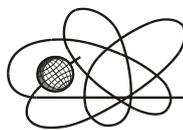




Российская Академия Наук

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ИНСТИТУТ ПРОБЛЕМ
БЕЗОПАСНОГО РАЗВИТИЯ
АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ**



ИБРАЭ

RUSSIAN ACADEMY OF SCIENCES

**NUCLEAR SAFETY
INSTITUTE**

Препринт ИБРАЭ № ИБРАЭ-2018-15

Preprint IBRAE-2018-15

К. А. Болдырев, Д. В. Крючков, В. Д. Ковальчук, К. В. Мартынов

**МЕТОДЫ ПРИМЕНЕНИЯ БАЗОВЫХ
ПРИНЦИПОВ КОМПЛЕКСНОГО УЧЕТА
ПРОЦЕССОВ ЭВОЛЮЦИИ ИББ ПРИ ОЦЕНКЕ
ВЫХОДА РАДИОНУКЛИДОВ ЗА ПРЕДЕЛЫ
ОБЪЕКТА**

Москва
2018

Moscow
2018

Болдырев К. А., Крючков Д. В., Ковальчук В. Д., Мартынов К. В. МЕТОДЫ ПРИМЕНЕНИЯ ПРИНЦИПОВ КОМПЛЕКСНОГО УЧЕТА ПРОЦЕССОВ ЭВОЛЮЦИИ ИББ ПРИ ОЦЕНКЕ ВЫХОДА РАДИОНУКЛИДОВ ЗА ПРЕДЕЛЫ ОБЪЕКТА. Препринт ИБРАЭ № ИБРАЭ-2018-15 — Москва: ИБРАЭ РАН, 2018. — 27 с. — Библиогр.: 22 назв. — 24 экз.

Аннотация

В данной работе описаны принципы и концепция создания комплекса, объединяющего расчетно-прогностические средства анализа выхода радионуклидов за пределы объекта с учетом процессов эволюции барьеров безопасности. Представлены особенности описания процессов эволюции барьеров и структура расчетно-прогностического комплекса, учитывающая взаимодействующие физические и химические процессы.

©ИБРАЭ РАН, 2018

Boldyrev K. A., Kryuchkov D. V., Kovalchuk V. D., Martinov K. V. Application methods of the principles of integrated accounting of the evolution of engineering safety barriers in the assessment of the release radionuclides from the object / D.V. Kryuchkov, K.A. Boldyrev, V.D. Kovalchuk — (Preprint / Nuclear Safety Institute RAS, IBRAE-2018-15). — Moscow : NSI RAS, 2018. — 27 p. — Bibliogr.: 22 items.

Abstract

The principles and the concept of creating a complex that combines calculation and forecasting tools for analyzing migration of radionuclides outside the facility, taking into account the evolution of security barriers is presented. The description of the processes evolution of engineering safety barriers and the structure of the computational and forecasting complex, taking into account the interacting physical and chemical processes are given.

©Nuclear Safety Institute, 2018

Методы применения принципов комплексного учета процессов эволюции ИББ при оценке выхода радионуклидов за пределы объекта

К. А. Болдырев, Д. В. Крючков, В. Д. Ковальчук, К. В. Мартынов

ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ БЮДЖЕТНОЕ УЧРЕЖДЕНИЕ НАУКИ «ИНСТИТУТ ПРОБЛЕМ БЕЗОПАСНОГО РАЗВИТИЯ АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ РОССИЙСКОЙ АКАДЕМИИ НАУК»
115191, Москва, ул. Б. Тульская, 52
тел.: (495) 955-23-06, эл. почта: dvk@ibrae.ac.ru

Содержание

1 Введение	3
2 Особенности описания процессов эволюции ИББ.....	3
3 Структура расчетно-прогностического комплекса DESTRUCT.....	9
4 Формирование исходных данных.....	10
5 Комплексный учет взаимодействующих процессов	12
6 Реализация обмена данными между расчетными комплексами.....	13
7 Учет динамических параметров при оценке распространения радионуклидов.....	18
8 Пример комплексного решения задач эволюции многобарьерной защиты	19
9 Заключение	28
10 Список литературы	29

1 Введение

Современный подход к обеспечению безопасности объектов использования атомной энергии предполагает рассмотрение эволюции объекта с учетом всего многообразия процессов, важных для оценки динамики распространения радионуклидов сквозь каскад изолирующих барьеров безопасности (ИББ). Это определяет необходимость комплексного анализа процессов эволюции ИББ для оценки выхода радионуклидов за пределы объекта.

При этом очевидно, что подход к прогнозированию не является линейным. Изменение свойств каждого из барьеров определяет не только временной лаг конечного результата (первый барьер, следующие) но и изменение свойств каждого из которых оказывает заметное, а, в ряде случаев, и весьма существенное влияние на эволюцию дальнейших барьеров.

Этот подход реализуется в рамках создания расчетного инструмента комплексного анализа изменения свойств ИББ с выходом на параметры распространения радионуклидов, реалистичный учет которых можно моделировать с применением различных инструментов решения миграционных задач.

2 Особенности описания процессов эволюции ИББ

Для достоверного анализа необходимо рассматривать все основные эволюционные процессы и их влияние друг на друга, что, в конечном итоге является базовой информацией при моделировании выхода радионуклидов за пределы объекта. В соответствии с требованиями МАГАТЭ [2], анализ и моделирование ОСП, оказывающих влияние на элементы системы захоронения, являются обязательными составляющими оценки безопасности пункта окончательной изоляции радиоактивных отходов. Процессы выбираются как на основе отечественной законодательной базы [1], так и на основе требований МАГАТЭ, после анализа списка особенностей, событий и процессов (ОСП, в международной терминологии FEPs – Features, Events and Processes [2, 3]). Основные подходы к анализу ОСП изложены в работе [4].

На рисунке 1 показана схема категоризации, используемая в международно признанном списке FEP (International FEP list).

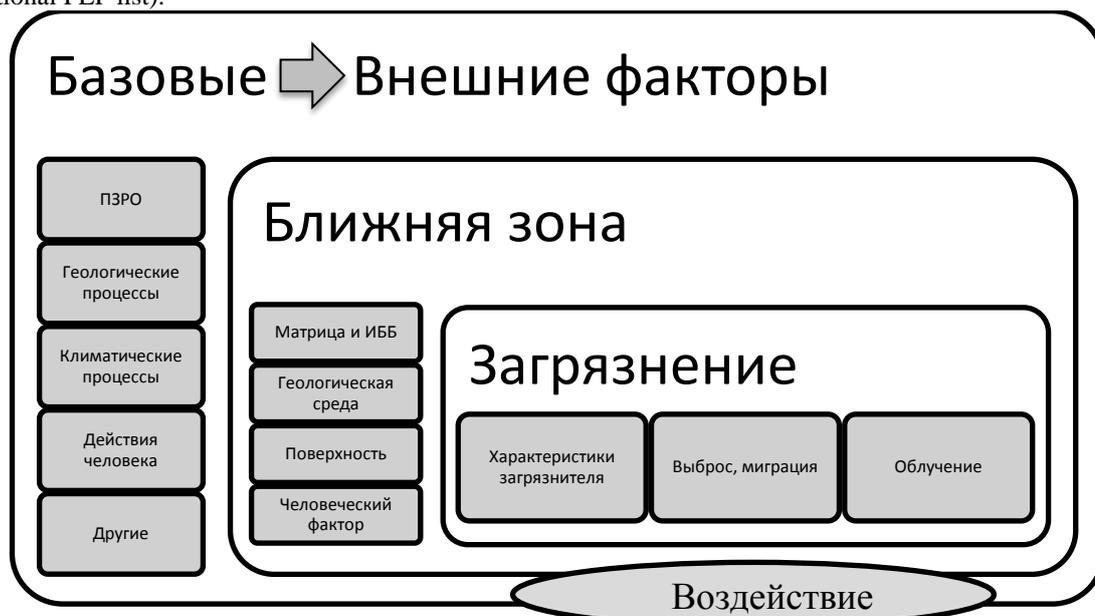


Рисунок 1 – Схема категоризации для ОСП

Схема получения комплексной объединенной модели прохождения радионуклидов сквозь каскад эволюционирующих барьеров безопасности представлена на рисунке 2. В схеме указана возможность создания нового задерживающего барьера, образовавшегося в процессе деградации или трансформации существующего. Все эти процессы должны быть учтены в финальной модели.

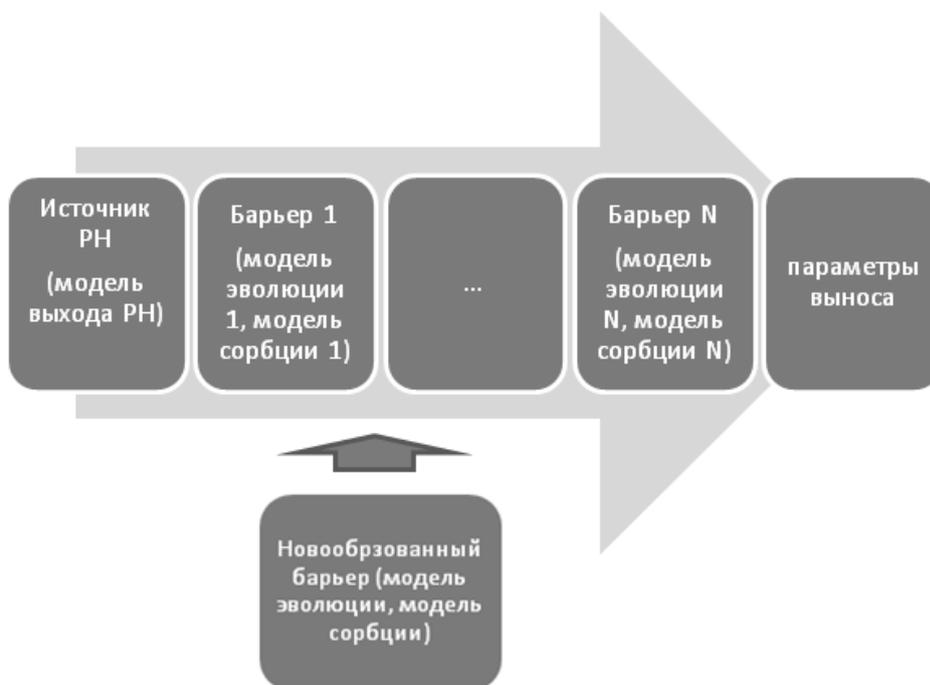


Рисунок 2 – Схема получения комплексной объединенной модели прохождения радионуклидов сквозь каскад барьеров безопасности

Необходимо определить перечень наиболее важных физико-биолого-химических процессов и характеризующих их параметров при формировании структуры разрабатываемого комплекса и подготовке исходных данных для расчета с применением этого комплекса. Основные ИББ, применяющиеся при создании пунктов хранения РАО – бетоны на основе портландцемента, сталь, бентонит, фосфатная стекломатри-

ца для иммобилизации РАО класса 1, шлакобетон для иммобилизации РАО класса 2. Схема конструкции контейнера изолирующего для РАО 1 класса приведена на рисунке 3. Материалом, из которого изготавливаются бидоны, пеналы, чехлы и стаканы, является углеродистая сталь.

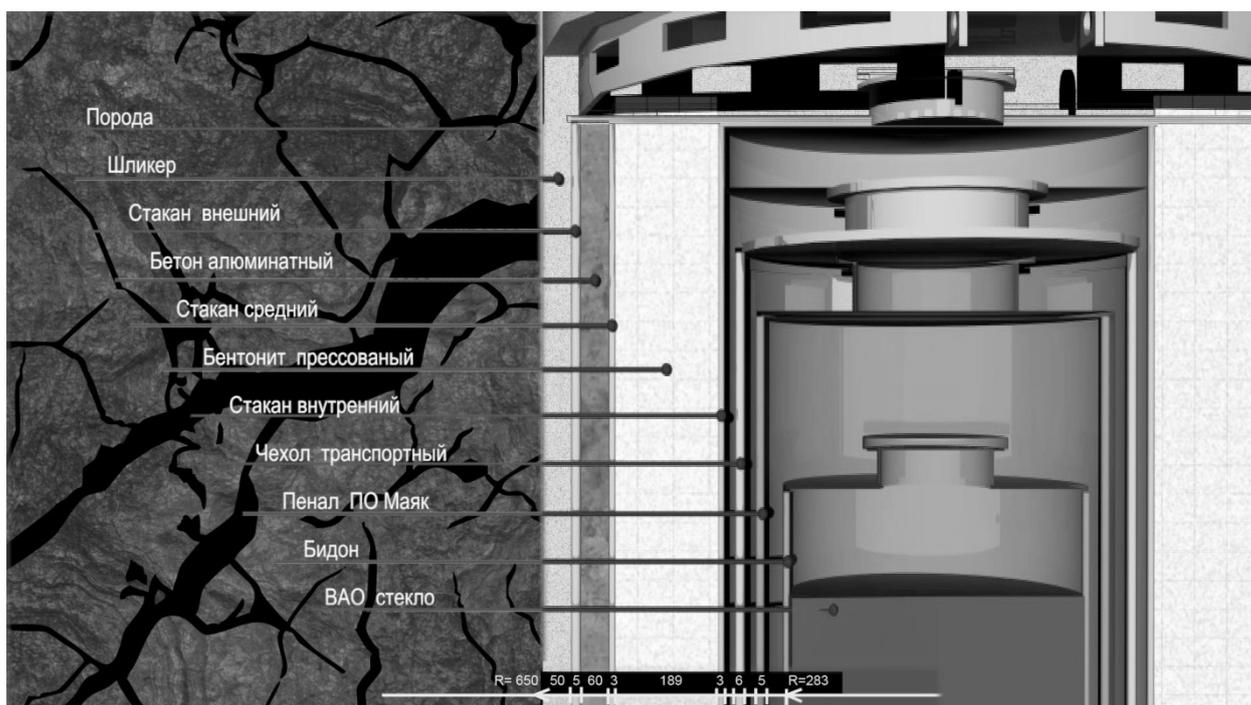


Рисунок 3 – Схема конструкции контейнера изолирующего КИ

Рассмотрим влияние основных процессов, определяющих эволюцию перечисленных материалов, а также изменение миграционных свойств радионуклидов при их прохождении сквозь эти ИББ.

