

# Radionuklidų sklaida iš kristalinėse uolienose įrengto geologinio kapinyno RBMK-1500 panaudotam branduoliniam kurui laidoti

## 3. Radionuklidų sklaida artimojo lauko aplinkoje

**Asta Brazauskaitė,**

**Povilas Poškas**

*Lietuvos energetikos institutas,  
Branduolinės inžinerijos problemų  
laboratorija, Breslaujos g. 3,  
LT-44403 Kaunas  
El. paštas: poskas@mail.lei.lt*

Šiame darbe aptarti radionuklidų sklaidą iš panaudoto branduolinio kuro (PBK) kapinyno lemiantys procesai, pateikti preliminarūs RBMK-1500 PBK kapinyno kristalinėse uolienose saugos vertinimui svarbių (reikšmingų) radionuklidų sklaidos artimojo lauko aplinkoje vertinimo rezultatai konteinerio su defektu scenarijaus atveju. Radionuklidų sklaidos vertinimui buvo naudota kompiuterinė programa COMPULINK7 (SKB, Švedija). Analizės rezultatai parodė, kad dauguma kapinyno saugai svarbių radionuklidų yra efektyviai sulaikomi kapinyno artimojo lauko aplinkoje. Suminių radionuklidų srautą iš pradžių sąlygoja radionuklidai  $^{59}\text{Ni}$  ir  $^{129}\text{I}$ , o vėliau (praėjus apie 50 tūkst. metų) ima vyrėti  $^{226}\text{Ra}$ . Taip pat atlikta radionuklidų sklaidą artimajame lauke tiesiogiai sąlygojančių parametrų jautrumo analizė.

**Raktažodžiai:** laidojimas kristalinėse uolienose, RBMK-1500 panaudotas branduolinis kuras, radionuklidų sklaida, konteinerio su defektu scenarijus, artimojo lauko aplinka, parametrų jautrumo analizė

### 1. ĮVADAS

Pirmame šios serijos straipsnyje [1] buvo pateikta geologinio kapinyno kristalinėse uolienose Lietuvoje RBMK-1500 panaudoto branduolinio kuro (PBK) laidoti bendrinė koncepcija, kurios prototipu pasirinkta KBS-3 koncepcija, išvystyta PBK laidojimui Švedijoje. Pagal bendrinę kapinyno Lietuvoje koncepciją PBK numatoma laidoti 300–500 m gylyje lygiagrečiai išdėstytuose horizontaliuose tuneliuose, kurių skersmuo 1,85 m, ilgis 250 m. Esant 1,2 m atstumui tarp konteinerių ir 40 m atstumui tarp tunelių, kapinynas užimtų apie 0,4 km<sup>2</sup> plotą. Preliminarūs siūlomo varinio RBMK-1500 PBK laidojimo konteinerio matmenys yra: skersmuo 1050 mm, aukštis 4070 mm, jame telpa 32 RBMK-1500 PBK pluoštai (rinklės segmentai). Ignalinos atominės elektrinės PBK laidojimo reikmėms reikėtų apie 1400 laidojimo konteinerių. Konteinerio izoliacijai siūlomas 0,35 m storio bentonito sluoksnis, pagrindinių tunelių, šachtų ir rampų užsandarinimui – smulkintos uolienos ir bentonito mišinys.

Antrame serijos straipsnyje [2] buvo pateiktos kapinyno saugos vertinimui svarbių (reikšmingų) radionuklidų identifikavimo metodologijos bei šių radionuklidų, laidojant RBMK-1500 panaudotą branduolinį kurą, atrinkimo pagrindimas.

Šiame straipsnyje pateikiama radionuklidų sklaidos konteinerio su defektu scenarijaus atveju analizė, kuri buvo atlikta 2,8%  $^{235}\text{U}$  pradinio išsodinimo su 0,6%  $\text{Er}_2\text{O}_3$  erbio absorberiu RBMK-1500 kurui, kurio išdegimas ~29 MWparos/kgU. Radionuklidų sklaidos artimojo lauko aplinkoje vertinimai atlikti kompiuterine programa COMPULINK7 (SKB, Švedija). Analizuojant parametrų jautrumą, tiesiogiai radionuklidų sklaidą sąlygojančių parametrų vertės buvo keičiamos padauginant iš parametro variacijos koeficiento (angl. *variability factor*) bei vertinant didžiausio radionuklido srauto iš artimojo lauko santykinę pokytį.

