

Методика и расчетные оценки выхода радионуклидов за пределы защитных контейнеров

Для различной формы контейнеров хранения радиоактивных отходов разработана методика оценки выхода радиоактивности в окружающую среду, основанная на математическом моделировании процесса миграции радионуклидов одномерным дифференциальным уравнением нестационарной диффузии в сферических координатах в однослойном полом шаре. Показано удовлетворительное совпадение результатов расчета по приведенной методике с результатами других авторов.

Ключевые слова: контейнеры хранения РАО, диффузия радионуклидов, математическое моделирование, выход радионуклидов из бетонных контейнеров.

С. Ю. Саенко, Г. О. Холомеев, О. В. Пилипенко

Методика та розрахункові оцінки виходу радіонуклідів за межі захисних контейнерів

Для різної форми контейнерів збереження радіоактивних відходів розроблено методику оцінки виходу радіоактивності в довкілля, що заснована на математичному моделюванні процесу міграції радіонуклідів одновимірним диференціальним рівнянням нестационарної дифузії в сферичних координатах у одношаровій порожнистій кулі. Показано задовільний збіг результатів розрахунку за наведеною методикою з результатами інших авторів.

Ключові слова: контейнери збереження РАВ, дифузія радіонуклідів, математичне моделювання, вихід радіонуклідів з бетонних контейнерів.

© С. Ю. Саенко, Г. А. Холомеев, А. В. Пилипенко, 2010

На объектах ядерного топливного цикла накоплено значительное количество эксплуатационных радиоактивных отходов (РАО) среднего и низкого уровня активности. Для их утилизации разработано и запущено в серийное производство несколько видов невозвратных железобетонных защитных контейнеров, имеющих форму толстостенного цилиндра или прямоугольного параллелепипеда [1]–[4]. Срок службы контейнеров, например НЗК-150–1,5П [3], в условиях хранения РАО среднего и низкого уровня активности в инженерных сооружениях на поверхности (при переменной температуре и влажности) составляет не менее 50 лет, а в условиях приповерхностного или подземного захоронения (при постоянной температуре и пропитке бетона грунтовыми водами) — не менее 300 лет. В условиях захоронения миграция радионуклидов за пределы контейнера будет проходить по механизму диффузии в водонасыщенной пористой среде, которой в данном случае является бетон защитного контейнера.

Для анализа надежности длительной изоляции РАО в железобетонных контейнерах применяются различные методы расчета миграции радионуклидов через стенки контейнеров в окружающую природную среду [1], [4], [5].

Нами разработана методика оценки выхода радионуклидов из контейнеров, имеющих форму куба, прямоугольного параллелепипеда (близкого по форме к кубу) или цилиндра, диаметр которого равен или близок его высоте. Данная методика основана на математическом моделировании процесса миграции радионуклидов в стенках защитного контейнера одномерным дифференциальным уравнением нестационарной диффузии в сферических координатах для однослойного полого шара, эквивалентного исследуемому прямоугольному или цилиндрическому контейнеру. Схема перехода от прямоугольного контейнера к эквивалентному сферическому контейнеру показана на рис. 1.

Размеры эквивалентного сферического контейнера, который по данной методике соответствует исследуемому прямоугольному контейнеру, определяются из следующих критериев:

толщина стенки эквивалентного сферического контейнера равна толщине стенки исходного прямоугольного контейнера;

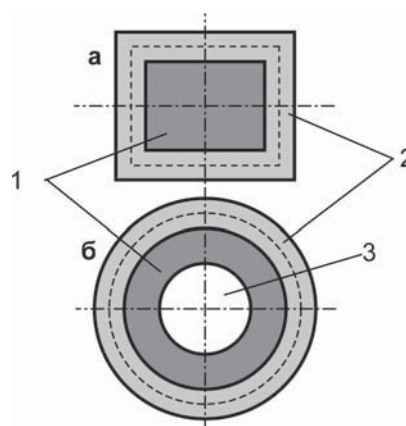


Рис. 1. Схема прямоугольного контейнера РАО (а) и эквивалентного ему сферического контейнера (б): 1 — РАО; 2 — железобетонная стенка контейнера; 3 — фиктивный внутренний слой сферического контейнера