1) Влияние физико-химических процессов на изменение параметров коррозии металлоконструкций.

На скорость коррозии металлоконструкций влияют в основном:

- химический состав самого металла (внутренние свойства самого барьера);
- химический состав окружения, в котором находится металлический барьер безопасности, в особенности водного раствора, контактирующего с металлом;
- температура барьера и окружающей среды.

Химический состав коррозионной среды в значительной степени влияет на скорость коррозии. Так, среда с высокими значениями pH резко понижает скорость коррозии углеродистых сталей – уменьшение скорости коррозии при $\text{pH} > 10$ связывается с образованием на стали защитных гидроксидных пленок оксигидроксидов железа [5]. К тому же pH среды влияет и на тип коррозии.

Моделирование процесса нарушения целостности металлических ИББ базируется на результатах расчета:

- скоростей коррозии;
- параметров механического разрушения.

Агрессивность контактирующей с металлом воды уменьшается с увеличением ее жесткости. С ростом температуры возрастает и агрессивное воздействие воды.

Согласно литературным данным, скорость устоявшейся коррозии углеродистых сталей при контакте с бентонитом соответствует величине менее 1 мкм/год [6, 7]. Является рациональным учитывать при оценке скорости коррозии данные работы [8], в которой рассматривались вопросы, связанные с прогнозированием скорости коррозии трубопроводов тепловых сетей.

В разрабатываемом комплексе используются подходы, основанные как на экстраполяции литературных значений скоростей коррозии, так и на численном расчете скорости коррозии.

Коррозия металлических конструкций, главным образом различных составляющих изолирующих контейнеров, приводит к потере ими гидроизолирующих свойств, но, в то же время, продукты коррозии формируют новообразованные барьеры, что должно быть учтено при расчете миграции радионуклидов.

2) Влияния физико-химических процессов на деградацию бетонных ИББ.

Сам вопрос оценки долговечности материалов на основе портландцемента (бетонов) зависит, прежде всего, от его структуры, химического состава, а также от условий, в которых наблюдается взаимодействие этого материала и окружающей среды. Оценка эволюции бетона связана с пониманием его химического взаимодействия с окружающей средой. Так, согласно классификации разрушения бетона Москвина, коррозия «бетономатериалов» разделена на три основных типа:

- процессы растворения основных составляющих цементного камня (при фильтрации воды сквозь бетон сначала выносятся легкорастворимые гидроксиды натрия, затем кальция);
- образование более рыхлых, чем исходный материал продуктов коррозии, которые ослабляют структуру цементного камня (а также могут быть вынесены с потоком фильтрующейся воды);
- образование в массиве цементного камня, в его порах, трещинах и капиллярах продуктов взаимодействия составляющих бетона с фильтрующейся водой, которые обладают большим объемом и могут приводить к разрушению бетона.

При этом, одним из основных, разрушающих бетонные ИББ физических процессов является термическое нагружение (например, при циклическом замораживании/размораживании), а также периодически повторяющиеся процессы намокания и высыхания.

Таким образом, для создания корректной задерживающей модели сорбции ряда радионуклидов предлагается следующая последовательность действий:

- определение ряда переносимых из источника радионуклидов, выбор оптимальных моделей сорбции и осаждения (для редокс-чувствительных элементов, а также радионуклидов, которые могут образовать нерастворимые минеральные фазы при их прохождении сквозь бетонный барьер);
- описание вида бетона, оценка его механических и физических свойств;
- создание модели эволюции бетона во времени с учетом физических, биологических, химических преобразований;
- финальное моделирование с оценкой параметров переноса и построением временной зависимости прохождения радионуклидов во времени.

3) Влияние физико-химических процессов на изменение параметров эволюции бентонита во времени.

Эволюция бентонитового буфера может протекать по нескольким сценариям:

- эволюция с разрушением бентонита на минеральном уровне (например, в процессе иллитизации или цементации бентонита продуктами коррозии металлических ИББ, а также хлоритизации);
- эволюция без разрушения бентонита на минеральном уровне – происходит изменение сорбционных и ионообменных свойств вследствие контакта с подземными водами, значительно отличных по составу от поровой воды бентонита;
- комплекс вышеуказанных путей.

Наиболее неблагоприятный процесс эволюции бентонита – иллитизация монтмориллонита при воздействии высоких температур. Иллитизация может приводить к образованию в материале буфера пустот и пор. Неблагоприятные для развития этого процесса факторы – высокая температура и высокие концентрации калия в контактирующем растворе, при этом Na, Ca и Mg замедляют иллитизацию в соотношении 1:10:30 [9].

Основным результатом выполненных ранее многочисленных исследований является то, что при температурах < 110 °С иллитизация монтмориллонита вообще не происходит, по этой причине считается, что иллитизация бентонита в хранилищах с температурой менее 110°С может быть исключена из рассмотрения [10, 11].

4) Влияние физико-химических процессов на изменение параметров эволюции стекломатрицы.

В процессе растворения стекла обычно наблюдается несоответствие состава раствора составу растворяющейся твердой фазы. Это объясняется образованием твердых продуктов гидролиза матрицы стекла, выпадением малорастворимых соединений. Так, при растворении алюмосиликатного стекла, растворимые ионы кремнекислоты выходят в раствор, а на поверхности стекла остаются малорастворимые оксигидроксиды алюминия, железа.

На скорость растворения стекломатрицы существенное влияние оказывают температура, кислотность, а также наличие в растворе ионов, составляющих макрокомпонентный состав стекломатрицы.

5) Влияние физико-химических процессов на перенос радионуклидов.

Те или иные радионуклиды могут проявлять различные свойства. Одни – склонны к процессам сорбции и хорошо замедляются природными сорбционными фазами (Со, Am и пр.), другие склонны к процессам коллоидообразования (например, Pu), третьи склонны к биосорбции. Все эти свойства зависят от характеристик индивидуальных радионуклидов, их свойств, склонности включения в биопроцессы. Схема поведения радионуклидов в условиях окружающей среды отражена на рисунке 4.

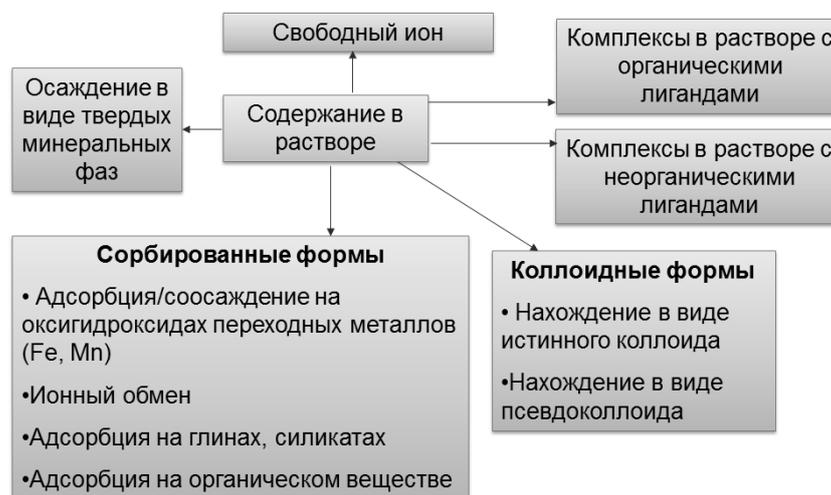


Рисунок 4 – Схема нахождения радионуклидов в условиях окружающей среды

Подвижность элементов с уменьшением ионного радиуса и увеличением заряда иона снижается, что объясняется большим поляризующим действием, а, следовательно, и большей склонностью к комплексообразованию, процессам полимеризации, образованию минеральных фаз [14].

Для корректного прогнозирования эволюции пунктов захоронения РАО следует рассматривать геохимические процессы, контролирующие поведение радионуклидов в условиях окружающей среды, а также их описание в геохимических моделях.

Факторы, влияющие на сорбцию:

- кислотность среды (рН);
- окислительно-восстановительные условия среды (Eh);
- концентрация комплексонов;
- концентрация самого сорбата (при высокой концентрации могут образовываться твердые фазы, что может завышать K_d);
- ионная сила;
- свойства сорбата;
- кинетика.

Обычно на природных сорбентах сорбция катионов показывают уменьшение сорбции с уменьшением ионного радиуса (кроме иллитоподобных минералов и Cs):

- $Cs^+ > Rb^+ > K^+ > Na^+ > Li^+$
- $Ba^{2+} > Sr^{2+} > Ca^{2+} > Mg^{2+}$
- $Hg^{2+} > Cd^{2+} > Zn^{2+}$

Для переходных металлов электронная конфигурация более важна, чем ионный радиус:

- $Cu^{2+} > Ni^{2+} > Co^{2+} > Fe^{2+} > Mn^{2+}$

Классы радионуклидов по механизмам их сорбции и фиксирования (осаждения в виде минеральных фаз, примером такого фиксирования является восстановительное осаждение редокс-чувствительных элементов при их прохождении сквозь восстановительный барьер) материалами ИББ приведены в таблице 1.

Таблица 1 – Классы радионуклидов по их механизмам сорбции и фиксирования материалами ИББ

Класс	Радионуклиды	Описание механизмов сорбции и фиксирования ИББ
1	Na, K, Cs*, Sr, Ra (металлы основных подгрупп 1 и 2 групп периодической таблицы)	Ионный обмен
2	Pu**, U**, Tc**, Se**, S**, ТУЭ, РЗЭ, С**, Ti, Eu, РЗЭ	Сорбция по механизму комплексообразования на поверхности (в случае непревышения предела растворимости минеральных фаз) Образование минеральных фаз как при пересыщении, так и в процессе окислительно-восстановительных реакций
3	Fe**, Mn**, Ni, Co	Ионный обмен + сорбция по механизму комплексообразования на поверхности вмещающих фаз
4	I, Cl, Br, C	Практически несорбируемые
* – требуется знать количество минералов группы иллита, а также концентрации калия и аммония в контактирующем растворе воды; ** – элемент чувствителен к восстановлению		

Расчет K_d для элементов 1 класса может быть корректно реализован лишь при знании емкости катионного обмена (ЕКО), бентонита и состава воды, контактирующей с бентонитом (определяющей состав ионообменного массива).

Расчет K_d для элементов 2 и 3 класса осложнен тем, что требуется знать гранулометрический и минералогический состав материала барьера безопасности. Затем требуется создать модель сорбции. И только после этого можно оценивать влияние изменяющихся химических условий на значения K_d . Элементы 4 класса, как правило, сорбируются очень ограниченно.

Степень растворимости радионуклидов определяется не только сорбцией, но и образованием/растворением их минеральных фаз. Пределы растворимостей разных радионуклидов при реалистичной (реал.) и консервативной (конс.) оценке приведены в таблице 2 (согласно [15]).

Таблица 2 – Пределы растворимостей разных радионуклидов, моль/л в различных природных водах (моль/л)

Элемент	Контролирующая растворимость фаза	Среда	
		Пески, глины	Граниты
Am	Am(OH) ₃ Am(OH) _{3(ам.)}	2,6x10 ⁻⁶ 6x10 ⁻⁵ (конс.)	2,6x10 ⁻⁶ 6x10 ⁻⁵ (конс.)
C	Кальцит, CaCO ₃ , доломит (Ca _{0,5} Mg _{0,5} CO ₃)	4-10x10 ⁻³	4-10x10 ⁻³
Cl		хорошо растворим	хорошо растворим
Se	Восст., FeSe ₂	1x10 ⁻⁸ (реал.) 6x10 ⁻⁷ (конс.)	1x10 ⁻⁸ (реал.) 6x10 ⁻⁷ (конс.)
	Окисл.	1x10 ⁻⁸	1,18x10 ⁻²
Sr	Целестин, SrSO ₄ Стронцианит (SrCO ₃)	2,77x10 ⁻³ (конс.) 1x10 ⁻³ (реал.)	2,77x10 ⁻³ (конс.) 1x10 ⁻³ (реал.)
	Ra	RaSO ₄	1,29x10 ⁻⁷
Zr	Zr(OH) ₄	5 x 10 ⁻⁷	5x10 ⁻⁷
Pd	Pd(OH) ₂	4x10 ⁻⁶	4x10 ⁻⁶
I		хорошо растворим	хорошо растворим
Cs		хорошо растворим	хорошо растворим
Th	Th(OH) ₄ Th(OH) _{4(ам.)}	1,176x10 ⁻⁷ (конс.) 2x10 ⁻⁹ (реал.)	1,176x10 ⁻⁷ (конс.) 2x10 ⁻⁹ (реал.)
	Sn	Касситерит Sn(OH) ₄	6x10 ⁻⁸ (конс.) 1,6x10 ⁻⁸ (реал.)
Sb	Восст. среда	1x10 ⁻⁴	1x10 ⁻⁴
	Невосст. среда	1x10 ⁻⁴	2,71x10 ⁻⁴
Pa	Pa ₂ O ₅	3,16x10 ⁻⁷	3,16x10 ⁻⁷
Nb	Nb ₂ O ₅	1,4x10 ⁻⁵ (конс.) <10 ⁻⁸ (реал.)	1,4x10 ⁻⁵ (конс.) <10 ⁻⁸ (реал.)
	Tc	Восст. среда	1x10 ⁻⁸
U	Невосст. среда	хорошо растворим	хорошо растворим
	Восст. среда UO _{2(ам., сост.)}	7x10 ⁻⁵ (конс.) 1x10 ⁻⁸ (реал.)	7x10 ⁻⁵ (конс.) 7,2x10 ⁻⁶ (реал.)
	Невосст. среда, беккерелит Ca(UO ₂) ₆ O ₄ (OH) ₆ :8H ₂ O	7x10 ⁻⁵ (конс.) 7,2x10 ⁻⁶ (реал.)	Высокая (конс.)
Np	NpO ₂ :2H ₂ O	2x10 ⁻¹⁰ (реал.)	2x10 ⁻¹⁰ (реал.)
Pu	Pu(OH) _{4(ам.)}	2,7x10 ⁻⁸ (конс.) 5,8x10 ⁻⁹ (реал.)	2,7x10 ⁻⁸ (конс.) 5,8x10 ⁻⁹ (реал.)
	Cm	Cm(OH) ₃	3,5x10 ⁻⁶ (реал.) 6x10 ⁻⁵ (конс.)