### 2. PROCESAI KAPINYNŲ ARTIMOJO LAUKO APLINKOJE

Vertinant geologinių kapinynų saugą pirmiausia suformuojamas saugos įvertinimo uždavinys ir aprašoma laidojimo sistema. Po to sudaromi ir pagrindžiami jos evoliucijos bei radionuklidų sklaidos scenarijai. Vėliau sudaromi juos atitinkantys konceptualūs modeliai, kurie išreiškiami matematiniais ir kompiuteriniais modeliais, bei atliekami sklaidos vertinimai.

Paprastai laidojimo sistemos evoliucijos ir radionuklidų sklaidos scenarijai skirstomi į scenarijus, sąlygotus

natūralių procesų (įskaitant irimo procesus kapinyne), ir scenarijus, susijusius su žmonių veikla ateityje. Natūralių procesų sąlygoti scenarijai toliau gali būti skirstomi pagal tikėtinumą (pavyzdžiui, tikėtinas scenarijus ir mažiau tikėtinas arba visai nelaukiamas scenarijus) arba pagal juos sąlygojančias priežastis (pavyzdžiui, scenarijus susijęs su kapinyno konstrukcija, klimato kaita ir tektonika) [3].

Naudojama įvairi terminologija: natūralios evoliucijos ir sutrikdytos evoliucijos scenarijai; pagrindinis scenarijus, konteinerio su pradiniu defektu scenarijus ir įvairūs scenarijai; sutrikdytas ir nesutrikdytas kapinyno funkcionavimas ir t. t. Pavyzdžiui, Švedijoje planuojamo kapinyno saugai įvertinti buvo pasirinkti 5 scenarijai: pagrindinis scenarijus (visi laidojimo konteineriai išlieka sandarūs), kanistro su pradiniu defektu scenarijus, klimato kaitos scenarijus, tektoninio lūžio/žemės drebėjimo scenarijus, žmonių išsibrovimo į kapinyną scenarijus [4].

Šiame darbe atsižvelgiant į kapinyno koncepcijos, kapinyno aplinkos panašumus radionuklidų sklaidos vertinimui pasirinktas vienas iš Švedijos PBK kapinyno kristalinėse uolienose evoliucijos scenarijus – konteinerio su pradiniu defektu scenarijus. Priimtos su kapinyno aplinka susijusios prielaidos trumpai yra šios [4]:

- ateityje išliks šių dienų klimato sąlygos;
- kapinyno aplinkoje biosfera išliks nepakitusi;
- uolienos mechaniškai keisis tik dėl neseisminių procesų, t. y. šiame scenarijuje neįvertinami žemės drebėjimai;
- žmonės nesibraus į kapinyną;
- tikėtina, kad iš 4500 Švedijos PBK laidojimui reikalingų konteinerių vienas konteineris praeis kokybės kontrolę turėdamas  $1 \text{ mm}^2$  ploto defektą sienelėje. Šiame darbe priimama, kad vienas iš 1400 Lietuvos PBK laidojimui reikalingų laidojimo konteinerių turės  $1 \text{ mm}^2$  ploto defektą sienelėje.

Atliekant kapinyno saugos, radionuklidų sklaidos vertinimus, laidojimo sistemą galima suskirstyti į tris sistemas [5]:

- Artimojo lauko sritis;
- Geosfera (tolimojo lauko sritis);
- Biosfera.

Artimo lauko sąvoka apima radioaktyviųjų atliekų pakuočių, kapinyną kartu su atliekų konteinerius supančiais inžineriniais barjeriais ir kapinyno užsandinimo elementais, taip pat dalį kapinyną supančių uolienu (sutrikdyta zona). Tolimojo lauko sąvoka apima natūralių barjerų sistemą (visumą): kapinyną supančias uolienas, kurių savybės nepakito dėl kapinyno įrengimo, ir aplink kapinyną esančias uolienas supančias geologines formacijas. Biosferis sąvoka apima orą, vandenį, dirvožemį, augalus, gyvūnus ir žmones. Pasklisdami ore, vandenyje, dirvožemyje ir nuosėdose radionuklidai gali paveikti augalus, gyvūnus ir žmones [6].

