

УДК 621.039.74

Б.Г. ШАБАЛІН, Б.П. ЗЛОБЕНКО, С.П. БУГЕРА, Є.Є. ЗАКРИТНИЙ

ШВИДКІСТЬ МІГРАЦІЇ РАДІОНУКЛІДІВ ІЗ ГЕОЛОГІЧНОГО СХОВИЩА РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ У КРИСТАЛІЧНИХ ПОРОДАХ

***Анотація.** Методом моделювання розраховано швидкості міграції радіонуклідів із каністри з осклованими високоактивними відходами неконкретизованого геологічного сховища радіоактивних відходів та подальшою оцінкою ризиків для цільової групи населення. Концептуальна модель та сценарії міграції радіонуклідів розроблені шляхом застосування методів аналогії, аналізу та синтезу. Математична модель розроблена в одновимірному просторі та прорахована в одновимірному просторі за допомогою програмного засобу Ecolago. Розраховані швидкості міграції радіонуклідів Cs-137, Sr-90, Am-241, Pu-239 за сценарієм перетину отвору розміщення каністри водоносною тріщиною.*

***Ключові слова:** міграція радіонуклідів, ризик, математична модель.*

Вступ

Відповідно до Законів України «Про поводження з радіоактивними відходами» і «Про використання ядерної енергії та радіаційну безпеку» довгоіснуючі радіоактивні відходи (РАВ) мають бути захоронені у глибинні геологічні утворення. Вітчизняний нормативно-правовий акт «Загальні положення забезпечення безпеки захоронення радіоактивних відходів у геологічних сховищах» визначає норми і правила стосовно забезпечення ядерної та радіаційної безпеки при захороненні РАВ у геологічних сховищах (ГС).

Законом України «Про поводження з радіоактивними відходами» регламентується необхідність проведення оцінки безпеки такого сховища і визначається, що «проект сховища радіоактивних відходів у обов'язковому порядку вміщує два види оцінок безпеки: безпеки під час експлуатації і безпеки після закриття сховища», а «оцінка безпеки включає в себе аналіз сценаріїв розвитку можливих надзвичайних ситуацій, їх наслідків та порівняння результатів із критеріями безпеки». Оцінка безпеки сховища полягає у проведенні прогностичної оцінки радіологічного впливу сховища на людину і навколишнє природне середовище (розрахунок індикаторів безпеки) і порівнянні одержаних результатів з визначеними критеріями безпеки (лімітами ризиків, доз, фоновими значеннями концентрацій радіонуклідів у природному середовищі тощо).

Міжнародний практичний досвід оцінки безпеки сховищ РАВ ґрунтується на аналізі імовірності міграції радіонуклідів через систему захисних бар'єрів сховища та вміщуючу породу у навколишнє природне середовище. Прогнозування безпеки сховища на довгостроковий період проводиться шляхом математичного моделювання із залученням спостережень природних аналогів або шляхом експериментів, спрямованих на екстраполяцію подій, що можуть мати місце у віддаленому майбутньому. При проведенні розрахунків оцінюють невизначеності вихідних параметрів та використовуваних моделей. Для оцінки довгострокової безпеки ГС

використовують такі індикатори безпеки, як доза/ризик, концентрація радіонуклідів у ГС, швидкість переносу радіонуклідів через штучні бар'єри сховища та від геосфери до біосфери тощо.

Радіаційний захист майбутніх поколінь вважається забезпеченим (з урахуванням невизначеностей прогнозних оцінок на віддалене майбутнє), якщо оцінені ризики для здоров'я людини перебувають у діапазоні від 5×10^{-7} /рік до 5×10^{-5} /рік. При цьому ризик 5×10^{-7} /рік розглядається як цільове значення, що використовується при оптимізації радіаційного захисту. У разі, якщо оцінене значення ризику перевищує 1×10^{-6} /рік, але нижче за 5×10^{-5} /рік, радіаційний захист розглядається як достатній, якщо доведено, що подальше зниження ризиків є економічно недоцільним [1].

За умов, що в Україні відсутня національна програма створення ГС та не визначено конкретний проект і місце розташування сховища, для реалізації підходу до оцінки безпеки можна опиратися на загальний, неконкретизований проект конструкції геологічного сховища¹. Через схожість геологічних умов Українського та Балтійського щитів, в Україні можливе створення ГС ВАР і ВАРП (шахтного типу в граніті), схожого за концепцією, що розроблена шведською компанією SKB – KBS-3V [2].