Перенос радионуклидов в коллоидном виде может наблюдаться на следующих типах коллоидов:

- биокolloиды (перенос в сорбированной форме на поверхности или внутри микроорганизмов);
- перенос в сорбированном состоянии на органическом веществе (фульвино-гуминовом материале, а также на продуктах неполного биоразложения органического вещества, не достигших еще состояния истинно растворенных фульвиновых и гуминовых кислот);
- перенос в сорбированной форме на коллоидных частицах глин;
- перенос в сорбированной форме на коллоидных частицах оксигидроксидов переходных металлов (Fe, Mn);

- перенос в истинно коллоидной форме в виде коллоидов минеральных фаз радионуклидов.

В работе [16] отмечено, что моделирование миграции Pu без учета образования коллоидных частиц неоправданно. Такие радионуклиды, как ^{239}Pu и ^{237}Np , обладая крайне малой растворимостью своих основных оксидных твердых минеральных фаз, образование которых начинается уже при столь малой концентрации этих элементов как 10^{-10} моль/л, тем не менее, могут переноситься в растворе в коллоидном состоянии, формируя коллоиды своих гидроксидных фаз. В работе [17] перечислены процессы, включенные в образование и перенос коллоидных частиц. В процессе растворения матрицы РАО, высвобождаемые радионуклиды в коллоидной форме, как в сорбированной форме на коллоидных частицах, так и в форме коллоидных частиц минеральных фаз самих радионуклидов, могут создавать значительную долю в переносимом массиве радионуклидов, превышающую перенос радионуклидов в растворенном виде.

Таким образом, важность учета коллоидного переноса при оценке безопасности пунктов изоляции не подлежит сомнению, некоторые авторы, например [18, 19], указывают, что влияние коллоидного переноса может достигать 80-90% от общего переноса РН. В работе [20] установлено, что перенос Am, Cm, Pu в подземных водах в дальней зоне оз. Карачай в значительной степени осуществляется в коллоидной форме. Сорбентами-коллоидами, переносимыми на себе актиниды, могут выступать как оксигидроксиды железа, так и марганца [20].

Однако существуют факторы, значительно снижающие вероятность образования коллоидных частиц. Известно, что на образование и перенос коллоидных частиц критически важное влияние оказывает химический состав раствора, а также тип растворенных ионов – коагуляция коллоидных частиц вызывается противоположно заряженными заряду коллоидных частиц ионами, а коагулирующее действие этих противоположно заряженных ионов возрастает с увеличением числа их зарядов по следующей ориентировочной зависимости – $1/2^6/3^6$ для одновалентных, двухвалентных и трехвалентных ионов.

Для полноценного прогнозирования переноса радионуклидов в коллоидной форме требуется создавать геохимические модели, полноценно учитывающие геохимические превращения. Примером подобной модели является модель Appelo [21], в которой создана в ПК PhreeqC модель переноса U на частицах оксигидроксидов Fe (III) с учетом петизации коллоидных частиц при низкой минерализации раствора и их осаждением – при более высокой минерализации. Критерии переноса заряженных коллоидных частиц авторы описывают при помощи широко известной зависимости. При значении SAR (отношение сорбции натрия) более 11, перенос коллоидных частиц становится значимым:

$$\text{SAR} = [\text{Na}] \times 10^{1.5} / [\text{Ca}]^{0.5} \quad (1)$$

где [Na] и [Ca] – концентрация Na и Ca.

Необходимо указать, что при выщелачивании алюмофосфатной матрицы в раствор будут поступать большие количества фосфат-ионов. Моделирование растворимости фосфатных фаз радионуклидов осложняется неполнотой содержания существующих баз термодинамических равновесий по фосфатным минеральным фазам радионуклидов в высокоминерализованных растворах. Требуется провести дополнительные исследования по уточнению данных по фосфатным минеральным фазам радионуклидов и прочих компонентов рассматриваемой системы.

Вследствие комплекса неопределенностей, а также недостатка термодинамических и кинетических параметров зачастую приходится использовать консервативный подход при моделировании переноса радионуклидов сквозь барьеры безопасности, согласно которому, для оценки миграции, выбирается наиболее отрицательный параметр.

3 Структура расчетно-прогностического комплекса DESTRUCT

Комплексный учет всех описанных параметров эволюции ИББ и их влияния на изменение миграционных свойств будет важен при решении следующих задач расчетного прогнозирования:

- изменения состояния барьеров под действием химических процессов, происходящих внутри массива барьеров безопасности;
- изменения состояния барьеров под действием изменения температуры и давления в процессе эволюции объекта;
- изменения состояния барьеров под действием физико-химических процессов, происходящих на границе барьеров безопасности из различных материалов и сред;
- путей и стадий эволюции различных типов материалов барьеров безопасности (бетон, стекло, глинистые материалы разного типа, металл, материал буферной засыпки);
- миграции конкретных радионуклидов и продуктов их распада при их прохождении сквозь барьеры безопасности, в том числе с учетом влияния температуры и прочих факторов на процесс фиксации.

В связи с этим формируется расчетный комплекс, перечень модулей которого должен позволять выполнять согласованное решение описанных задач. Помимо основных блоков исследования эволюции материалов и моделирования миграции радионуклидов необходимо иметь сервисные модули, обеспечивающие

формирование, обработку и форматированную подготовку исходных данных для расчетов, а также обработку результирующей информации, полученной в ходе работы каждого блока комплекса.

Основная структура такого комплекса упрощенно представляется несколькими основными функциональными блоками, что отображено на рисунке 5:

- блок обработки данных выполняет преобразование исходных данных в форматы данных входящих в комплекс расчетных модулей, а также обработку поставляемых данных внешних модулей в вид, доступный для автоматического учета расчетными модулями;
- блок моделирования процессов разрушения барьеров включает модули расчета разрушения матриц, выхода радионуклидов, деградации барьеров безопасности, а также изменения их свойств;
- блок анализа и учета химических процессов, позволяющий определить основные миграционные параметры на основе моделирования динамики химических взаимодействий, происходящих в ближней зоне (на рисунке не представлен, поскольку используется совместно со всеми расчетными блоками);
- блок моделирования миграции осуществляет расчет распространения радионуклидов с учетом динамики изменения свойств материалов матрицы и ИББ камерным методом и в 3D геометрии;
- блок подготовки результатов расчетов служит для формирования результирующих файлов с целью передачи их другим комплексам в качестве исходных данных, а также представления динамики изменения параметров в виде графиков и таблиц при оформлении отчетности;
- блок взаимодействия между расчетными и сервисными блоками обеспечивает своевременную передачу информации с запуском соответствующих модулей (на рисунке не представлен, так как является внутренним модулем и играет роль постоянно действующего сервиса).



Рисунок 5 – Функциональная структура РПК Б

Каждый блок представляет собой совокупность расчетных модулей, обеспечивающих решение общей задачи в рамках данного блока.

4 Формирование исходных данных

Блок обработки данных оперирует информацией, источниками которых являются открытые публикации, результаты практических исследований, справочные базы данных, а также рассчитываемые параметры конкретных барьерных материалов, мигрирующих радионуклидов, растворов для конкретных условий и сценариев эволюции объектов.

Общая структура всех модулей блока отражена на рисунке 6. Расчетным ядром блока является модуль формирования динамики миграционных свойств.

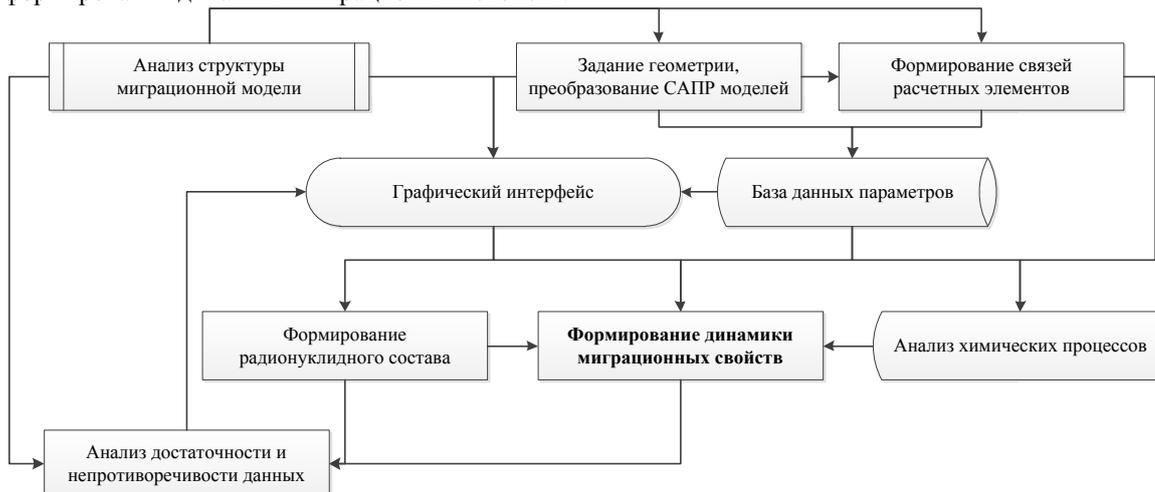


Рисунок 6 – Структура модулей обработки данных

На основе известных (заданных) принципиальных особенностей развития сценария эволюции возможно определить и впоследствии уточнить (в том числе, расчетными средствами) конкретные параметры каждого исследуемого процесса и явления.

Основными важными параметрами, которые необходимо знать при расчетах, являются: радионуклидный состав и активность источника, коэффициенты выщелачивания (параметры растворимости матриц), распределения, фильтрации, сорбции, диффузии, прочие коэффициенты и параметры (рисунок 7).

Радионуклидный состав					
Радионуклид	Атомный вес, а.е.м.	Постоянная распада, 1/с	Активность, Бк/м ³	k выщелачивания, 1/с	k диффуз, 1/с
Se_79	78.91	1.066e-005	1e+010	0.04,0.02,0	0,0.001,0
Sr_90	90	0.0238	1e+010	0.05,0.03,0	0.00001,0.002,0

Рисунок 7 – Радионуклидный состав источника

Подмодуль анализа структуры миграционной модели открывает исходный файл этой модели, считывает все компоненты, преобразуя их в набор расчетных элементов (камер и связей), выбор которых должен осуществляться в интерфейсе с целью формирования актуальной схемы взаимодействия с модулем расчета миграции. Фрагмент проекта интерфейса подмодуля формирования связей расчетных элементов миграции приведен на рисунке 8.

Привязка источника	
Начальная активность задается в камерной модели в элементе	Initial_Amount
Выход активности характеризует элемент камерной модели	Leaching2
Элемент, характеризующий Коэффициент диффузии	Kd
Элемент, характеризующий Коэффициент сорбции	S
Источник в 3D моделировании ассоциируется с элементом	Glass

Рисунок 8 – Задание привязки элементов источника к камерной модели

Помимо основных параметров для расчетов необходимо задать коэффициенты выщелачивания, диффузии, фильтрации, сорбции и пр. для каждого барьера в конкретных условиях, характерных для ближней зоны исследуемого объекта (рисунок 9). В дальнейшем планируется использовать наполняемые базы данных с целью автоматизированного задания параметров моделей.

Многие параметры могут быть восстановлены и уточнены с применением блока учета химических процессов на основе информации о минеральном и химическом составе барьеров и порового раствора (воды, содержащей растворенные примеси).

Радионуклид			
Название	Se_79	Атомный вес	78.91
Постоянная распада, ln2/T	1.066e-005	Активность, Бк/м3	1e+010

Миграционные свойства		
Материал	k выхода, 1/с	k диффуз, 1/с
Bentonite_1	0.04	0
Bentonite_2	0.02	0.001
Bentonite_3	0	0

Рисунок 9 – Миграционные свойства радионуклидов

Все параметры, характеризующие процессы эволюции барьеров, должны быть привязаны как к миграционным моделям, так и геометрически к физическим объектам, образующим элементы конструкции. В этих целях используется подмодуль задания геометрии, который должен на основе анализа САПР модели предлагать соответствие расчетных элементов элементам конструкции и позволять пользователю/эксперту задать корректную связку расчетных элементов.

5 Комплексный учет взаимодействующих процессов

Описанные ранее блоки моделируют поведение каждого барьера безопасности в зависимости от условий его существования. Результаты моделирования интегрируются в базу знаний в виде файлов сценариев изменения параметров от времени. Дальнейшие расчеты эволюции других барьеров, а также миграции р/н выполняются с учетом сценариев изменения свойств барьеров и характеристик среды.

Блок моделирования процесса разрушения барьеров безопасности предполагает учет не только их физического разрушения, но и постепенного последовательного изменения физико-химических и миграционных параметров в процессе эволюции барьеров.

Используемые математические методы разрабатываемых модулей на данный момент охватывают разрушение стекло- и бетономатрицы с выходом радионуклидов, эволюцию бентонитовых, стальных и бетонных барьеров безопасности с изменением их фильтрационных свойств.