Nesandaraus laidojimo konteinerio evoliucija yra labai sudėtinga ir priklauso nuo daugelio neapibrėžtų veiksnių. Tikėtina, kad į konteinerį ims patekti požeminis vanduo ir todėl jis sąlygos ketaus intarpo koroziją ir

vandenilio dujų susidarymą. Laidojimo konteinerio viduje susidaręs dujų slėgis gali slopinti tolesnį vandens patekimą į konteinerį. Esant pakankamai dideliame dujų slėgiu galimas dujų išsiskyrimas pro bentonito barjerą. Konteinerio intarpo korozijos metu susidarę korozijos produktai, užimdami didesnę tūrį nei geležies metalas, ima veikti varinę konteinerio dalį mechaniškai ir gali sąlygoti varinėje konteinerio dalyje esančio defekto padidėjimą. Be to, dėl korozijos mažėja konteinerio intarpo mechaninis atsparumas ir tai taip pat gali sąlygoti defekto varinėje sienelėje padidėjimą [7]. Konteinerio evoliuciją taip pat veikia išoriniai veiksniai, tokie kaip išorinė mechaninė apkrova bei terminės sąlygos. Remiantis atliktais vertinimais [4] tikėtina, kad defektas (plyšys) konteinerio sienelėje padidės nuo  $1 \cdot 10^{-6} \text{ m}^2$  ( $1 \text{ mm}^2$ ) iki  $1 \cdot 10^{-2} \text{ m}^2$  ( $1 \text{ dm}^2$ ) dydžio praėjus 200 tūkst. metų. Kai pradinis defektas padidėja, požeminis vanduo nevaržomai gali patekti į laidojimo konteinerio vidų. PBK apvalkalų medžiagos, tokios kaip cirkonio lydiniai, yra stabilios ir vandenyje koroduoja labai lėtai, tačiau gali susidaryti mikroskopiniai įtrūkimai PBK apvalkaluose. Šiuo metu diskutuojama, kiek ilgai PBK apvalkalai gali būti multibarjerinės sistemos dalimi, ir dažnai priimama, kad bedeguonėje kapinyno aplinkoje PBK apvalkalai išlieka sandarūs labai trumpą laiką ir nesudaro barjero radionuklidų iš PBK sklaidai. T. y. priimama prielaida, jog tuo pačiu metu, kai į konteinerį nevaržomai gali patekti vanduo, jis ima liestis su PBK matrica. Priimama, kad konteinerio viduje esanti ertmė (apie  $0,5 \text{ m}^3$ ) užpildoma vandeniu. Požeminiam vandeniui pasiekus PBK matricos paviršių prasideda PBK kitimo/irimo procesai bei radionuklidų sklaida iš PBK matricos.

Pagrindiniai parametrai, turintys įtakos PBK matricos kitimo / irimo procesams, yra PBK savitasis aktyvumas, radiolizės produktų išėiga, temperatūra, PBK savitasis paviršius, geležies ir  $\text{H}_2$  koncentracija, karbonatų koncentracija, pradinis PBK matricos oksidacijos laipsnis ir kt. [8].

Reaktoriaus eksploatacijos metu dalis PBK radionuklidų susikaupia tarp kuro ir apvalkalo esančiame tarpe bei kurą sudarančių kristalitų. Šių radionuklidų sklaida iš PBK prasidės anksčiau nei radionuklidų, imobilizuotų PBK matricoje. Dėl nevienalyčio radionuklidų pasiskirstymo PBK tabletėse jų išsiskyrimas iš PBK matricos į požeminį vandenį paprastai skirstomas į dvi dalis: 1) iškart išsiskirianti dalis, kai tik požeminis vanduo ima sąveikauti su PBK matrica (angl. *instant release fraction IRF*); 2) lėtai išsiskirianti dalis palaipsniui kintant / yrant PBK matricai [9]. Iškart išsiskirianti dalis priklauso nuo radionuklidų buvimo vietos PBK tabletėje po kuro ištraukimo iš reaktoriaus aktyviosios zonos bei nuo PBK evoliucijos iki konteineris praranda savo sandarumą / požeminis vanduo ima sąveikauti su PBK matrica. Įvairių radionuklidų susikaupimas priklauso nuo branduolinio kuro darbo parametrų, tokių kaip linijinė galia ir išdegimas [9]. Labiausiai ištirtas dujinių dalijimosi produktų išsiskyrimas, kai tik vanduo pasiekia PBK matricą, tuo tarpu kitų susikaupiančių radionuklidų išsiskyrimas iškart yra daug mažiau žinomas [10]. Atliekant kapinyno saugos vertinimus paprastai priimama, kad tarpe tarp kuro apvalkalo ir kuro matricos esantys radionuklidai

bei radionuklidai, susikaupę kristalitu ribose, iškart išsiskiria į vandenį. Greitesnis radionuklidų, esančių kristalitu ribose išorinėje PBK tabletės dalyje (srityje, kur didesnės poros ir mažesnio dydžio kristalitai), išsiskyrimas yra svarbus tik esant kuro išdegimui daugiau nei 45 MWparos/kgU [10]. Nesant duomenų apie radionuklidus, iškart išsiskiriančius iš RBMK-1500 PBK ( $^{14}\text{C}$ ,  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$  ir kai kurių kitų radionuklidų), išsiskyrimas iškart šiame darbe įvertinamas remiantis pateikiamais duomenimis Švedijos bei Šveicarijos BWR PBK [11].