Метою даної роботи є оцінка швидкості міграції радіонуклідів із спрощеного неконкретизованого сховища осклованих високоактивних відходів (ОВАВ), яке передбачається розмістити на одному з перспективних майданчиків у Чорнобильській зоні відчуження або прилеглих районах [3].

Деякі елементи системи неконкретизованого сховища

У глибинному сховищі РАВ виділяють ближню і дальню зони сховища (рис. 1). З точки зору впливу на людину майбутнього сховища виділяється цільова група населення, на яку вплив майбутнього сховища має бути безпечним.

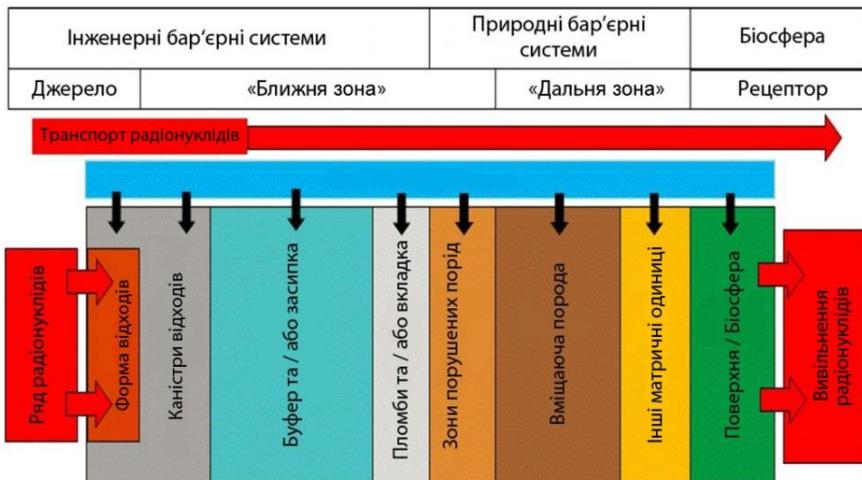


Рис. 1 – Схема транспорту радіонуклідів через елементи ГС

¹ Неконкретизоване геологічне сховище – абстрактна система збірних характеристик геологічних сховищ радіоактивних відходів без прив'язки до конкретного проекту та майданчика його розміщення.

Система ближньої зони ГС РАВ складається із форми відходів, металічного контейнера (каністри), буферного матеріалу, оточуючого каністри у отворі розміщення, та зворотної засипки, якою заповнені тунелі доступу. Іноді до ближньої зони відносять і частину вміщуючої породи, яка безпосередньо прилягає до тунелів доступу і отворів розміщення і зазнавала механічного та хімічного впливу під час їх проходження, а при експлуатації ГС зазнає радіаційного і теплового (від тепловидільних відходів) впливу.

Остаточний варіант каністри з ОБАВ для захоронення наразі не визначений. Разом з тим, згідно з [4], передбачається використання для тривалого зберігання ОБАВ від переробки ВЯП реакторів ВВЕР-440 бідони із сталі 3 об'ємом $0,2 \text{ м}^3$ в спеціальних пеналах ємністю по два або три бідони. Пенал на два бідони має розміри $\varnothing 630 \times 2300 \text{ мм}$ і загальну масу 1390–1430 кг.

Можна припустити, що для захоронення форма відходів із таких бідонів з ОБАВ буде перезавантажуватися в контейнер для захоронення, виконаний із матеріалу, який буде виконувати функцію ізоляції ОБАВ необхідний час. У даній роботі для розрахунків приймається гіпотеза завантаження форми відходів із двох бідонів в металеву каністру з товщиною стінки 5–10 см. Звідси, маса форми відходів БАВ у одній каністрі складе близько 960–1000 кг.

У якості буферного матеріалу зазвичай планується застосування виробу із компактизованого бентоніту, який виконує, в основному, функцію затримки виходу радіонуклідів з каністри та доступу води до стінки каністри. У буферному матеріалі відбуваються процеси дифузії радіонуклідів та їх сорбція.

У якості дальньої зони (середовище розміщення ГС) можуть розглядатися рапаківіподібні граніти північно-східної частини Коростенського плутону, які розвинені в західній частині Чорнобильської зони відчуження, де вони перекриті чохлом осадових відкладів (близько 200–400 м) [3].