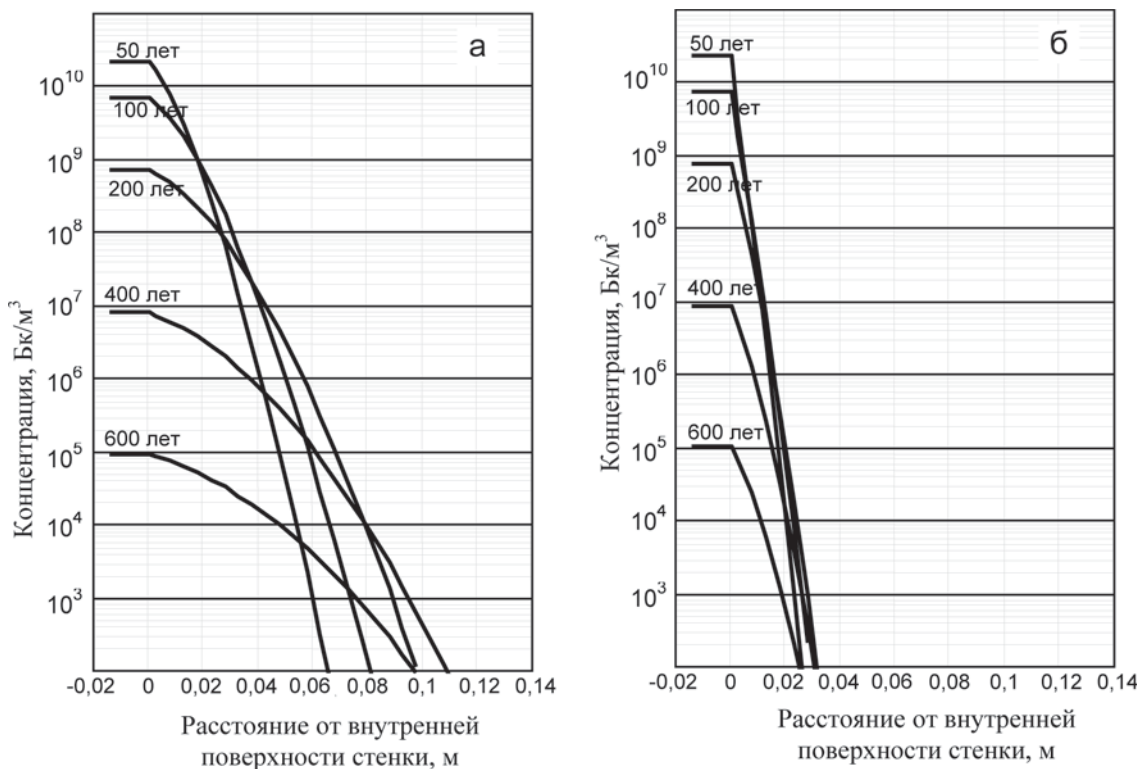


Рис. 2. Результаты расчета профиля концентрации ^{137}Cs в стенке контейнера НЗК-150-1,5П при двух значениях эффективного коэффициента диффузии: а — бетон, $D_e = 2,35 \cdot 10^{-14} \text{ м}^2/\text{с}$ [1]; б — стеклокерамика алюмосиликатного состава, $D_e = 1,2 \cdot 10^{-15} \text{ м}^2/\text{с}$ [9]

площадь сферы на среднем радиусе стенки эквивалентного сферического контейнера равна суммарной площади срединных сечений стенок прямоугольного контейнера; на схеме (см. рис. 1) эти поверхности показаны штрихом;

рабочие объемы обоих контейнеров, заполненные РАО, равны, что обеспечивается введением в расчетную схему сферического контейнера дополнительного (фиктивного) внутреннего слоя, объем которого не участвует в процессе диффузии, для чего поток нуклидов на его границе приравнен нулю.