Urano dioksidas ( $\text{UO}_2$ ) yra stabilus esant redukciniams sąlygoms (tokios sąlygos esti kelių šimtų metrų gylyje, numatomo geologinių kapinynų įrengimui). Todėl dalijimosi produktų bei aktinidų sklaida iš PBK matricos yra ribojama mažo urano tirpumo. Tačiau vykstant vandens radiolizei ploname vandens sluoksnyje ties PBK matricos paviršiumi gali susidaryti oksidacinės sąlygos. Kaip pažymėta [12], vandens radiolizės metu susidaro oksidaciniai ir redukciniai junginiai radikalų pavidalu ( $\text{OH}^\cdot$ ,  $\text{HO}_2^\cdot$ ,  $e_{\text{aq}}^-$ ,  $\text{H}^\cdot$ ) ar molekulinės formos ( $\text{H}_3\text{O}^+$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ), kurių koncentracija priklauso nuo spinduliuotės rūšies ( $\alpha$  ar  $\beta\gamma$ ) bei spinduliuotės dozės. Radiolizės metu susidarę oksidantai oksiduoja PBK matricą sudarantį  $^{238}\text{U}$ . Tokiu būdu urano izotopai išsiskiria iš PBK matricos prisijungus vandenyje ištirpusiems ligandams. Priklausomai nuo sistemos redukcinių ir oksidacinių sąlygų bei vandens cheminės sudėties, vandenyje ištirpęs uranas gali sudaryti nuosėdas ant PBK matricos paviršiaus arba artimojo lauko aplinkoje [12]. Nors radiolizė gali padidinti PBK kitimo/irimo greitį esant deareacinėms sąlygoms, eksperimentai rodo, kad egzistuoja tam tikra riba, kai toks efektas nėra stebimas [13, 14].

Eksperimentai atlikti naudojant  $\text{UO}_2$  su implantuotais alfa spinduliais (urano dioksidas su jame implantuotais radioizotopais naudojamas kaip PBK analogas) bei eksperimentai naudojant PBK parodė, kad  $\text{H}_2$  labai sumažina PBK matricos irimo greitį ir molekulinę oksidantų koncentraciją [10, 15]. Radiolizės produktų išėiga ir PBK matricos irimo greitis taip pat gali kisti dėl radiolizės produktų reakcijų su  $\text{Fe(II)/Fe(III)}$ , susidarančių konteinerio intarpo korozijos metu. Tai ypač gali sumažinti PBK matricos irimo greitį, jei  $\text{Fe}^{2+}$  ar  $\text{H}_2$  reakcijų su radiolizės produktu  $\text{H}_2\text{O}_2$  greitis yra panašus ar didesnis nei  $\text{H}_2\text{O}_2$  reakcijos su  $\text{UO}_2$  greitis. Geležies įtaka PBK matricos irimui gali sumažėti dėl jos pasyvacijos susidaranciais geležies oksidais. Kadangi eksperimentinių duomenų apie RBMK-1500 PBK irimo greitį esant redukciniams sąlygoms nėra, vertinimuose buvo naudojami kito tipo PBK ir  $\text{UO}_2$  duomenys. Remiantis [7, 10, 16] PBK irimo greičio reikšmė pasirinkta  $10^{-7}$  per metus. Ši reikšmė yra eksperimentiškai gautų PBK irimo greičių ribose nuo  $10^{-6}$  iki  $10^{-8}$  per metus įvertinant  $\text{H}_2$  dujų įtaką matricos irimo greičiui.

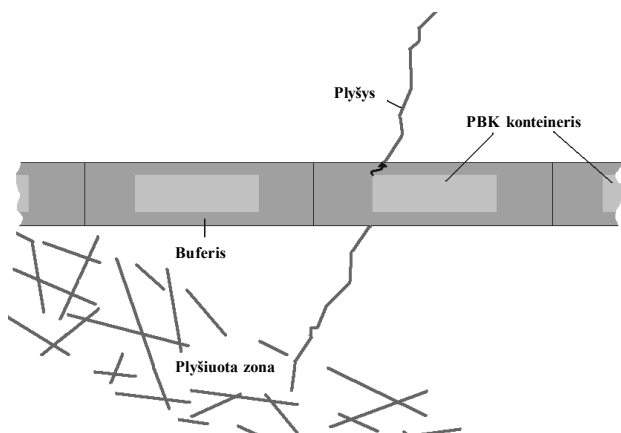
PBK matricai yrant joje buvę imobilizuoti radionuklidai pasklinda konteinerio viduje. Priklausomai nuo radionuklidų tirpumo dalis jų ištirpsta konteinerio viduje esančiame požeminiame vandenyje. Pasiekę tirpumo ribą, radionuklidai ima sudaryti nuosėdas. Dėl didelių neapib-