Як цільова група розглядалося населення, яке споживає питну воду із свердловини, що пробурена до водоносного горизонту, до якого надходять радіоактивні речовини тріщиною із сховища у напрямку току підземних вод від пошкодженої каністри. Розглядався один сценарій опромінення цільової групи – внутрішнє опромінення від споживання радіонуклідів із питною водою за умови отримання всієї добової норми споживання води лише із зазначеної свердловини.

Створення концептуальної моделі

За умов невизначеності конструкції сховища та дуже обмеженого обсягу фактичних даних щодо майданчика розміщення сховища, розробка концептуальної моделі та сценарію міграції радіонуклідів можлива шляхом застосування методів аналогії, аналізу та синтезу.

Нормативні документи України [5, 6] передбачають оцінку ізолюючих властивостей системи сховищ, як за умов нормальної еволюції, так і у разі виникнення критичних подій при обґрунтуванні безпеки сховища. НРБУ-97/Д-2000 зобов'язує розглянути сценарії, що можуть призвести до реалізації критичної події, яка спричиняє руйнування (порушення цілісності) систем сховища РАВ та проникнення радіоактивних речовин у навколишнє природне середовище.

Як сценарій еволюції сховища та міграції радіонуклідів обрано послідовність ймовірних подій процесів, що відбуватимуться після закриття сховища. При цьому передбачається, що характеристики системи сховища не будуть змінюватися під впливом імовірнісних факторів. Після закриття сховища, зворотна засипка та буферний матеріал поступово насичуються підземними водами, і відбувається корозія контейнера (каністри), який втрачає ізолюючу функцію, з'являється можливість міграції радіонуклідів із форми відходів через систему інженерних бар'єрів до дальньої зони сховища. Передбачається, що надходження підземних вод до системи інженерних бар'єрів буде здійснюватися через пори та тріщини кристалічної породи.

У бентонітовому буфері, розташованому безпосередньо навколо каністри з ОВАВ, перенесення речовини здійснюється тільки за допомогою механізму дифузії з урахуванням затримки радіонуклідів за рахунок ефектів сорбції безпосередньо буферним матеріалом та радіоактивного розпаду. Усі радіонукліди, які пройшли через буферний матеріал, мігрують шляхом адвекції у відкритій водоносній тріщині, що перетинає отвір розміщення каністри з ОВАВ (рис. 2). Затримка радіонуклідів у тріщині відбувається за рахунок дифузії і сорбції кристалічними породами стінок тріщини з урахуванням радіоактивного розпаду.

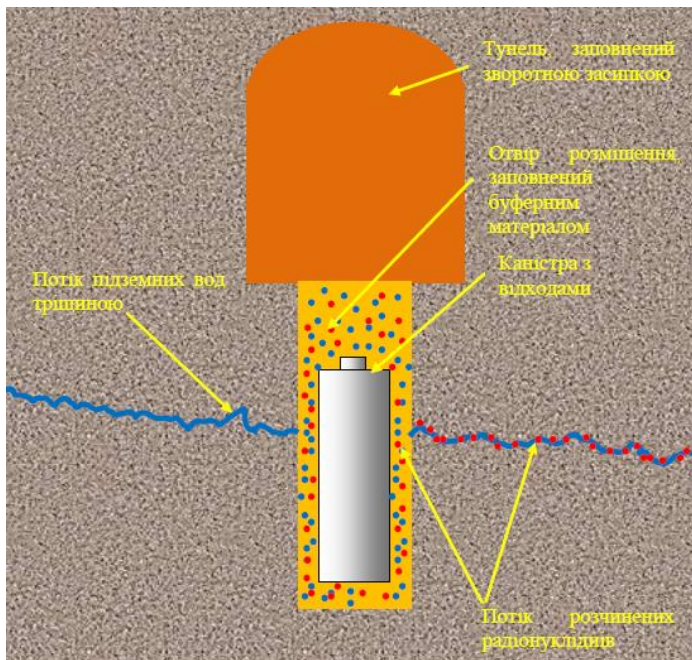


Рис. 2 – Концептуальна модель сценарію перетину отвору розміщення водоносною тріщиною

Води із водоносної тріщини розвантажуються до локального водоносного горизонту, котрий використовується для питного водопостачання (рис. 3).