Таким образом, объемы РАО реального и эквивалентного контейнеров, длины диффузионного пути и площади поверхностей, по которым происходит миграция радионуклидов, будут соответственно равны между собой.

Для математического моделирования миграции радионуклидов применено дифференциальное уравнение нестационарной диффузии в сферических координатах для однослойного полого шара [6], [7]:

$$\frac{\partial c}{\partial \tau} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left[r^2 \cdot D_e \frac{\partial c}{\partial r} \right] - \lambda \cdot c(r, \tau) + q_V(r, \tau), \quad (1)$$

при начальном условии: $c(r_0 < r < r_1, \tau_0) = c_{0k}$, $c(r > r_1, \tau_0) = 0$, с граничными условиями:

на радиусе внутренней (нерабочей) полости $c \frac{\partial c}{\partial r}(r_0, \tau) = 0$;

на внешнем радиусе стенки контейнера $c(r_2, \tau) = 0$,

где τ — время процесса миграции ($\tau = \tau_0 \dots \tau_k$), с; τ_0 — время начала контакта водного раствора радионуклида со стенкой контейнера, с; τ_k — конечное время расчета, с; r — текущий радиус ($r = r_0 \dots r_2$), м; r_0 — радиус внутренней (нерабочей) полости, м; r_1 — внутренний радиус

стенки контейнера, м; r_2 — наружный радиус стенки контейнера, м; c — суммарная концентрация радионуклида в твердой и жидкой фазе на радиусе r в момент времени τ , Бк/м³; c_{0k} — концентрация радионуклида внутри контейнера в начальный момент времени, Бк/м³; $q_V(r, \tau)$ — скорость выхода радионуклида из отвержденных РАО в водный раствор внутри контейнера или интенсивность его образования из родительского изотопа в момент времени τ в слое на радиусе r , Бк/(с·м³); λ — постоянная распада радионуклида, с⁻¹; D_e — эффективный коэффициент диффузии радионуклида в стенке контейнера, м²/с.

Примененный в уравнении (1) эффективный коэффициент диффузии в пористых материалах при условии их полного водонасыщения определяется в соответствии с [7], [8]:

$$D_e = D_w / R,$$

где D_w — коэффициент диффузии радионуклида в воде, м²/с; $R = 1 + K_d \rho / \varepsilon$ — коэффициент задержки радионуклида в соответствующем материале; K_d — коэффициент сорбции (распределения) радионуклида в материале, м³/кг; ε — пористость материала; ρ — плотность материала, кг/м³.

Данная математическая модель реализована в разработанной нами компьютерной программе в системе Mathcad; численное решение уравнения (1) осуществлено методом конечных разностей по неявной консервативной схеме, приведенной в [6] для случая параболических дифференциальных уравнений со ступенчатым изменением коэффициентов по радиусу. Радиусы, эффективный коэффициент диффузии и начальная концентрация радионуклидов в данной математической модели могут быть заданы произвольно в исходных данных для расчета. Математическая модель применима для расчета миграции в однослойных системах со сферической симметрией или в форме, близкой к кубу;

Таблица. Сравнение результатов расчета выхода ^{137}Cs из железобетонных контейнеров различных типов с результатами, приведенными в работах [1] и [4]