rėtųmų sorbcija<sup>1</sup> ant vidinių konteinerio dalių, PBK rinkelės struktūrinių dalių bei koncentracijų skirtumas konteinerio viduje konservatyviai nevertinami. Todėl radionuklidų sklaidą iš konteinerio ribos ne tik jų išsiskyrimo iš PBK matricos greitis, bet ir tirpumo riba. Tirpumo riba priklauso nuo į konteinerį patenkančio vandens cheminės sudėties, kuri savo ruožtu priklauso nuo cheminių procesų buferio medžiagose (joninių mainų montmorilonite, bentonite esančių priemaišų tirpimo, montmorilonito virtimo į nebrinkstančius mineralus procesų ir pan.) bei konteinerio viduje. Tirpumo riba gali kisti dėl galimų oksidacijos ir redukcijos potencialo pokyčių dėl į konteinerį patenkančio vandens radiolizės. Kadangi tirpumo riba taip pat priklauso nuo sąlygų kapinyne aplinkoje ir nėra įvertinta Lietuvoje PBK kapinyne atveju, radionuklidų tirpumo ribos reikšmės priimtos remiantis [4].

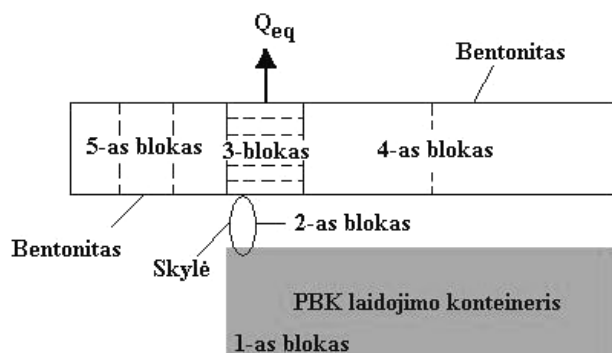
Požeminiame vandenyje ištirpusių radionuklidų sklaida iš kapinyne difuzijos ir / arba advekcijos būdu priklauso nuo kapinyne aplinkoje tikėtinų sąlygų bei nuo inžinerinių barjerų savybių. Molio pagrindu pagaminti inžineriniai barjerai pasižymi labai mažu pralaidumu vandeniui. Advekcinis radionuklidų pernešimas yra gerokai mažesnis nei molekulinės difuzijos būdu. Vandenyje ištirpę radionuklidai difunduoja molio porose esančiu vandeniu. Šiame darbe priimama, kad bentonito barjeras yra visiškai prisotinės vandens iki prasideda radionuklidų sklaida, o jo pralaidumas yra  $10^{-12}$  m/s. Todėl radionuklidų sklaida buferiu vyks molekulinės difuzijos būdu.

Elektrinio krūvio neturinčios molekulės mažai sąveikauja su molio porų paviršiumi. Neigiamą krūvį turinčioms dalelėms (anijonams) dėl stūmos jėgų nuo neigiamą krūvį turinčio porų paviršiaus porų tūris, kuriame gali sklisti dalelės, sumažėja (jonų išstūmimo efektas). Pavyzdžiui, jodo sklaidos greitis bus daug mažesnis nei dalelių, neturinčių elektrinio krūvio. Teigiamą krūvį turinčios dalelės (dauguma radionuklidų) bus pritraukiamos prie porų paviršiaus. Aktinidai yra stipriai absorbuojami ir sulaikomi. Kai kurie šarminiai ir šarminiai žemių metalai yra mobilūs koncentruotame sluoksnyje ant molio dalelių paviršiaus. Tokių dalelių sklaida gali būti kur kas didesnė nei krūvio neturinčių dalelių (paviršinė difuzija). Nors šios dalelės yra sutelktos porų paviršiuje (sorbuotos), jos yra mobilios būdamos sorbuotos ir todėl nebus efektyviai sulaikomos kaip kitos dalelės, sorbuotos dėl savitos tarpusavio sąveikos (paviršiaus kompleksacija). Molio porose esančio vandens druskingumas turi didelę įtaką jonų išstūmimo ir paviršinės sklaidos procesams. Šie procesai yra gana aiškūs mažo druskingumo vandenyje ir jų poveikis pastebimai mažėja, kai vanduo tampa druskingesnis [6]. Paprastai atliekant saugos vertinimus šie sąveikos procesai aprašomi linijinės sorbcijos koeficientu  $k_d$  ( $\text{m}^3/\text{kg}$ ), kuris apibrėžiamas kaip sorbuotų dalelių masės, tenkančios aplinkos medžiagos masės vienetui  $C_{\text{solid}}$  ( $\text{kg}/\text{kg}$ ), santykis su