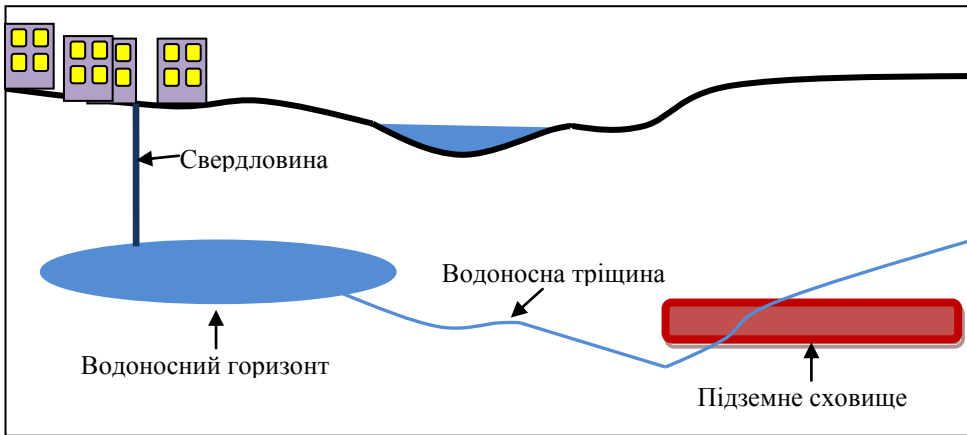


Рис. 3 – Концептуальна модель перенесення радіонуклідів водоносною тріщиною до водоносного горизонту

Математична модель, вихідні дані та обмеження

Усе сховище можна умовно розділити на елементарні комірки. Узагальнена концепція таких комірок сховища включає: 1) форму відходів, 2) каністру, що її вміщує, 3) буферний матеріал (бентоніт), 4) прилеглу гірську породу із магістральною водоносною тріщиною. Математичну модель створено і реалізовано для розрахунку міграції радіонуклідів із однієї елементарної комірки сховища в одновимірному просторі за допомогою програмного засобу Ecolago. Оцінка швидкості міграції була виконана для основних дозоутворюючих радіонуклідів Cs-137, Sr-90, Pu-239, Am-241. Передбачається, що радіонукліди в каністрі розміщені рівномірно. Маса форми відходу в такій елементарній комірці сховища складає 960–1000 кг. Початкові активності радіонуклідів в одній каністрі на момент часу «0» математичної моделі прийнято Cs-137 – $9,77E+15$, Sr-90 – $9,84E+15$, Pu-239 – $2,33E+12$, Am-241 – $1,30E+14$ Бк (розраховано за даними [4]). При переході до математичної моделі від концептуальної було зроблено ряд спрощень та обмежень.

Було прийнято, що каністра буде виконувати функцію ізоляції 500 років з моменту закриття отвору розміщення каністр. Зауважимо, що протягом цього періоду часу велика частина тепловиділяючих радіонуклідів може розпастися до незначних рівнів. Тому, тепловим впливом на міграцію радіоактивності на момент початку виходу радіонуклідів можна знехтувати. Руйнування каністри приймається як моментальний акт зникнення функції ізоляції її оболонки, який вводиться у розрахунки відповідним коефіцієнтом у зазначений момент часу. Після цього розпочинається розчинення форми відходів і вилуговування радіонуклідів. Вилуговування радіонуклідів та їх перехід в іонну форму (колоїдна форма не враховується) вважається джерелом міграції радіонуклідів для моделювання.

Математична модель описує вилуговування i -го радіонукліду у моделі за формулою:

$$L_i = \frac{S_c \times Cl_i}{W_{dif}}; \quad (1)$$

де S_c – площа форми відходів, яка доступна до вилугування; Cl_i – коефіцієнт вилугування i -го радіонукліду; W_{diff} – коефіцієнт, що визначається швидкістю дифузії води через бентонітовий буфер.

Форма відходів для ОВАВ являє собою натрій-боро-алюмо-фосфатне скло зі швидкістю вилугування: для Cs – 10^{-6} , Sr – 10^{-6} , Pu – 10^{-7} г/см²·добу [4].

Математична модель джерела міграції передбачає, що радіонукліди із матриці відходів миттєво переходять у іонообмінну форму, при цьому швидкість вилугування регулюється коефіцієнтами вилугування і дифузією води до каністри через буферний матеріал.

У буферному матеріалі відбувається процес дифузії та сорбції радіонуклідів. У програмному середовищі Ecolago дифузія радіонуклідів через бентонітовий буфер записується формулою:

$$Dif = \frac{D}{(R \times dx^2)}, \text{ де} \quad (2)$$

Dif – дифузійне перенесення; D – коефіцієнт дифузії, R – коефіцієнт затримки.