Тип контейнера	Габариты, м	Толщина стенки, мм	D_e , м ² /с	Литература	Максимальный выход*, отн. ед.	Расхождение, %	Момент времени максимального выхода*, лет	Расхождение, %
УЗНК-70-0,12П	0,65×0,65×0,65	70	$1 \cdot 10^{-12}$	[4]	$\frac{2,1}{2,25}$	+7,1	$\frac{34}{30,7}$	-9,7
УЗНК-100-1,5П	1,5×1,5×1,175	100	$1 \cdot 10^{-12}$	[4]	$\frac{3,3}{1,86}$	-48,3	$\frac{50}{48,7}$	-2,6
УЗНК-150-1,0П	0,92×0,92×1,2	150	$1 \cdot 10^{-12}$	[4]	$\frac{0,34}{0,325}$	-4,4	$\frac{75}{74,7}$	-0,4
НЗК-150-1,5П	1,65×1,65×1,375	150	$2,35 \cdot 10^{-14}$	[1]	$\frac{0}{0}$	-	$\frac{-}{515}$	-

*В числителе — данные литературного источника (из графиков), в знаменателе — результаты расчета по нашей методике.

интенсивность объемного источника радионуклида внутри контейнера может изменяться во времени. Результатами расчетов являются графики изменения во времени концентрации радионуклидов на любом радиусе стенки контейнера, профили изменения концентрации вдоль радиуса и выход радионуклидов в окружающую среду в зависимости от времени хранения РАО.

По разработанной методике проведен расчет миграции радионуклида ^{137}Cs в корпусе контейнеров различной геометрии и при параметрах, соответствующих [1] и [4]. Результаты расчета приведены на рис. 2 и 3. В наших расчетах начальная активность РАО в контейнере задавалась величиной c_{ok} , т. е. начало расчета совпадало с моментом полного растворения ^{137}Cs в воде, которая к этому моменту уже пропитала контейнер, и предполагалось, что выход радионуклида из отвержденных РАО в раствор внутри контейнера в дальнейшем равен нулю. Для цезия в расчетах принято $R = 1$.

Сравнение полученных по приведенной методике, результатов выхода ^{137}Cs из железобетонных контейнеров прямоугольной формы с результатами работ других авторов [1], [4] показало их удовлетворительное совпадение, о чем свидетельствуют данные таблицы.

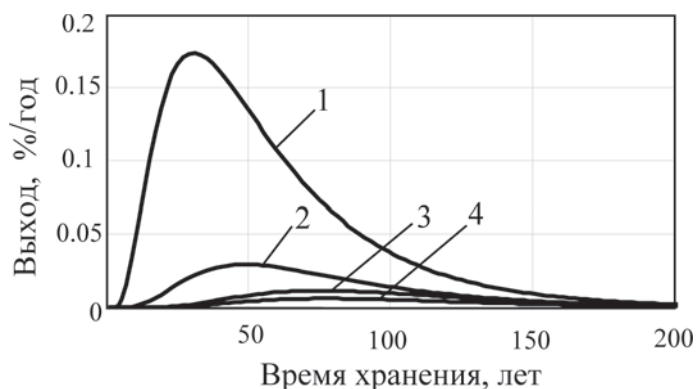


Рис. 3. Результаты расчетов выхода ^{137}Cs из железобетонных контейнеров (в процентах начального содержания за год) при $D_e = 10^{-12}$ м²/с: 1 — УЗНК-70-0,12П; 2 — УЗНК-100-1,5П; 3 — УЗНК-150-1,0П; 4 — НЗК-150-1,5П (размеры контейнеров приведены в таблице)

По данной методике была проведена расчетная оценка эффективности применения керамики по сравнению с бетоном в качестве материала защитных контейнеров РАО. Для геометрии контейнера НЗК-150-1,5П и начальных условий, принятых в [1], были рассчитаны профили концентрации радионуклида ^{137}Cs в стенке контейнера в различные периоды времени хранения при двух значениях эффективного коэффициента диффузии (см. рис. 2): a — для бетона $D_e = 2,35 \cdot 10^{-14}$ м²/с [1]; b — для стеклокерамики $D_e = 1,2 \cdot 10^{-15}$ м²/с [9]. Сравнение графиков, представленных на рис. 2, показало, что за 400 лет хранения глубина проникновения радионуклида ^{137}Cs в корпус контейнера из железобетона и стеклокерамики до уровня концентрации 10^3 Бк/м³ составит 95 мм и 30 мм соответственно. На основании этого можно сделать вывод о значительной эффективности применения стеклокерамики в качестве материала защитных контейнеров для надежной изоляции РАО по сравнению с бетоном.