Общие параметры, характеризующие исследуемый сценарий эволюции источника, могут задаваться для любых типов матриц и являются определяющими для моделирования миграционных процессов.

Задание такого сценария уже принципиально достаточно для консервативного учета параметров выхода радионуклидов в ближнюю зону.

Полноценный расчет скорости выхода радионуклидов должен выполняться с учетом:

- заданных параметров источника, свойств материалов матрицы, характеризующих выход и миграцию радионуклидов в растворе;
- физических процессов разрушения матриц и выхода радионуклидов с учетом конкретных условий и параметров окружающей среды, моделируемых с применением модулей выщелачивания из стекломатрицы и бетономатрицы;
- химических процессов, определяющих возможное равновесное содержание радионуклидов в получаемом растворе, расчет которых производится с применением модуля расчета химических процессов, описываемого далее.

Основными процессами, важными для оценки безопасности объекта, при разрушении его барьеров безопасности, характеризующими источник, являются разрушение матрицы и выход содержащихся в ней радионуклидов в ближнюю зону.

В итоговом расчете миграции матрица ассоциируется с определенным элементом модели, параметры которого модифицируются с учетом развития соответствующих процессов ее деградации и выхода радионуклидов.

Выход радионуклидов из бетономатрицы определяется, помимо параметров содержащихся в ней радионуклидов, следующей структурой данных:

- геометрическими параметрами, влияющими на масштаб, характер и интенсивность выхода радионуклидов;
- параметрами содержащегося в матрице цементного камня, влияющего на прочность цементной связи.

Все эти параметры необходимы для моделирования поведения конкретного элемента бетонной матрицы из структуры миграционной модели. Частично могут использоваться справочные значения из баз данных, но для реалистичного описания объекта необходимо задавать значения, близкие к реальным, полученные в результате практических экспериментов на конкретном объекте.

Структура модуля прогнозирования эволюции бентонитовых барьеров на данный момент предполагает возможность оценки иллитизации, степени уменьшения количества монтмориллонита с течением времени в зависимости от температуры и химико-минерального состава водной среды. Оценка содержания бентонита выполняется на основе предварительного выбора расчетного метода (Huang/Pytte/Quadros), и задания начальных данных: исходной концентрации, значения pH, концентрации калия.

Оценка влияния скорости поглощения калия на изменение состава бентонита с учетом конкретного состава раствора реализуется использованием блока химических взаимодействий.

Структура модуля прогнозирования динамики эволюции бетонных ИББ предполагает оценку процессов карбонизации бетона, а также кислотной и сульфатной коррозии в зависимости от температуры, содержания воды, цемента, кальция, сульфатов и пр.

Кислотная и сульфатная коррозии оцениваются с применением блока учета химических процессов для конкретной стадии разложения бетона (характеризуемой значением pH в зависимости от объема профильтрованной сквозь него воды) наличия и характеристик арматуры, объема сульфатов, глубины карбонизации и пр.

Структура модуля прогнозирования динамики эволюции стальных ИББ предполагает возможность определения времени и характера разрушения стальных элементов конструкции в зависимости от времени, температуры и агрессивности среды.

Блок учета химических процессов используется практически всеми расчетными модулями, для которых важно учесть различные аспекты эволюции материалов.

Основным расчетным модулем блока служит модуль расчета динамики изменения химических свойств материалов, который на основе выбранного в графическом интерфейсе шаблона химических процессов, с учетом модифицированных исходных данных (радионуклидный и минеральный состав, значение pH, температура, давление и пр. характеристик раствора, плотность, пористость и др. параметры материала), заданного сценария развития химических процессов, формирует исходный файл и запускает расчет химических процессов PhreeQC [22].

Результаты расчетов автоматически интегрируются в базу данных объекта исследования, в поля интерфейса задания параметров миграции и в саму итоговую миграционную модель объекта.

6 Реализация обмена данными между расчетными комплексами

Принципы создания комплекса, объединяющего различные, разработанные расчетно-прогностические средства анализа безопасности должны обеспечивать возможность системных решений проблем обоснования долговременной безопасности объектов (пунктов захоронения РАО). На основе этих принципов должна формироваться структура обмена информацией между расчетными программами.

На настоящий момент обмен информацией реализован путем формирования и передачи сценариев изменения свойств материалов и параметров процессов на весь расчетный период с учетом результатов предварительно полученных в других комплексах.

Сценарии представляют собой файлы, заполненные набором значений параметров привязанных к временному периоду расчетного процесса. Обмен такими файлами не должен влиять на механизмы расчетов конкретной программы, но позволит учесть результаты других комплексов.

Объем данных, передаваемых от одного комплекса другим, обусловлен набором параметров, требующихся каждому комплексу для решения конкретной задачи.

В рамках данного подхода рассматривается объединение следующих направлений моделирования: тепловыделение за счет радиоактивного распада, теплопередача, напряженно-деформированное состояние конструкций и вмещающего массива, эволюция иммобилизирующей РАО матрицы и барьеров безопасности, а также выход радионуклидов за пределы матрицы и барьеров безопасности, распространение радионуклидов в геологической среде.

Анализ процессов и явлений, характерных для повышенных температур упаковок радиоактивных веществ выполняет ПК FENIA, в результате работы которого оценивается пространственное распределение температуры в материалах, в том числе и температуры поверхностей элементов.

Источником изменения теплового режима является в первую очередь остаточное тепловыделение радиоактивных отходов, которое оценивается ПК CORIDA.

Оценка прочности требует решения задач оценки напряженно-деформированного состояния (НДС) целого ряда объектов на разных стадиях разработки, заполнения и функционирования хранилища РАО. ПК FENIA предполагает оценку НДС под действием различных силовых нагрузок (силы веса, тектонические напряжения, тепловые нагрузки и т.д.).

Оценку сроков сохранения защитных свойств барьерных материалов и расчет выхода радионуклидов за их пределы осуществляет ПК DESTRUCT. Любой барьер, по сути, многофункционален. Барьеры выполняют функции физической и гидравлической изоляции, а также функцию сорбционной задержки проходящих через них радионуклидов. В качестве результата расчета оценивается динамика изменения физическо-химических свойств материалов барьеров и формирование потока радионуклидов, выходящих за пределы ИББ.

Моделирование процессов переноса радионуклидов в геологических средах осуществляется с помощью ПК Gera, результатом работы которого являются оценки пространственного распределения концентрации радионуклидов, в том числе оценки концентраций радионуклидов выходящих в зоны разгрузки подземных вод и в места потенциального потребления и пользования.

Основным результатом расчетного анализа при обосновании безопасности ЯРОО и проводимых на нем работ, связанных с радиоактивными материалами, является прогнозируемая дозовая нагрузка на человека, которую оценивает ПК CORIDA.

Пример данных, передаваемый между основными комплексами для решения актуальной в настоящий момент задачи обоснования безопасности ПГЗРО в Нижнеканском массиве сформирован и представлен в таблице 3.

Таблица 3 – Концептуальный перечень параметров для обмена информацией между основными внешними комплексами

ПК	от FENIA	от DESTRUCT	от GERa	от CORIDA
FENIA	–	Изменение минералогического и хим. составов грунтовых вод, физических свойств материалов	Параметры внешней среды: давление, водонасыщенность	Пространственное и временное распределение тепловыделения
DESTRUCT	Поле температур в пределах системы ИББ и динамика его изменения	–	Водный режим объекта, напоры, давления	Пространственное и временное распределение излучения
GERa	Температура, тепловой поток на границе породы и шликера	Динамика выхода радионуклидов и газовой фазы за пределы ИББ на границе породы и шликера	–	–
CORIDA	–	Изменение геометрии элементов, удельной активности и концентрации р/н	Концентрации радионуклидов	–

Схема полномасштабного взаимодействия используемых в данной задаче вычислительных средств, модулей и компонентов комплекса представлена на рисунке 10.

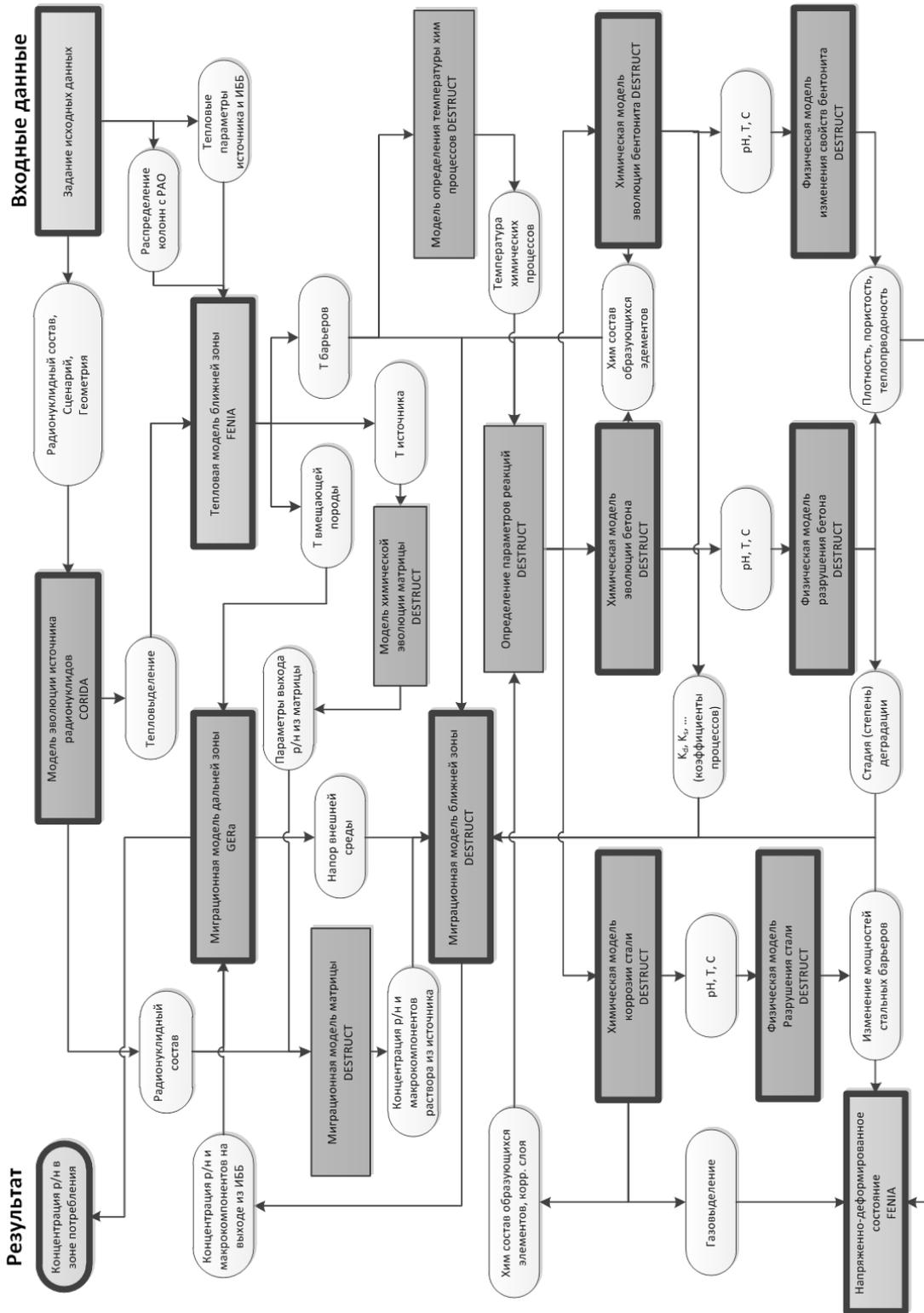


Рисунок 10 – Схема взаимодействия модулей в комплексе

Упрощенно ее можно представить в виде взаимодействия крупных расчетных блоков (рисунок 11).

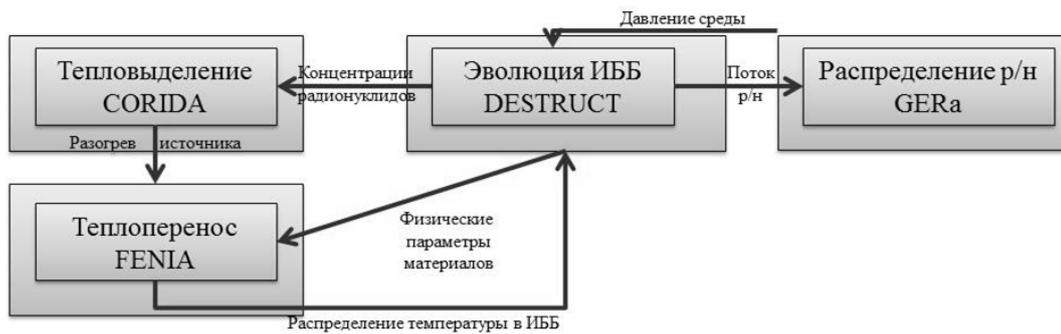


Рисунок 11 – Упрощенная схема взаимодействия блоков в комплексе

Тепловыделение за счет радиоактивного распада радионуклидов в ближней зоне (в пределах границы инженерных барьеров безопасности) рассчитывает ПК CORIDA на основе информации о концентрациях радионуклидов, получаемой из ПК DESTRUCT. Актуальную температуру поверхностей барьеров безопасности рассчитывает ПК FENIA на основе информации ПК CORIDA о тепловыделении. Также ПК FENIA оценивает напряженно-деформированное состояние конструкции на основе физических свойств, получаемых от ПК DESTRUCT. Оценка миграционных параметров для моделирования в ПК DESTRUCT распространения в ближней зоне проводится с учетом актуальной температуры поверхностей барьеров безопасности, оцененной ПК FENIA с учетом теплопереноса. Давление грунтовых вод и окружающей среды для оценки в ПК DESTRUCT распространения радионуклидов обеспечивает ПК Gera, для которого исходными данными о радионуклидном составе и активности служат результаты расчетов ПК DESTRUCT.

