводам:

1. Для анализа полученных пространственных распределений и динамики концентрации радионуклидов целесообразнее использовать не коэффициент распределения изотопа в конкретном инженерном барьере, а значение наблюдаемого коэффициента диффузии  $D_a$ . Значения указанного параметра, определяющего диффузионный перенос радионуклидов, зависят от коэффициента

распределения, пористости и плотности материала и могут различаться до нескольких порядков для разных материалов инженерных барьеров. Например, для изотопа  $^{129}\text{I}$  это различие составляет более 3 порядков, для изотопа  $^{79}\text{Se}$  – два порядка, для остальных рассмотренных радионуклидов различие укладывается в один порядок. На основе анализа наблюдаемого коэффициента распределения можно сделать ряд выводов:

- для радионуклидов  $^{79}\text{Se}$  и  $^{129}\text{I}$  бентонит не представляет собой надежного защитного барьера;
  - то же самое можно констатировать для бетона в отношении изотопа  $^{79}\text{Se}$ ;
  - сама вмещающая порода является серьезным препятствием для всех радионуклидов, за исключением чрезвычайно подвижного изотопа  $^{129}\text{I}$ .
2. Определены коэффициенты снижения концентрации изучаемых долгоживущих радионуклидов при различных толщинах барьеров. Эти коэффициенты позволяют сделать вывод о степени эффективности того или иного барьера для каждого радионуклида и являются дополнением к графикам пространственного распределения концентрации радионуклидов по толщине инженерных барьеров.
  3. На основе кривых динамики концентрации всех радионуклидов на выходе из ближней зоны для обеих предложенных схем системы инженерных барьеров зафиксированы максимальные значения. Эти максимальные значения могут быть использованы для выполнения консервативных оценок экологической безопасности подземного объекта хранения/захоронения радиационно-опасных материалов.
  4. Кривые динамики концентрации долгоживущих радионуклидов на выходе из ближней зоны показали, что временной диапазон в 50 тысяч лет для выбранного сценария эволюции объекта является недостаточным для выхода на максимальный уровень. Исключение составляет изотоп  $^{129}\text{I}$ , для которого в ситуации размещения на первой позиции защиты бентонита выбранный диапазон является достаточно большим.
  5. В очередной раз подтвержден вывод: вмещающая порода региона является отличным защитным барьером для предотвращения выхода радиоактивности в окружающую среду.

## Литература

- Н-12: Project to establish the scientific and technical basis for HLW disposal in Japan. [Электронный ресурс], <http://www.jnc.go.jp/kaihatu/tisou/zh12>.
- PORFLOW a software tool for multiphase fluid flow, heat and mass transport in fractured porous media. User's manual (version 3.07), ACRi, 326 p., 1997.
- Амосов П.В., Наумов А.В., Новожилова Н.В.** Минимизация радиационного воздействия на население при подземном захоронении не подлежащего переработке отработавшего ядерного топлива в кристаллических породах Кольского полуострова (1 этап). В сб.: "СЕВЕР-2003: Проблемы и решения". Апатиты, КНЦ РАН, с.55-64, 2004.
- Мельников Н.Н., Конухин В.П., Наумов В.А., Амосов П.В., Гусак С.А., Наумов А.В.** Инновационные проекты подземных объектов долговременного хранения и захоронения ядерных и радиационно-опасных материалов в геологических формациях европейского Севера России. Апатиты, КНЦ РАН, 111 с., 2005.
- Мельников Н.Н., Конухин В.П., Наумов В.А., Амосов П.В., Гусак С.А., Наумов А.В., Катков Ю.Р.** Отработавшее ядерное топливо судовых энергетических установок на европейском Севере России. Часть I, Апатиты, КНЦ РАН, 166 с., 2003а.
- Мельников Н.Н., Конухин В.П., Наумов В.А., Амосов П.В., Гусак С.А., Наумов А.В., Катков Ю.Р.** Отработавшее ядерное топливо судовых энергетических установок на европейском Севере России. Часть II, Апатиты, КНЦ РАН, 209 с., 2003б.
- Мельников Н.Н., Конухин В.П., Наумов В.А., Амосов П.В., Гусак С.А., Наумов А.В.** Радиогеоэкологические аспекты безопасности подземного захоронения радиоактивных отходов и отработавшего ядерного топлива на европейском Севере России. Апатиты, КНЦ РАН, 194 с., 2001.
- Оценка безопасности приповерхностных хранилищ радиоактивных отходов (РБ-011-2000). Вестник Госатомнадзора России, № 3, с.59-86, 2002.
- Предварительная оценка безопасности: отчет по задаче 6 проекта ТАСИС R4.10/95 "Повышение безопасности обращения с радиоактивными отходами в северо-западном регионе России. Размещение радиоактивных отходов. Этап 2". Горный институт КНЦ РАН (Россия), BELGATOM, SCK-CEN (Бельгия). Апатиты-Мол, 238 с., 2000.
- Шульга Н.А.** Разработка и реализация технологий окончательного захоронения высокоактивных и долгоживущих отходов. Часть 2. Современное состояние в странах Европы. Атомная техника за рубежом, № 5, с.3-14, 2005.