<sup>1</sup> Sorbcijos sąvoka yra bendra ir apima visas ištirpusių radionuklidų reakcijas su porų paviršiumi: cheminę sorbciją, fizikinę sorbciją, joninius mainus ir pan.



1 pav. Kapinyno artimojo lauko aplinkos struktūrinė schema



2 pav. Radionuklidų sklaidos iš laidojimo konteinerio conceptualus modelis

ištirpusių dalelių mase, tenkančia vandens tūrio vienetui,  $C_{liquid}$  (kg/m<sup>3</sup>):  $k_d = \frac{C_{solid}}{C_{liquid}}$  [6].

Kadangi nuo kapinyno aplinkoje esančių sąlygų priklauso difuzijos, sorbcijos koeficientų (ypač  $K_d$ ), poringumo reikšmės, kurios nėra nustatytos Lietuvos atveju, priimta, kad šių parametrų reikšmės bus panašios į nustatytas parametrų reikšmes kitose šalyse esančiose kristalinėse uolienose [17]. Šios parametrų reikšmės buvo nustatytos apibendrinant esamus eksperimentinius duomenis, literatūroje pateikiamus duomenis ir / ar termodinaminius metodus naudojant gautus duomenis.

Plyšiuotose uolienose, kokios gali būti ir kristalinio pamato uolienos, požeminis vanduo teka daugiausia jose esančiais plyšiais. Uolienu plyšiuotumas (santykinis plyšių tūris) paprastai yra ne didesnis kaip 2% ir dažniausiai sudaro procento dalis. Laidojant PBK kristalinėse uolienose konteinerių su PBK patalpinimo plyšiuotose zonose bus išvengta, tačiau pavieniai plyšiai, kertantys patalpinimo tunelį, yra galimi (1 pav.). Didžiausias radionuklidų srautas tikėtinas, kai plyšys kerta patalpinimo tunelį netoli konteinerio sienelėje esančio defekto [18]. Todėl ši plyšio vieta ir nagrinėjama šiame darbe.

Radionuklidai, pasiekę išorinę bentonito buferio dalį, gali difunduoti į plyšiu tekantį vandenį ir toliau sklįsti tolimojo lauko aplinkoje. Radionuklidų pernašai į plyšiu tekantį vandenį turės įtakos buferio difuzinė varža bei plyšio aplinkoje esančios hidraulinės sąlygos. Šioje anali-

zeje remiantis [18] priimama, kad kapinyno aplinkoje yra 1% spūdzio gradientas, bentonito barjerą kertančio plyšio apertūra 250 μm, plyšio pralaidumas – 10<sup>-8</sup> m<sup>2</sup>/s.

### 3. RADIONUKLIDŲ SKLAIDOS MODELIAVIMAS

Kaip jau minėta, straipsnyje pateiktas radionuklidų sklaidos vertinimas atliktas konteinerio su defektu scenarijaus atveju. Darbe priimtos šios anksčiau minėtos pagrindinės prielaidos, susijusios su radionuklidų sklaida artimajame lauke:

- iš 1400 Lietuvos PBK laidojimo reikmėms reikalingų konteinerių vienas konteineris praeis patikrą turėdamas 1 mm<sup>2</sup> dydžio defektą sienelėje;
- praėjus 200 tūkst. metų po kapinyno uždarymo pradinis defektas padidėja nuo 1·10<sup>-6</sup> m<sup>2</sup> (1 mm<sup>2</sup>) iki 1·10<sup>-2</sup> m<sup>2</sup> (1 dm<sup>2</sup>);
- praėjus 200 tūkst. metų po kapinyno uždarymo požeminis vanduo ima sąveikauti su PBK matrica;
- defektui padidėjus laidojimo konteinerio viduje esanti ertmė (apie 0,5 m<sup>3</sup>) bus užpildyta vandeniu;
- PBK rinklės struktūrinėse dalyse esančių radionuklidų sklaidos šios dalys neribojamos;
- dalies PBK matricoje esančių radionuklidų išsiskyrimas galimas iškart (<sup>14</sup>C, <sup>79</sup>Se, <sup>129</sup>I, <sup>135</sup>Cs ir kai kurių kitų radionuklidų) ir palaipsniui yrant PBK matricai;
- konteineryje esančiame vandenyje nėra ištirpusių radionuklidų koncentracijų skirtumo;
- bentonito barjerą yra visiškai prisotinęs vandens iki prasideda radionuklidų sklaida;
- vandenyje ištirpę radionuklidai sklinda iš konteinerio difuzijos būdu;
- bentonito barjero išorinę ribą pasiekę radionuklidai patenka į uolienose esantį plyšį.