Для реализации обмена между расчетными комплексами разработан графический интерфейс, позволяющий для каждого элемента модели задать как исходные параметры, начиная от материала, из которого он создан, до корректировки геометрии, так и перечень параметров, необходимых каждому комплексу, участвующему в расчетах этого объекта и передающихся при обмене.

Графический интерфейс представляет собой платформу редактирования 3D (САПР) моделей с возможностью выбора материалов, задания сценариев развития процессов и обменных параметров, используемых различными кодами (рисунок 12).

При запуске инструмента происходит анализ состава заданной 3D модели объекта и сравнение ее содержимого с перечнем заданных ранее элементов.

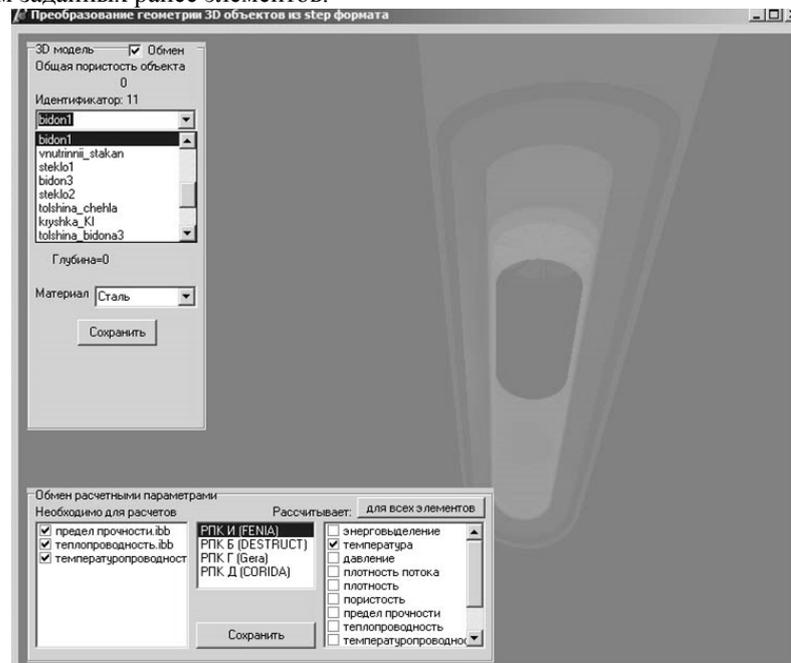


Рисунок 12 – Внешний вид графического интерфейса задания обменных параметров. Выбор элемента модели

При выборе в основном меню конкретного элемента (на рисунке 12 «bidon1»), он подсвечивается в графическом виде красным цветом, остальные элементы становятся полупрозрачными, чтобы можно было ориентироваться о положении, а в списке материалов автоматически выбирается отождествленный ему материал с соответствующими свойствами. Материал в дальнейшем в любой момент можно изменить вручную, нажав потом кнопку «Сохранить».

На первых этапах работы с новым объектом необходимо для каждого расчетно-прогностического комплекса (РПК) справа задать (выбрать галочкой из представленного списка) рассчитываемые им для выбранного элемента модели параметры (желательно выбрать все параметры, которые он потенциально сможет определить). На основе этих данных слева от выбора РПК формируется перечень исходных параметров, которыми могут пользоваться другие расчетные средства, если задана возможность их расчета. В данном примере (на рисунке 12) выбран РК FENIA, который для элемента «bidon1» может посчитать его температуру с учетом использования параметров предел прочности, теплопроводность и температуропроводность, оцененную комплексом РК DESTRUCT (о чем говорит расширение файла «.ibb»), но при выборе файла практически не важно кем рассчитывается данный параметр, важно что выбранное значение его будет уточнено).

Параметры предел прочности, теплопроводность и температуропроводность были заданы в качестве результатов расчета РК DESTRUCT с учетом исходной температуры, посчитанной РК FENIA(рисунок 13).

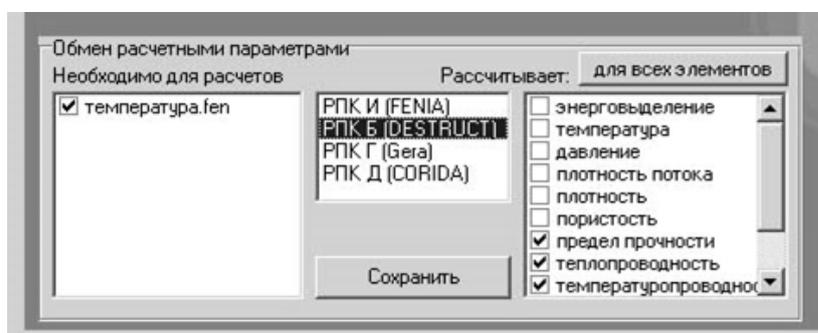


Рисунок 13 – Внешний вид графического интерфейса задания обменных параметров. Задание обменных параметров РК DESTRUCT

Аналогичным образом задаются все параметры, которыми должны обмениваться комплексы и которые используются в расчетах. На примере элемента стeklo2 (матрица радионуклидов высокоактивных РАО), выбранного из списка элементов модели, для РК CORIDA в качестве исходных данных задается активность радионуклидов, содержащихся в матрице в заданных временных интервалах, а в качестве результатов формируется энерговыделение (рисунок 14).

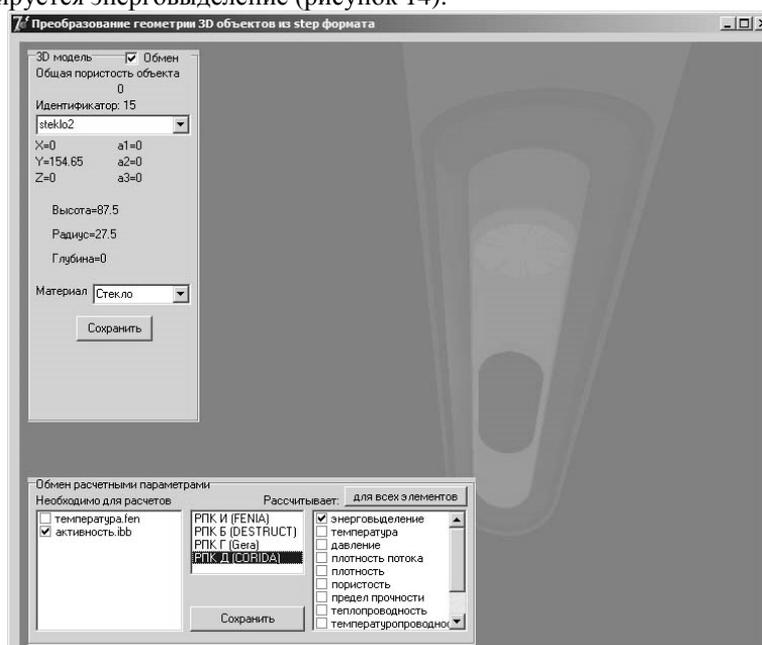


Рисунок 14 – Внешний вид графического интерфейса задания обменных параметров. Задание обменных параметров РК CORIDA.

На основе результатов расчетов энерговыделения РПК CORIDA задаются исходные параметры для РПК FENIA («энерговыделение.cor» на рисунке 15), с учетом которых определяется температура элемента steklo2 (не только этого элемента, но на одном рисунке 15 можно продемонстрировать только для одного элемента).

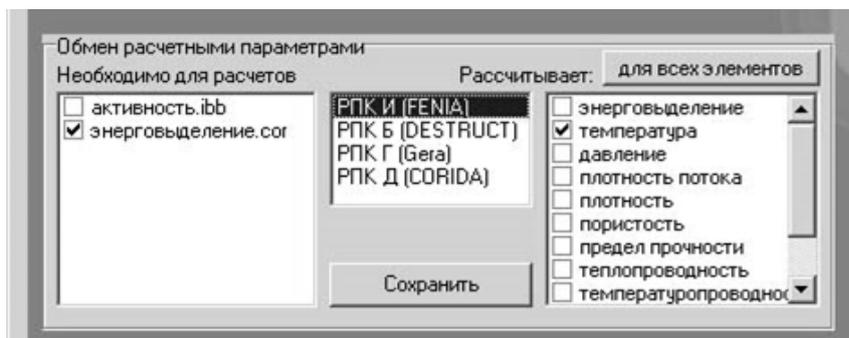


Рисунок 15 – Внешний вид графического интерфейса задания обменных параметров. Задание обменных параметров РПК FENIA.

В результате, температура, оцененная РПК FENIA для элемента steklo2, используется в расчетах РПК DESTRUCT (рисунок 16) при оценке выхода (активности и концентрации) радионуклидов.

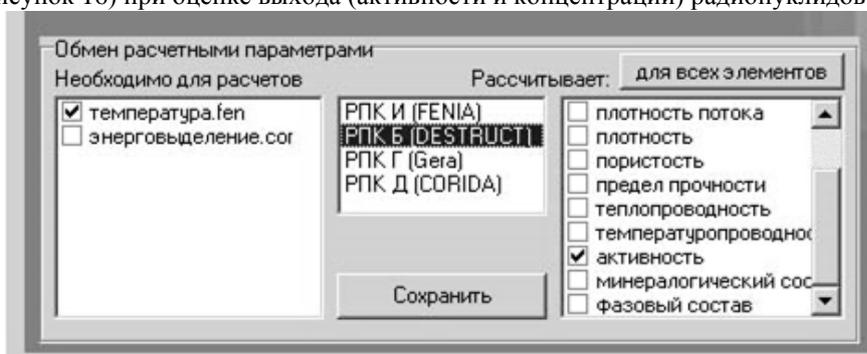


Рисунок 16 – Внешний вид графического интерфейса задания обменных параметров. Задание обменных параметров РПК DESTRUCT.

По завершении работы с графическим интерфейсом, помимо рабочих файлов, определяющих последовательность обмена информации между расчетными комплексами, автоматически формируются текстовые файлы, описывающие конкретный перечень файлов данных, содержащих параметры, которыми обмениваются РПК.

В данном случае, для полноценного обмена информацией, описанной ранее (рисунок 11), должны формироваться файлы, содержащие перечень входных и выходных параметров всех расчетных моделей, участвующих в интеграции.

7 Учет динамических параметров при оценке распространения радионуклидов

Принципиальная структура блока моделирования миграции радионуклидов в ближней зоне исследуемого объекта содержит:

- модуль задания общих параметров расчета миграционного моделирования, в котором формируются глобальные переменные начального, конечного времени расчета, максимальный шаг выдачи результатов, а также пути к инструментам камерного и 3D расчетного моделирования и место хранения исходных файлов;
- модуль камерного моделирования, позволяющий оценить масштабы выхода радионуклидов за пределы барьеров безопасности;
- модуль 3D моделирования миграции радионуклидов используется для подробного моделирования распространения радионуклидов в ближней зоне с учетом локальных неравномерностей.

Для задания параметров деградации барьеров безопасности наиболее важными являются модуль формирования материалов, модуль импорта геометрических данных, и интерфейсный модуль создания модели.

В модуле материалов предусмотрена возможность задания переменными свойств материалов (фильтрация, пористость, сорбции, диффузии) с помощью сценариев и расписаний.

В таком составе комплекс обеспечивает взаимосвязанное решение мультифизических задач транспорта радионуклидов в ближней зоне с учетом изменения свойств инженерных барьеров вследствие химических процессов деградации материалов с применением каплинг-методов объединения моделей физико-химических процессов.

8 Пример комплексного решения задач эволюции многобарьерной защиты

Рассмотрим применение разработанных методов для оценки процессов эволюции барьеров супер контейнера - контейнера изолирующего (КИ), разрабатываемого для захоронения ВАО в глубоких формациях.

Основные процессы, требующие учета для оценки его состояния: коррозия металлических барьеров, изменение фильтрационных свойств бетонных барьеров и сорбционных свойств бентонитовых барьеров.

Коррозия металлов

В реализованном в DESTRUCT подходе численные методы изменения фильтрационных свойств описывают процесс коррозионного разрушения металлического ИББ путем определения зависимости скорости коррозии (глубины ее проникновения за временной период) от температуры, pH и Eh среды, напряжения деформации, масштабов влияния радиолитиза, биологических и химических процессов (в том числе химического состава матрицы), а также от химического состава раствора.

В первую очередь оценивается развитие питтинговой (локальной) коррозии, так как при образовании даже малейшего отверстия герметичность барьера будет нарушена, вода будет беспрепятственно фильтроваться через это отверстие. Поэтому рассматривается дискретное изменение фильтрационных свойств металлического барьера, – пока целостность не нарушена в результате коррозии либо механического разрушения, фильтрация не происходит. При нарушении целостности стенки ИББ барьер становится проницаемым.

В общем случае скорость коррозии данного типа зависит от внешней нагрузки, радиолитиза, биологических и электрохимических процессов

Моделирование процесса коррозии металлических контейнеров проводится согласно разработанной методике [23].

С учетом определенных временных диапазонов изменения pH и температуры оцениваются значения скорости коррозии для конкретных сталей по таблице, составленной на основе данных, полученных в процессе выполнения работ [23, 25-27]) путем экстраполяции известных значений.

Время сохранения целостности металлических барьеров определяется суммой периодов сохранения целостности каждого барьера следующим образом:

$$t = k \times \sum_i \frac{L_{t_i}}{k_{T_i}}, \quad (2)$$

где t – время сохранения защитных свойств металлического барьера;

k – член, учитывающий механическое разрушение стенок ИББ, величина пределах 0,5-0,75;

L_{t_i} – глубина коррозии за время, соответствующее температуре T_i ;

k_{T_i} – коэффициент скорости коррозии при температуре T_i .