Для розрахунків коефіцієнта затримки для бентоніту використовувалися коефіцієнти розподілу, наведені в таблиці 1.

Таблиця 1 – Коефіцієнти розподілу радіонуклідів (Kd)
у бентонітовому буфері [7]

Радіонуклід	Kd, м ³ /кг
Cs-137	$4,8 \times 10^{-2}$
Sr-90	$1,4 \times 10^3$
Pu-239	$9,9 \times 10^1$
Am-241	$3,2 \times 10^1$

Приймається, що дифузія відбувається рівномірно на усій площі контакту каністри із буферним матеріалом і лише у напрямку від стінки каністри до стінки отвору розміщення. Також приймається, що усі радіонукліди, котрі пройшли за межі буферного матеріалу, потрапляють до водоносної тріщини.

Вода, яка рухається тріщиною від отвору розміщення, розвантажується у локальний водоносний горизонт. Шлях, пройдений водою після контакту із буферним матеріалом, становить 3000 м. Приймається, що тріщина лінійна у проекції на вісь і має переріз правильного циліндру. Швидкість потоку у тріщині приймається [7] – $6,14 \times 10^{-3}$ м³/рік.

Перенесення речовини через відкриту тріщину розраховується за формулою:

$$F = Qf/L - Sf \cdot Di, \quad (3)$$

де: F – перенесення речовини у тріщині, Qf – лінійна швидкість потоку у тріщині (розраховується із об'ємної швидкості потоку), L – відстань по тріщині до контрольної точки, Sf – внутрішня площа тріщини, Di – коефіцієнт дифузії радіонуклідів у граніті.

Розчинені речовини в іонній формі рухаються тріщиною зі швидкістю потоку, а на межі контакту підземної води із стінкою тріщини відбувається дифузія у граніт. Відповідні коефіцієнти дифузії наведені у таблиці 2. Приймається, що стінки тріщини ідеально рівні без утворень вторинних мінералів, а дифузія відбувається лише на поверхні водоносної тріщини.

Таблиця 2 – Коефіцієнти дифузії для розрахунку міграції речовини у відкритій тріщині

Речовина	De (m ² /s)
Cs	1,0E-8 [8]
Sr	1,7E-13 [9]
Pu	2,6E-13 [10]
Am	2,6E-13 [10]

Усі процеси математичної моделі зводяться до єдиної системи диференціальних рівнянь першого порядку, яка вирішується для кожного моменту часу програмними засобами Ecolago.

Для розрахунків ризику для цільової групи населення приймається, що об'єм водоносного горизонту становить 10⁶ м³, а коефіцієнт розбавлення концентрації радіонуклідів, що надходять до нього, прийнято рівним 1. Коефіцієнт водообміну водоносного горизонту також прийнято 1. Такі величини для коефіцієнтів прийняті з дотриманням консервативного підходу, тобто приймається, що усі радіонукліди, які надійшли тріщиною до водоносного горизонту, одразу рівномірно розподіляються по всьому його об'єму, а зниження концентрації радіонуклідів через розбавлення не враховується. Передбачається, що води водоносного горизонту добуваються через свердловину і подаються для господарсько-питного водопостачання без очищення. Споживання води для однієї людини приймається на рівні 3 л/добу.

Отримані результати та їх обговорення

У результаті виконання розрахунків отримано часові залежності швидкості міграції радіонуклідів. Величини максимальної швидкості міграції та часовий момент її досягнення наведені у таблиці 3, а динаміка зміни швидкості міграції радіонуклідів наведена на рис. 4.

Таблиця 3 – Розраховані максимальні швидкості міграції радіонуклідів на виході із водоносної тріщини та загальна кількість радіонукліду

Радіонуклід	Максимальні швидкості можливої міграції радіонуклідів, Бк/рік	Кількість радіонукліду, що надійшла до водоносного горизонту за весь період розрахунку, % від початкової кількості радіонукліду в каністрі
Cs-137	9,12E+06	3,0E-04
Sr-90	3,83E+07	3,0E-04
Am-241	6,40E+07	5,8E-02
Pu-239	2,88E+06	1,3E-02