Выводы

Разработана упрощенная методика оценки выхода радионуклидов из контейнеров различной формы в окружающую среду, основанная на математическом моделировании процесса миграции радионуклидов в водонасыщенной пористой среде корпуса контейнера. Методика построена на численном решении одномерного дифференциального уравнения нестационарной диффузии в сферических координатах для однослойного полого шара, эквивалентного исследуемому прямоугольному или цилиндрическому контейнеру.

Сравнение результатов расчета выхода радионуклида ^{137}Cs из железобетонных контейнеров, имеющих форму прямоугольного параллелепипеда, по приведенной методике с результатами расчетов других авторов показало их удовлетворительное совпадение, расхождение в основном не превышает ± 10 %.

Построенные профили концентрации радионуклида ^{137}Cs по глубине корпуса при различных значениях коэффициента диффузии, соответствующих железобетону и стеклокерамике, показали, что эффективность изоляции РАО с применением стеклокерамики в качестве материала

защитного контейнера в рассмотренном варианте примерно в три раза выше, чем железобетона.

Данная методика применима для сравнения защитных свойств контейнеров различной конструкции и имеющих различные материалы корпуса.

Список литературы

1. Сорокин В. Т. Хранение отработавших ионообменных смол низкого и среднего уровня удельной активности в контейнерах типа НЗК без включения в матрицу / В. Т. Сорокин, А. В. Демин, Н. А. Прохоров и др. // Ядерная и радиационная безопасность. — М., 2009. — № 4. — С. 19–21.

2. Авдеев О. К. и др. Радиоактивные отходы Украины: состояние, проблемы, решения: Монография / Под ред. Э. В. Собоновица. — К.: Изд. центр «ДрУк», 2003. — 400 с.

3. Гатауллин Р. М. Использование перспективных технологий для решения проблем безопасного обращения с радиоактивными отходами / Р. М. Гатауллин, И. А. Медеяев, Р. Б. Шарафудинов // Ядерная и радиационная безопасность. — М., 2008. — № 4. — С. 68–75.

4. Федоров А. Л. Оценка выхода радионуклидов из контейнеров с отходами разной формы / А. Л. Федоров, А. И. Дорожкин,

Т. Н. Федотова, В. Т. Сорокин // Атомная энергия. — М., 1998. — Т. 85, вып. 5. — С. 382–390.

5. Федоров А. Л. Оценка безопасности хранилища с отвержденными радиоактивными отходами, упакованными в бетонные контейнеры / А. Л. Федоров, А. И. Дорожкин, В. Т. Сорокин // Атомная энергия. — М., 1996. — Т. 81, вып. 1. — С. 40–47.

6. Калиткин Н. Н. Численные методы. — М.: Наука, 1978. — 512 с.

7. Серебряков Б. Е. Расчет миграции радионуклидов из мест захоронения // Атомная энергия. — М., 1995. — Т. 79, вып. 5. — С. 381–386.

8. Спасенных М. Ю. Влияние режима взаимодействия вода — порода на миграцию радионуклидов в водонасыщенных средах // Геохимия. — 1997. — № 2. — С. 218–223.

9. Ажажа Ж. С. и др. Методика определения эффективных коэффициентов диффузии радионуклидов в стеклокерамическом материале для изоляции высокоактивных отходов // Вопросы атомной науки и техники. — Х., 2005. — № 5. Серия: Физика радиационных повреждений и радиационное материаловедение (88). — С. 128–132.

Надійшла до редакції 03.08.2010.