Образование продуктов коррозии при контакте с раствором, содержащим бентонит, учитывается путем определения изменения пористости на границе по следующей зависимости:

$$\theta_{\text{сумм.}} = \theta_0 - \frac{C_{\text{FeCO}_3} M_{\text{FeCO}_3} V_{\text{сумм.}} g_0}{\rho_{\text{FeCO}_3} V_{\text{сумм.}}}, \quad (3)$$

где C_{FeCO_3} – количество образовавшегося в результате комплекса химических процессов продукта коррозии сидерита в среде (моль/кг);

M_{FeCO_3} – молекулярный вес сидерита (кг/моль);

ρ_{FeCO_3} – плотность сидерита (кг/м³).

Скорость потери массы вследствие процессов коррозии в зависимости от температуры и времени контакта с раствором оценивается на основе интерполяционной зависимости, полученной в работах [23, 25-27].

$$V = \frac{T}{2} \times t^{C_T} \times k_{\text{pH}} + \frac{t}{T_{\text{Max}}} \times K_{\text{type}}, \quad (4)$$

где T – температура окружающей среды, К;

T_{Max} – температура плавления стали;

t – текущее время, месяцы;

K_{type} – нормировочный коэффициент, зависящий от типа стали;

C_T – коэффициент относительного изменения температуры:

$$C_T = - \left(\frac{T}{T_{\text{Max}}} \right)^2, \quad (5)$$

k_{pH} – коэффициент, определяющий изменение pH:

$$k_{\text{pH}} = \left(\frac{8.7}{\text{pH}} \right)^{15}. \quad (6)$$

Интегрируя это выражение по времени, определяется глубина коррозии, достигнутая в данный момент (расстояние, пройденное коррозией за этот период):

$$L = \frac{T}{2 S_T} \times t^{S_T} \times k_{\text{pH}} + \frac{t^2}{2 T_{\text{Max}}} \times K_{\text{type}}, \quad (7)$$

где S_T – показатель степенной функции времени:

$$S_T = 1 + C_T. \quad (8)$$

Используя динамику изменения температуры материалов барьеров безопасности, рассчитанную с применением РПК И (FENIA), оценивается скорость коррозии металлических конструкций, а также глубина питтинговой и площадной коррозии в условиях поступления и распространения грунтовой воды (рисунки 17-22).

Постулировалось, что вплоть до момента достижения глубины питтинговой коррозии толщины стенки стального барьера вода не проникает за его пределы. Как только питтинговая коррозия проделает отверстие в стальной оболочке, барьер считается проницаемым, вода попала во внутреннюю часть конструкции. Далее ускоряются процессы коррозии данного барьера (инициируются процессы внутренней коррозии), а также начинаются процессы коррозии следующего стального барьера.

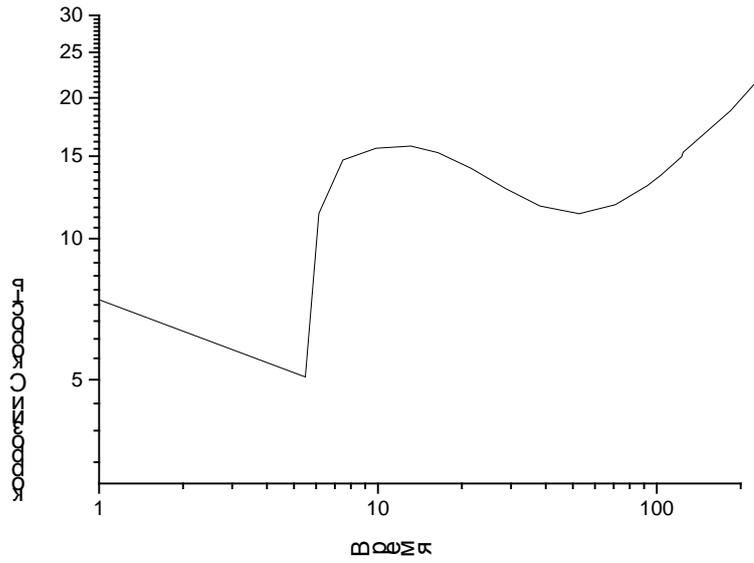


Рисунок 17 – Изменение скорости коррозии внешней поверхности контейнера с учетом зависимости от температуры

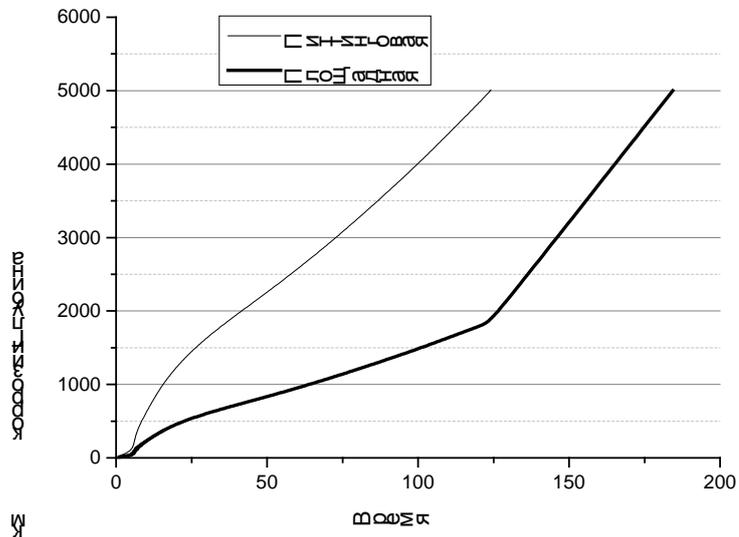


Рисунок 18 – Развитие питтинговой и площадной коррозии внешней поверхности контейнера вплоть до достижения толщины стенки с учетом зависимости от температуры

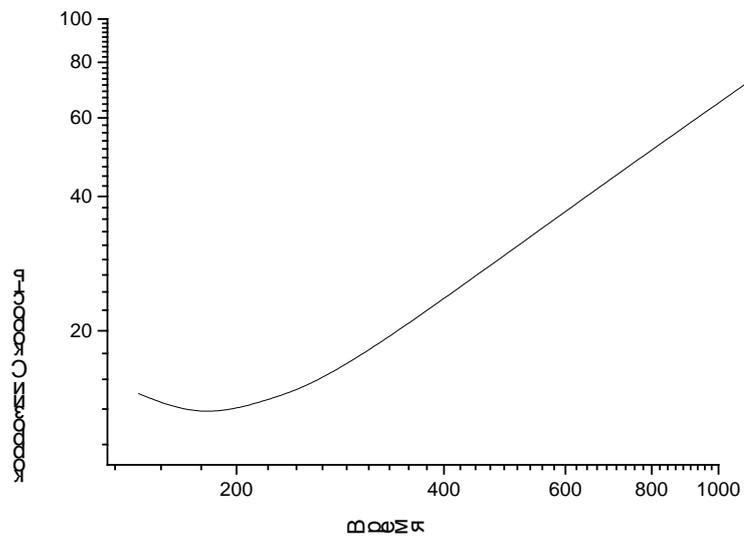


Рисунок.19 – Изменение скорости коррозии внутреннего стакана с учетом зависимости от температуры

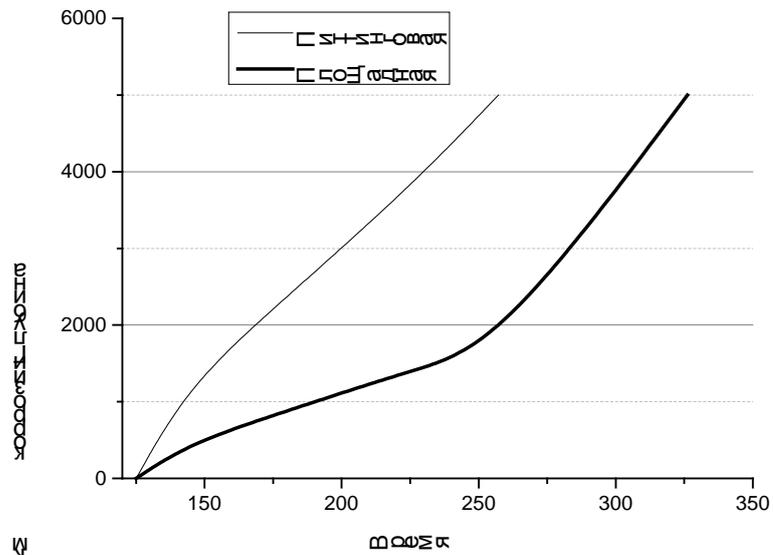


Рисунок.20 – Развитие питтинговой и площадной коррозии внутреннего стакана вплоть до достижения толщины стенки с учетом зависимости от температуры

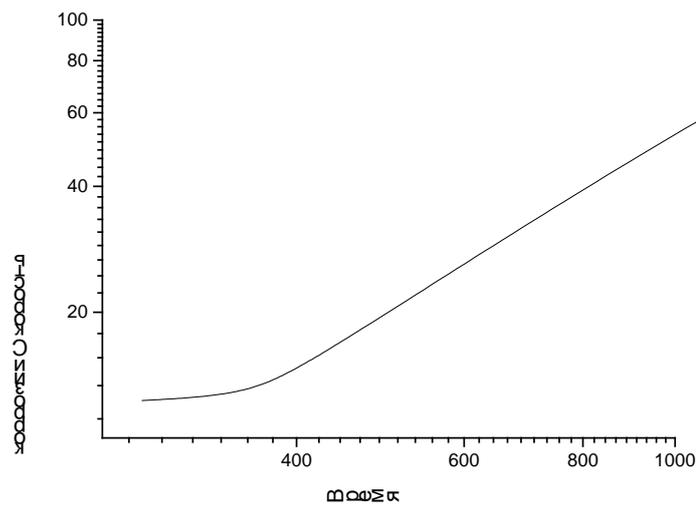


Рисунок.21 – Изменение скорости коррозии пенала с учетом зависимости от температуры

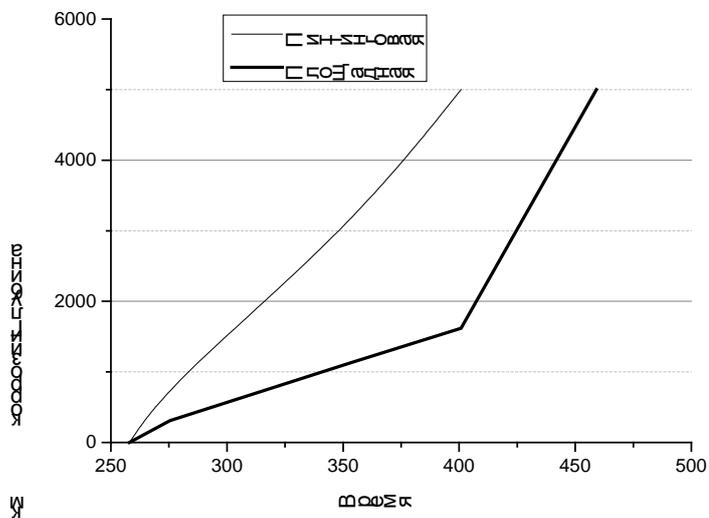


Рисунок 22 – Развитие питтинговой и площадной коррозии пенала вплоть до достижения толщины стенки с учетом зависимости от температуры

Последовательное разрушение стальных барьеров в результате действия коррозии с учетом изменения температуры поверхностей конструкций продемонстрировано на рисунке 23.

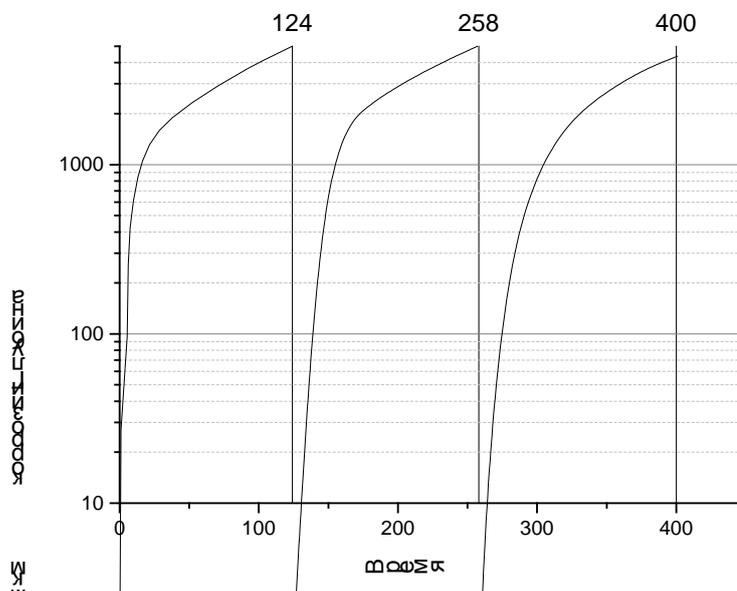


Рисунок 23 – Картина последовательного разрушения металлических барьеров с учетом зависимости скорости коррозии от температуры

В результате тестирования разработанных численных методов моделирования коррозии стальных конструкций осуществлена оценка времени, требующегося для разгерметизации стальных барьеров и достижения водой источника загрязнения с учетом изменения температуры поверхностей конструкций. В данном случае время обводнения остеклованных ВАО оценивается в пределах 500 лет.

Зависимость фильтрационных свойств бетонных ИББ

Фильтрационные и диффузионные свойства бетона по большей части зависят от его пористости. Численными методами реализована зависимость коэффициентов фильтрации и диффузии от пористости бетона:

$$K_f = c_f \theta^m, \quad (9)$$

где c_f – коэффициент, связанный с сопротивляемостью пористой среды (значение $5,75 \cdot 10^{-11}$ м/с выведено на основе экспериментальных данных для цементной пасты);

θ – пористость бетона, отн. ед.;

m – цементационная экспонента (значение 2.5 для исследуемого бетона марки М400).

$$K_d = \theta^F + K_0, \quad (10)$$

где θ – пористость бетона;

F – коэффициент, связанный с сопротивляемостью пористой среды (значение 2 использовано для исследуемого бетона марки М400);

K_0 – начальное значение коэффициента диффузии ($5 \cdot 10^{-10}$ м²/с).