Atliekant šią preliminarą analizę buvo įvertinti pagrindiniai procesai, lemiantys radionuklidų sklaidą iš PBK kapinyno kristalinėse uolienose. Galimi realaus kapinyno įgyvendinant KBS-3H laidojimo koncepciją ypatumai bei to sąlygojami specifiniai procesai (bentonito barjero medžiagos kiekio persiskirstymas ar nuostoliai, galima dujų burbulų ir lakiųjų radionuklidų sklaida, dujų kaupimasis patalpinimo tunelio viršutinėje dalyje, cheminiai bentonito buferio pokyčiai, plieninių elementų (komponentų) įtaka bentonito reologinėms savybėms, brinkimui bei hidrauliniui laidumui) [19], taip pat jų poveikis radionuklidų sklaidai šiame darbe nebuvo įvertinti.

Kaip jau minėta, dėl labai mažo bentonito buferio pralaidumo radionuklidų sklaida iš PBK matricos artimajam lauke vyks daugiausia difuzijos būdu. Radionuklidų sklaidos vertinimui buvo naudojama metodologija, pateikta [20].

PBK esantys radionuklidai gali išsiskirti iš jos tik yrant PBK matricai. Iškart išsiskiriantis radionuklidų dalis įvertinama koeficientu.  $n$ -ojo radionuklido kiekis PBK matricoje iki ji ima sąveikauti su požeminiu vandeniu, aprašomas lygtimi:

$$\frac{dM_{matrix}^n}{dt} = -\lambda^n M_{matrix}^n + \lambda^{n+1} M_{matrix}^n; \quad (1)$$

čia  $M_{matrix}^n$  –  $n$ -ojo radionuklido kiekis PBK matricoje (mol),  $\lambda^n, \lambda^{n+1}$  –  $n$ -ojo radionuklido bei jo motininio radionuklido radioaktyviojo skilimo konstantos (1/metai).

Kai PBK matrica ima sąveikauti su požeminiu vandeniu (laiko momentu  $t_c$ ), iškart išsiskirianti radionuklido dalis patenka į konteinerio viduje esantį vandenį:

$$M^n(t_c) = F^n \cdot M_{matrix}^n(t_c); \quad (2)$$

čia  $F^n$  – koeficientas, nusakantis iškart išsiskiriančią radionuklido kiekio dalį (-),  $M_{matrix}^n$  –  $n$ -ojo radionuklido kiekis (mol) PBK matricoje laiko momentu  $t_c$ .

$n$ -ojo radionuklido kiekis PBK matricoje ( $t > t_c$ ) aprašomas lygtimi:

$$\frac{dM_{matrix}^n}{dt} = -N^n - \lambda^n M_{matrix}^n + \lambda^{n+1} M_{matrix}^{n+1}; \quad (3)$$

čia  $N^n$  –  $n$ -ojo radionuklido srautas iš PBK matricos, priklausantis nuo PBK matricos kitimo / irimo greičio (mol/metai).

$n$ -ojo radionuklido kiekis konteinerio viduje  $M^n$  (mol) aprašomas lygtimi ( $t > t_c$ ):

$$\frac{dM^n}{dt} = N^n - \lambda^n M^n + \lambda^{n+1} M^{n+1} - B^n; \quad (4)$$

čia  $B^n$  (mol/metai) – radionuklidų srautas iš konteinerio į jį supantį bentonito barjerą.

Įvertinus kiekvieno radionuklido kiekį, galima įvertinti jų koncentraciją konteinerio viduje. Galimi du atvejai: kai radionuklidų koncentracija pasiekia tirpumo ribą arba nepasiekia. Tarkime,  $M^e$  – bendra elemento e izotopų (kurių vienas yra  $n$ -asis radionuklidas) masė. Tada  $n$ -ojo radionuklido koncentracija bus įvertinama šitaip:

$$C^n = \frac{M^n}{V_r}, \text{ jei } M^e \leq V_r \cdot C_{sol}^e, \quad (5)$$

$$C^n = \frac{M^n}{M^e} \cdot C_{sol}^e, \text{ jei } M^e > V_r \cdot C_{sol}^e; \quad (6)$$

čia  $V_r$  – konteinerio viduje esančio vandens tūris ( $m^3$ ) ir  $C_{sol}^e$  elemento e tirpumo riba.