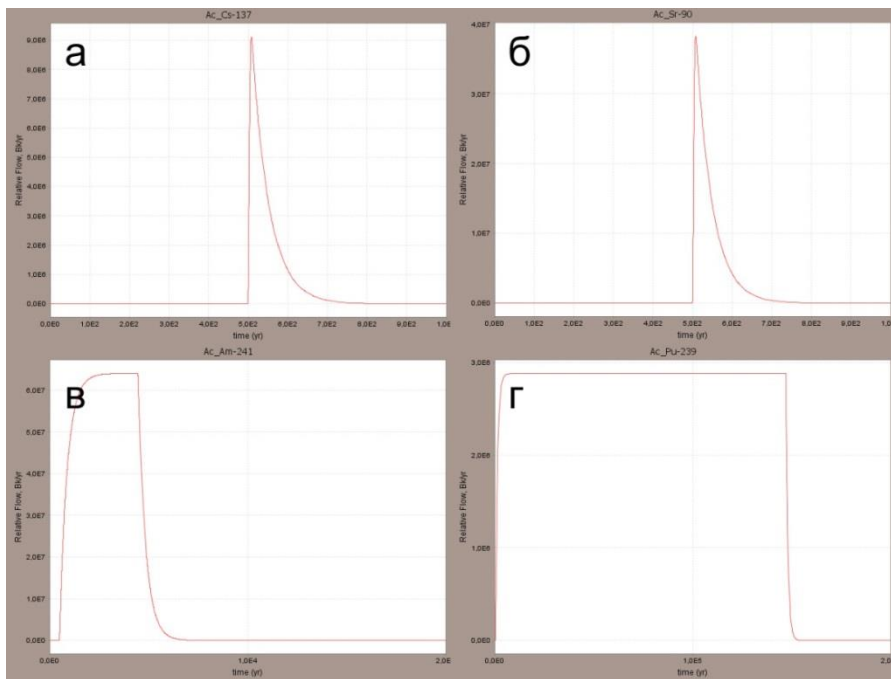


Рис. 4 – Швидкість виносу: а) Cs-137, б) Sr-90, в) Am-241, г) Pu-239

Розпад більшої частини короткоіснуючих радіонуклідів (Cs-137 і Sr-90) відбувається ще до розгерметизації канистри. Графіки динаміки швидкості виносу довгоіснуючих Am-241 та Pu-239 вказують на те, що досягнута максимальна швидкість їх виносу утримується протягом значного періоду часу.

Сумарні кількості винесених радіонуклідів за весь період розрахунку у порівнянні з їх початковими кількостями у момент часу «0» дуже незначні (табл. 3), що пояснюється ефективною затримкою радіонуклідів буферним матеріалом та їх дифузією у стінки тріщини.

Для підтримання консервативної лінії оцінки безпеки ГС РАВ було розраховано максимальний сумарний ризик летального випадку у дорослого населення, яке споживає питну воду із свердловини, пробуреної до локального водоносного горизонту, у який відбувається розвантаження води, що рухається тріщиною від підземного сховища. Як вихідні дані використовувалися значення максимального виносу відповідних радіонуклідів, незалежно від моменту часу досягнення максимального виносу. Розглядався один сценарій опромінення цільової групи – споживання радіонуклідів із питною водою за умови отримання всієї добової норми споживання води лише із зазначеної свердловини. Для розрахунків ризику було використано коефіцієнти із публікації [11].

Розрахований за таких умов сумарний ризик летального випадку у дорослого населення протягом всього життя становить $2,81E-07$. Якщо, прийняти середню тривалість життя рівною 70 рокам, то величина сумарного ризику летального випадку за рік складе $4,02E-09$.

Отримане значення ризику на два порядки нижче нормативного значення у $5E-07$ /рік, наведеного в [1].

Висновки

1. Виконано оцінку швидкості міграції радіонуклідів із однієї каністри ОБАВ, розміщеної у неконкретизованому геологічному сховищі, розміщеному у гранітах. Розрахунки отримано шляхом математичного моделювання за допомогою програмного засобу Ecolago. Встановлено, що розраховані максимальні швидкості міграції з інженерних і природних бар'єрів сховища складають: для Cs-137 – $9,12\text{E}+06$; Sr-90 – $3,83\text{E}+07$; Am-241 – $6,40\text{E}+07$; Pu-239 – $2,88\text{E}+06$ Бк/рік.