На основе оцененных данных об изменении пористости бетона формируется динамика изменения коэффициентов фильтрации и диффузии.

Модель влияния коррозии стального барьера на свойства бентонитового буфера для прогнозируемых температур НКМ.

В модели описываются изменения в бентоните в результате контакта его с корродирующим стальным барьером. Схема задачи представлена на рисунке 24.



Рисунок 24 – Схема диффузионной задачи.

Проведены расчеты влияния продуктов коррозии на бентонит для условий НКМ для поля температур, приведенного на рисунке 25.

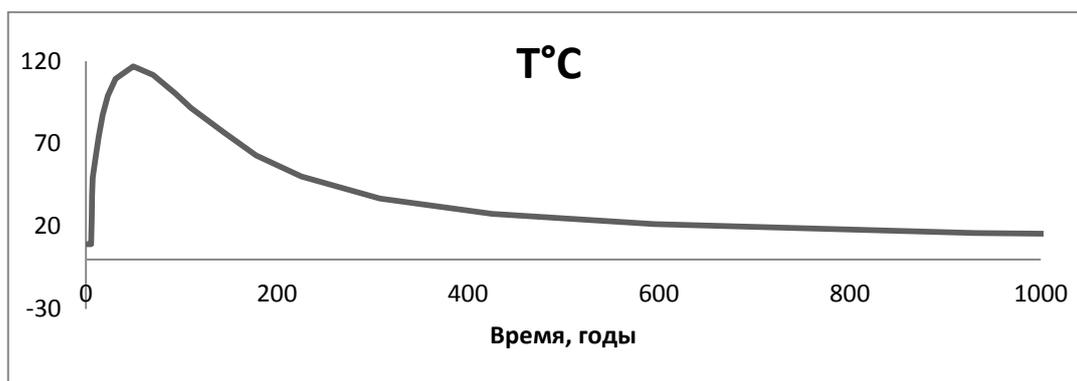


Рисунок 25 – Расчетные температуры в бентоните

Состав воды, равновесной бентониту представлен в таблице 4.

В модели площадь поверхности стального барьера в контакте с бентонитом 100 см².

Минеральный состав хакасского бентонита (согласно [28]) следующий: монтмориллонит 77,1%, каолинит 0,7%, кварц 13,3%, микроклин 3,3%, альбит 4,9%, кальцит 0,7%. Величина емкости катионного обмена (ЕКО) природных глин составляет 35—45 мг-экв/100 г. Коэффициент диффузии принимался постоянным для всех ионов и равным 4×10^{-11} м²/с (сходное значение применялось в [29]).

Таблица 4 – Состав воды, равновесной бентониту

Показатель	Величина	Показатель	Величина
pH	7,8	SO ₄ ⁻²	21 мг/л
pe	-2,332	Ca	48 мг/л
HCO ₃ ⁻	240 мг/л	Mg	12,5 мг/л
Cl	5 мг/л	Na	28 мг/л
K	2,6 мг/л	Fe(2)	3 мг/л
Si	7 мг/л	Al	0,01 мг/л

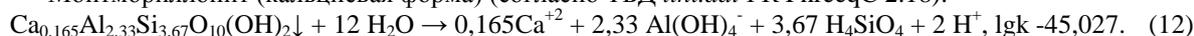
Пористость модельного бентонита 0,4. Плотность 2,7. Это соответствует присутствию в 1 ячейке сетки 0,8049 моль монтмориллонита (индекс насыщения -0,61), 0,0101 моль каолинита (индекс насыщения 1,48), 0,717 моль кварца (индекс насыщения 0,04), 0,00385 моль микроклина (индекс насыщения 0,16), 0,0607 моль альбита (индекс насыщения -3,23), 0,0227 моль кальцита (индекс насыщения 0,39).

Реакции образования минеральных фаз, используемые в моделировании в РК PHREEQC, следующие:

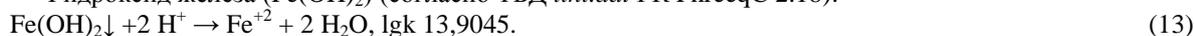
Бертьерин (согласно [30]):



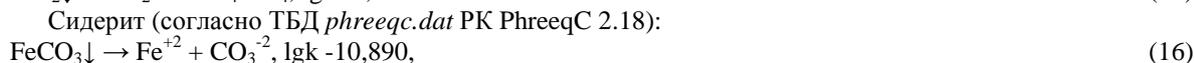
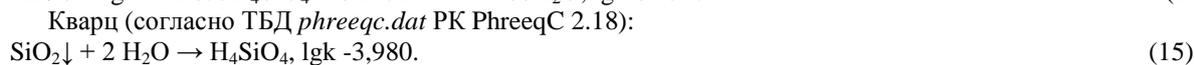
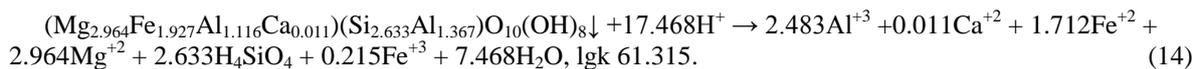
Монтмориллонит (кальциевая форма) (согласно ТБД *lml.dat* РК PhreeqC 2.18):



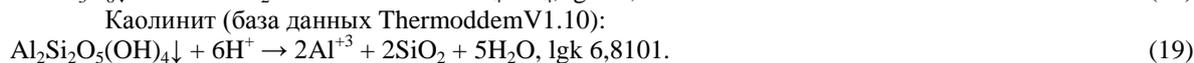
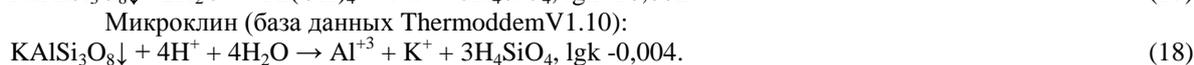
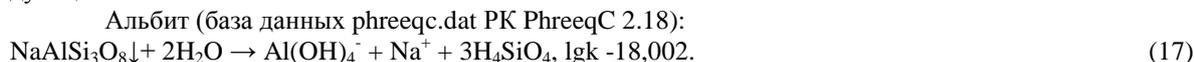
Гидроксид железа (Fe(OH)₂) (согласно ТБД *lml.dat* РК PhreeqC 2.18):



Хлорит (Chlorite(Cca-2), согласно ТБД *ThermmodemV1.10*):



Реакции растворения фаз альбита, микроклина, каолинита, используемые в моделировании, следующие:



В модели разрешалось образование гидроксида железа, сидерита, бертьерина, хлорита.

Результаты расчетов (рисунок 26) изменения количества твердых минеральных фаз в хакасском бентоните за период в 1000 лет показывают, что содержание наиболее важного компонента бентонита – монтмориллонита – практически не претерпевает изменения. Только в зоне контакта со стальным корродирующим барьером его количество незначительно уменьшается. Также в этой зоне растет содержание продукта коррозии – гидроксида железа, незначительно увеличивается количество хлорита. В результате этого снижается пористость бентонита, следовательно, снизится значение коэффициента диффузии.

Модель выщелачивания из наитриевоалюмофосфатного стекла.

Наиболее оптимальным подходом к оценке выщелачивания является моделирование химических процессов и кинетики выщелачивания при рассмотрении радионуклидов в составе стекломатрицы как находящихся в виде индивидуальных минеральных фаз оксидов, силикатов, фосфатов, боросиликатов, количество материала которых пересчитывается из общей активности индивидуальных радионуклидов в матрице. Необходимо определить значение константы выщелачивания и состав воды после прохождения через каскад ИББ с учетом влияния протекающих химических процессов, а также температуры и характеристик раствора.

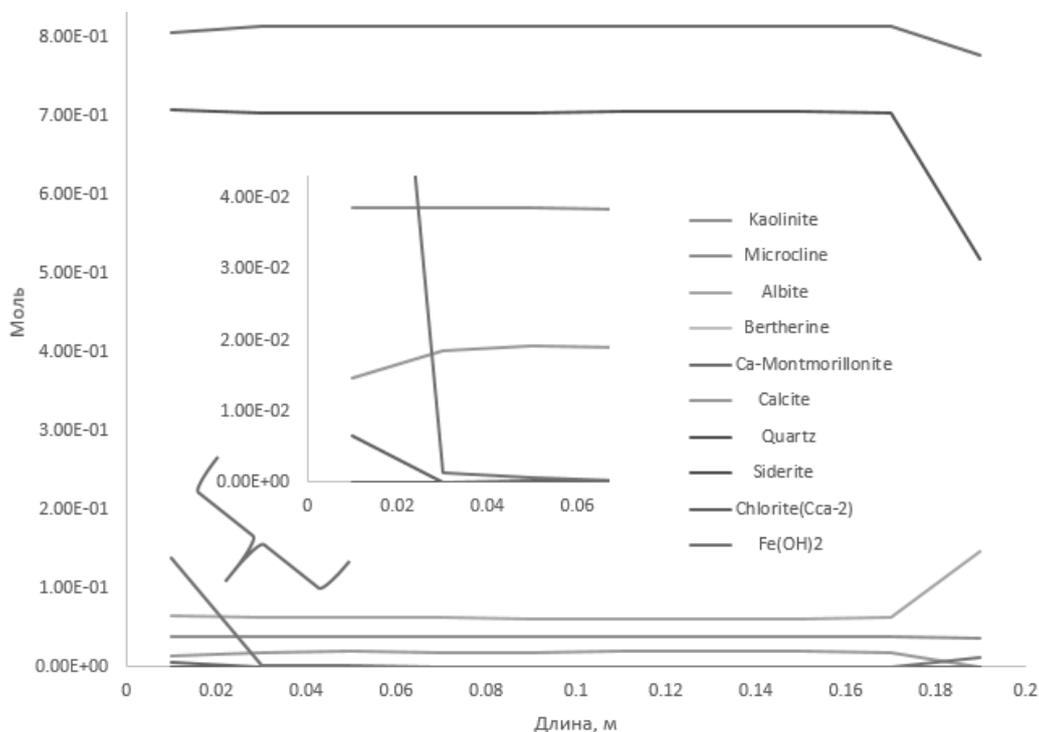


Рисунок 26 – Изменения в массиве минеральных фаз хакасского бентонита.

Для каждой (*i*-й) фазы скорость растворения можно рассчитать следующим образом:

$$R_i = k \times e^{\left(\frac{Ea}{RT}\right)} \times \left(1 - \left(\frac{IAP}{K_s}\right)\right), \quad (20)$$

где *IAP* – текущее произведение активности ионов рассматриваемой твердой минеральной фазы;

K_s – константа растворимости рассматриваемой твердой минеральной фазы.

Следует отметить, что «прыжки» концентрации Fe могут быть связаны с попаданием в систему кислорода в процессе пробоотбора и окислением Fe(II) (образующиеся в процессе окисления гидроксиды Fe(III) обладают меньшей растворимостью, чем соединения Fe(II)). Аналогично ведет себя и Ni, что может быть связано с его сорбцией на образующихся оксигидроксидах Fe(III). Такое же поведение Si может быть объяснено возможным соосаждением с оксигидроксидами Fe(III). Состав модельной стекломатрицы приведен в таблице 5.

Таблица 5– Состав модельной стекломатрицы

Компонент	Na	Al	P	S	Ca	C r	Fe	Ni	Sr	C s
мг/г	17 4	71	24 1	1	5	1	11	9	11	6

Параметризация модели:

- в качестве ведущей растворение фазы выбран $AlPO_4$;
- емкость катионного обмена бентонита – 80 мг-экв./100 г.

Рассчитать параметры растворимости $AlPO_4$ можно при предположении что достигнут предел растворимости за время эксперимента.

При построении модели выщелачивания из фосфатного стекла в присутствии бентонита применялись следующие положения:

- растворение стекломатрицы подчиняется закону, описанному в уравнении;
- в бентоните присутствует кальцит;
- емкость катионного обмена бентонита принята в 40 мг-экв./100 г.

В процессе моделирования учтено выпадение минеральных фаз гиббсита ($Al(OH)_3$), кальцита ($CaCO_3$), гидроксиапатита ($Ca_5(OH)(PO_4)_3$), оксигидроксилов переходных и редкоземельных металлов ($Fe(OH)_3$, Cr_2O_3 , $Ni(OH)_2$, $La(OH)_{3(am)}$, $Nd(OH)_{3(am)}$, фосфатов ($Fe_3(PO_4)_2 \cdot 8H_2O$, $FePO_4 \cdot 2H_2O$, $Ca_5(OH)(PO_4)_3$). Растворимость стекломатрицы контролируется осаждением гиббсита и гидроксиапатита, а также растворением кальцита. Параметры растворимости минеральных фаз представлены ниже:

Гиббсит



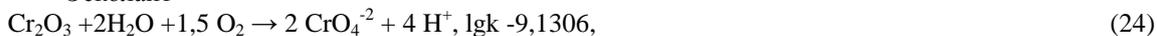
Фосфатное стекло



$Fe(OH)_3$



Эсколаит



$Ni(OH)_2$



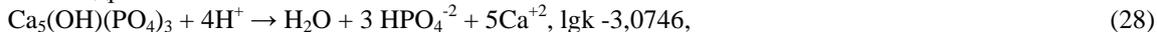
$La(OH)_{3(am)}$



$Nd(OH)_{3(am)}$



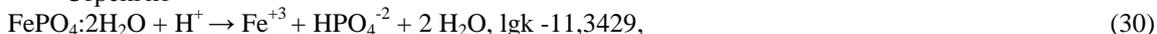
Гидроксиапатит



Кальцит (Calcite)



Стренгит



$SrHPO_4$



Схема происходящих в модели процессов представлена на рисунке 27.