2. Сумарні кількості винесених радіонуклідів за весь період розрахунку у порівнянні з їх початковими кількостями у каністрі з ОБАВ становлять для Cs-137 – $3,0\text{E}-04$; для Sr-90 – $7,5\text{E}-06$; Am-241 – $5,8\text{E}-02$; Pu-239 – $1,3\text{E}-02\%$. Тим самим показано, що абсолютна більшість маси радіонуклідів ефективно затримується системою інженерних та природними бар'єрами.

3. Розрахована величина ризику летального випадку для репацієнтів за рік склала $4,02\text{E}-09$, що є значно нижче нормативного значення у 5×10^{-7} /рік.

Наведені результати отримані за умов присутності значної кількості невизначеностей. По мірі накопичення даних щодо конструкції ГС, кількості і характеристик ОБАВ, системи бар'єрів, вміщуючого середовища і місця розташування ГС можна буде отримувати більш точні результати для проектування і створення глибинних сховищ у кристалічних породах (гранітах), використовуючи даний підхід і модифікуючи його.

Результати щодо швидкості міграції радіонуклідів через системи інженерних і природних бар'єрів ГС у гранітах до біосфери, оцінка ризиків для населення дає підстави для проектування і подальшого створення ГС РАВ в Україні на одному з перспективних майданчиків у Чорнобильській зоні відчуження або прилеглих районах.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. Вимоги до вибору майданчиків для розміщення сховища для захоронення радіоактивних відходів (НП 306.4.149-2008), затверджено наказом Держатомрегулювання від 14.11.2008 № 188, зареєстровано у Мін'юсті 08.12.2008 за № 1166/15857. Офіційне видання. Офіційний вісник України від 22.12.2008 2008 р., № 95, стор. 141.
2. TR-11-01. Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark. Main report of the SR-Site project. Stockholm: SKB. – Volume I. – 2011. – 276 p.
3. Изоляция радиоактивных отходов в недрах Украины / Монография под ред. В.М. Шестопалова. – Киев: НАН Украины, НИЦ РПИ, 2006. – 398 с.
4. Наказ Кабінету Міністрів України № 484 від 04.07.2012 Про затвердження Вимог до контейнерів для зберігання високоактивних радіоактивних відходів від переробки відпрацьованого ядерного палива реакторів ВВЕР-440 / Міністерство енергетики та вугільної промисловості України. – Офіц. вид. – Офіційний вісник України від 14.09.2012. – стаття 2772. – № 67. – 2009. – С. 493.
5. Державні гігієнічні нормативи. Норми радіаційної безпеки України, доповнення: Радіаційний захист від джерел потенційного опромінення (НРБУ-97/Д-2000), затверджені постановою Головного державного санітарного лікаря України від 12.07.2000 № 116.
6. Основні санітарні правила забезпечення радіаційної безпеки України, затверджені наказом Міністерства охорони здоров'я України від 02.02.2005 № 54, зареєстрованим в Міністерстві юстиції України 20.05.2005 за № 552/10832.

7. Safety Case for the Disposal of Spent Nuclear Fuel at Olkiluoto – Models and Data for the Repository System 2012 Part 2. – Posiva Report. – Olkiluoto: Posiva, 2013. – P. 551.
8. Masaki Tsukamoto. Effects of biotite distribution on cesium diffusion in granite // Chemical Geology. – 1993. – V. 107 (1–2). – P. 29–46.
9. Tetsuji Yamaguchi. Consideration on Effective Diffusivity of Strontium in Granite / Tetsuji Yamaguchi, Yoshiaki Sakamoto, Muneaki Senoo // Journal of Nuclear Science and Technology. – 1993. – V. 30[8]. – P. 796–803.
10. Moore S.M. Uranium diffusion in soils and rocks [Електронний ресурс] / Moore S.M., Shackelford C.D. // Tailings and Mine Waste '11 Proceedings of the 15th International Conference on Tailings and Mine Waste, Vancouver, B.C., November 6–9, 2011. – Електронні дані. – Norman B. Keevil Institute of Mining Engineering, University of British Columbia. Vancouver, BC, Canada, 2011. – P. 549–561. – Режим доступу: <https://circle.ubc.ca/handle/2429/38036>.
11. Peterson J. Radiological and Chemical Fact Sheets to Support Health Risk Analyses for Contaminated Areas [Електронний ресурс] / MacDonell M., Haroun L., Monette F. – Електронні дані. – 2007. – Режим доступу: <http://www.nuceng.ca/refer/radiation/anl-factsheets.pdf>

Стаття надійшла до редакції 17.08.2016