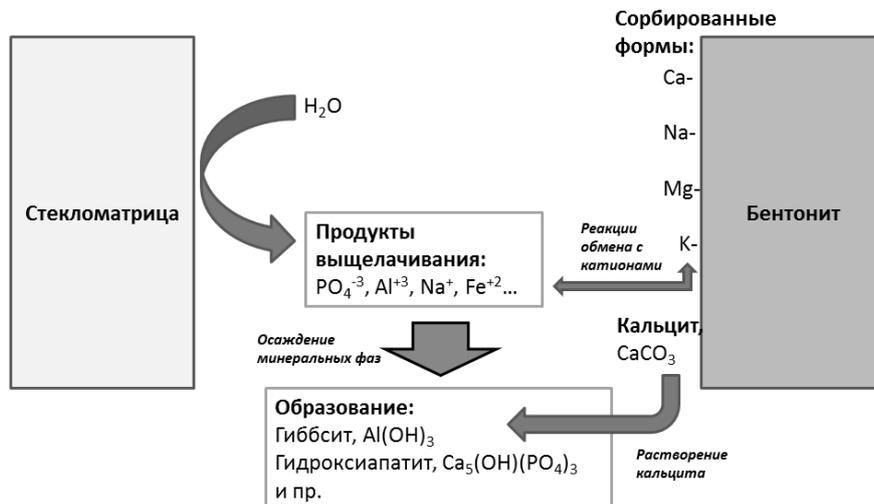


Рисунок 27 – Схема моделирования.

Результаты сравнения модельных и расчетных данных по концентрациям Na и P представлены на рисунке 28. Видно хорошее соответствие модельных и экспериментальных результатов по натрию. Некоторое несоответствие расчетных и экспериментальных концентраций P объясняется возможным неучетом перекристаллизации образовавшихся фосфатов, а также несовершенной параметризацией модели.

Результаты сравнения модельных и расчетных данных по pH представлены на рисунке 29. Видно неплохое соответствие модельных и расчетных данных.

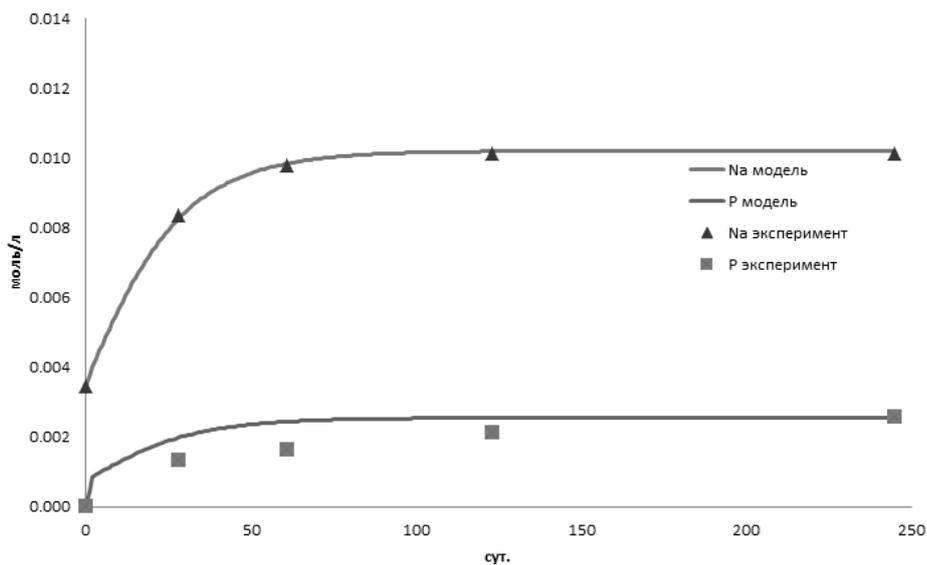


Рисунок 28 – Результаты сравнения модельных и экспериментальных данных по концентрациям Na и P.

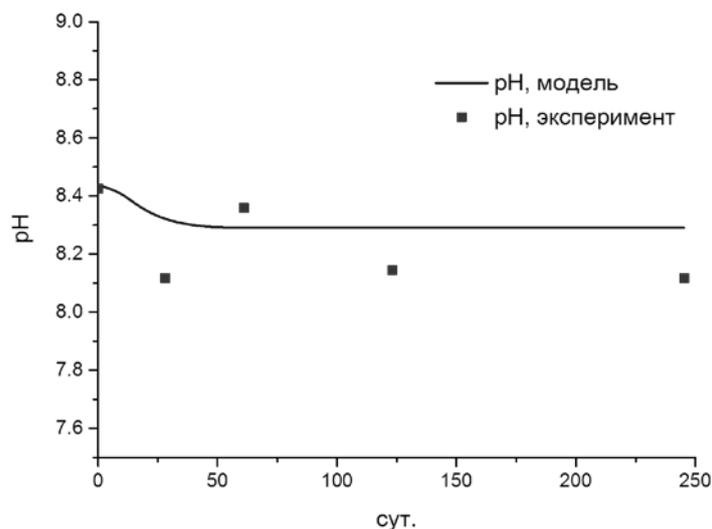


Рисунок 29 – Результаты сравнения модельных и расчетных данных по pH.

9 Заключение

В работе изложены основы подхода к интегральному описанию эволюции свойств инженерных барьеров безопасности ядерно- и радиационно-опасных объектов и методов учета влияния этих процессов на долгосрочную безопасность таких объектов. Рассмотрены основные механизмы, приводящие к деградации этих барьеров, в том числе, таких как матрица иммобилизации РАО, материалы упаковки РАО и классические материалы, используемые при создании пунктов захоронения РАО. При этом предложен подход, основанный на комплексном учете деградации всей системы ИББ при взаимном влиянии изменения свойств каждого из них.

Разработан и программно реализован расчетный комплекс, в котором интегрированы модели, обеспечивающие возможность прогнозирования эволюции различных ИББ в единой информационной среде. Разработанные инструменты комплексного учета процессов эволюции ИББ при оценке выхода радионуклидов за пределы объекта позволили более качественно описать рассматриваемые процессы, выделить наиболее значимые, оценить их влияние друг на друга и сформировать мультифизичную комплексную модель, включающую взаимодействие различных расчетных инструментов.

В качестве примера практического применения в работе приведены некоторые результаты, относящиеся к анализу безопасности захоронения РАО при технологических решениях, планируемых к применению при создании системы захоронения РАО классов 1 и 2 в НКМ. Результаты исследований, проведенных с применением разработанного подхода, позволят снизить консервативность при определении основных параметров распространения радионуклидов за пределы барьеров безопасности и более точно определить возможное влияние хранилищ РАО на безопасность.

10 Список литературы

1. Положение о структуре и содержании отчета по обоснованию безопасности приповерхностных пунктов захоронения радиоактивных отходов РБ-058-10 (утвержденное приказом Федеральной службы по экологическому, технологическому и атомному надзору от 2 июля 2010 г. N 556)]
2. Features, Events and Processes (FEPs) for Geologic Disposal of Radioactive Waste An International Database. Nuclear energy agency organization for economic co-operation and development. OECD, 2000.
3. Серия изданий МАГАТЭ по нормам безопасности № SSR-5. Захоронение радиоактивных отходов. МАГАТЭ, Вена, 2011
4. NEA International FEP Database : Version 2.1 User Guide, Nuclear Energy Agency.
5. Oprins J., Hauser L. Min Enqng. – 1980. – Vol. 12. – N 4. – P. 370.
6. Corrosion of carbon steel under anaerobic conditions in a repository for SF and HLW in Opalinus Clay. NAGRA, Technical Report 08-12.
7. Smart, N.R., D.J. Blackwood, and L.O. Werme. 2001: The anaerobic corrosion of carbon steel and cast iron in artificial groundwaters. SKB Technical Report TR-01-22.
8. Чапаев Д. Б. Расчет скорости внутренней коррозии трубопроводов водяных тепловых сетей из углеродистых сталей / Д.Б. Чапаев, А.А. Оленников // Известия высших учебных заведений. Черная металлургия. 2012. № 4. С. 33–36.
9. Roberson H.E., Lahann R.W. Smectite to illite conversion rates: effect of solution chemistry // Clays and Clay Minerals. 1981. V. 29. P. 129-135.
10. Technical Report TR-11-01 Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark Main report of the SR-Site project Volume II Svensk Kärnbränslehantering AB March 2011.
11. Technical Report TR-11-03 Long-term safety for the final repository for spent nuclear fuel at Forsmark Main report of the SR-Site project Volume II Svensk Kärnbränslehantering AB March 2011.
12. Jacques D., Wang L., Martens E., Mallants D. Modelling chemical degradation of concrete during leaching with rain and soil water types. Cement and Concrete Research 40 (2010) 1306–1313
13. Коррозия бетона / В. М. Москвин. - М. : Госстройиздат, 1952. - 344 с. : ил., табл. - Библиогр.: с. 338 .
14. Plant J.A. Raiswell R., Principles of environmental geochemistry // Applied environmental geochemistry / Ed. I. Thornton. - London: Academic Press, - 1983. - P. 1 – 39.
15. Методический подход к определению радиологически значимых радионуклидов для оценки долговременной безопасности пунктов захоронения радиоактивных отходов. Самойлов А.А., Блохин П.А., Болдырев К.А., Уткин С.С., Семенов М.А., Коновалов В.Ю., Вопросы радиационной безопасности. 2017. № 3 (87). С. 21-31.
16. McCarthy J.F., Zachara J.M. // Environ. Sci. Technol., 1989, V. 23, p. 496.
17. Ahn T. , Long-term Kinetic Effects and Colloid Formation in the Dissolution of LWR Spent-fuel, NUREG-1564, US Nuclear Regulatory Commission, Washington,DC, 1996. NRC ADAMS ML073100056.
18. Мальковский В.И., Петров В.А., Диков Ю.П., Александрова Е.В., Бычкова Я.В., Мохов А.В., Шулик Л.С. Анализ коллоидных форм переноса урана подземными водами на U-Мо месторождениях Стрельцовского рудного поля (Восточное Забайкалье) // Доклады Академии наук, 2014, Т. 454, № 1, С. 81–83
19. Malkovsky V. Theoretical analysis of colloid-facilitated transport of radionuclides by groundwater // “Actinide nanoparticle research” (chapter 9) Ed. by Kalmykov S.N. and Denecke M.A. Berlin, Heidelberg: Springer-Verlag. 2011. P.195–243. DOI 10.1007/978-3-642-11432-8_8
20. Калмыков С.Н. Роль коллоидных частиц в миграции актинидов с подземными водами. Диссертация на соискание степени д.х.н., Москва, 2008 г.
21. <http://hydrochemistry.eu/exmpls/colloid.html>
22. Parkhurst D.L., Appelo C.A.J. User’s guide to PHREEQC (VERSION 2) — a computer program for speciation, batch-reaction, one-dimensional transport, and inverse geochemical calculations, Denver, Colorado, 1999.
23. Создание практической методологии комплексного обоснования безопасности объектов наследия, пунктов захоронения радиоактивных отходов, включая разработку и внедрение системы кодов и расчетно-прогностических комплексов. Этап 2017 - 2019 гг. ЭТАП 1 [Текст] : отчет о НИР (промежуточный): 13-04 / ФГБУ ИБРАЭ РАН ; рук. И.И. Линге ; отв. исполн.: С.С. Уткин ; исполнит. Д.В. Крючков [и др.]. – М., 2017. – 807 с. – Инв. 4818-Н.4д.241.20.17.1027-1.
24. «Легирование»: Металлургия стали, под ред. В. И. Японского и Ю. В. Кряковского, М., 1983.
25. Создание практической методологии комплексного обоснования безопасности объектов наследия, пунктов захоронения радиоактивных отходов, включая разработку и внедрение системы кодов и расчетно-прогностических комплексов. Этап 2016г. ЭТАП 1 [Текст] : отчет о НИР (промежут.): 31-

- 05 / ФГБУ ИБРАЭ РАН ; рук. И.И. Линге ; отв. исполн.: С.С. Уткин ; исполнит. Д.В. Крючков [и др.]. – М., 2016. – 1211 с. – Инв. 4663-Н.4д.21.2.2.16.1065-1.
26. Создание практической методологии комплексного обоснования безопасности объектов наследия, пунктов захоронения радиоактивных отходов, включая разработку и внедрение системы кодов и расчетно-прогностических комплексов. Этап 2016г. ЭТАП 2 [Текст] : отчет о НИР (промежут.): 30-08 / ФГБУ ИБРАЭ РАН ; рук. И.И. Линге ; отв. исполн.: С.С. Уткин ; исполнит. Д.В. Крючков [и др.]. – М., 2016. – 1179 с. –Инв. 4682-Н.4д.21.2.2.16.1065-2.
 27. Создание практической методологии комплексного обоснования безопасности объектов наследия, пунктов захоронения радиоактивных отходов, включая разработку и внедрение системы кодов и расчетно-прогностических комплексов. Этап 2016г. ЭТАП 3 [Текст] : отчет о НИР (итоговый): 08-12 / ФГБУ ИБРАЭ РАН ; рук. И.И. Линге ; отв. исполн.: С.С. Уткин ; исполнит. Д.В. Крючков [и др.]. – М., 2016. – 975 с. – Инв. 4745-Н.4д.21.2.2.16.1065-3.
 28. Белоусов П.Е., Крупская В.В., Закусин С.В., Жигарев В.В. Bentonитовые глины месторождения 10-й хутор (республика Хакасия): особенности генезиса, состава и адсорбционных свойств. Вестник РУДН. Серия: Инженерные исследования. 2017. Т. 18. № 1. С. 135—143
 29. POSIVA 2007-11. Impact of Corrosion-Derived Iron on the Bentonite Buffer Within the KBS-3H Disposal Concept – the Olkiluoto Site as Case Study.
 30. Rapport CEA-R-6158. Altération du verre de confinement de déchets type r7t7 en condition de stockage géologique. Octobre 2007.