Radionuklidų sklaidos iš konteinerio į jį supantį bentonito barjerą įvertinimui pasinaudojama masės tvermės dėsnio vienietiniam tūriui:

$$\begin{aligned} \varepsilon R^n \frac{dC^n}{dt} &= \nabla \cdot D_e^n \nabla C^n - \varepsilon R^n \lambda^n C^n + \\ &+ \varepsilon R^{n+1} \lambda^{n+1} C^{n+1} + S^n; \end{aligned} \quad (7)$$

čia  $D_e^n$  –  $n$ -ojo radionuklido efektyvios difuzijos koeficientas įvairiose artimo lauko aplinkos medžiagose ( $m^2$ /metai),  $S^n$  – bendras radionuklido šaltinius įvertinantis lygties narys (pavyzdžiui, taikant šią lygtį konteinerio viduje esančio vandens rezervuaro atveju radionuklidų šaltinis yra jų srautas iš PBK).  $R$  yra vėlinimo koeficientas, išreiškiamas taip:

$$R = 1 + \frac{1 - \varepsilon}{\varepsilon} K_d \rho_s; \quad (8)$$

čia  $\varepsilon$  – medžiagos poringumo rodiklis ( $m^3/m^3$ );  $K_d$  –  $n$ -ojo radionuklido sorbcijos koeficientas ( $m^3/kg$ );  $\rho_s$  – medžiagos tankis ( $kg/m^3$ ).

Dėl kapinyno geometrijos, kapinyno įrengimui naudojamų įvairių medžiagų, kuriomis sklinda radionuklidai, jų sklaidą įvertinti naudojant analitinius sprendinius labai sunku. Siekiant išvengti nuodugnių trimačių ir ilgai trunkančių vertinimų, buvo naudotas integralinis baigtinių skirtumų metodas bei sistemos dalijimo į elementus (blokus) koncepcija. Tam tikrose vietose, kur taikant įprastus skaitmeninius metodus reikia labai išsamaus sistemos diskretizavimo, naudojami analitiniai sprendiniai [20]. Remiantis šia metodologija sudarytas ir pateiktas artimojo lauko aplinkos conceptualus modelis (2 pav.). Masės tvermės dėsnis bloke, sujungtame su sekančiu bloku, išreiškiamas šitaip:

$$\begin{aligned} V_i \varepsilon_i R_i^n \frac{dC_i^n}{dt} &= V_i \cdot S^n + V_i \varepsilon_i R_i^{n+1} C_i^{n+1} \lambda^{n+1} - \\ &- V_i \varepsilon_i R_i^n C_i^n \lambda^n - \sum_j \left( \frac{AD_e}{d} \Delta C \right)_{i,j}^n; \end{aligned} \quad (9)$$

čia paskutinis lygties narys išreiškia  $n$ -ojo radionuklido sklaidą per blokų ribą. Paskutinį narį galima išreikšti difuzine varža  $R_{diffusion}$  pasinaudojant analogija su elektrine varža:

$$R_{diffusion} = \frac{d}{AD_e}; \quad (10)$$

čia  $d$  – bloko ilgis radionuklidų sklaidos kryptimi (m) ir  $A$  – skerspjūvio plotas statmenai sklaidos kryptimi ( $m^2$ ).

Radionuklidų sklaidą į buferio plyšį riboja ribinio sluoksnio varža. Sklaida į plyšį gali būti įvertinta fiktyviu ekvivalentiniu vandens srautu  $Q_{eq}$  [18]:

$$Q_{eq} = 2\pi \cdot r_2 \cdot 2b_v \sqrt{\frac{4D_w u}{\pi^2 \cdot r_2^2}}; \quad (11)$$

čia  $2b_v$  – plyšio apertūra (m),  $r_2$  – patalpinimo tunelio spindulys (m),  $D_w$  – difuzijos koeficientas vandenyje ( $m^2$ /metai),  $u$  – vandens tekėjimo plyšyje greitis (m/metai).

#### 4. REZULTATŲ APTARIMAS

Kaip matyti 3 paveiksle, dauguma RBMK-1500 kapinyno saugai svarbių radionuklidų efektyviai sulaikomi artimojo lauko aplinkoje. Radionuklidų srautą iš artimojo lauko pradžioje nulemia radionuklidai  $^{59}Ni$  ir  $^{129}I$ , praėjus apie 50 tūkst. metų vyrauja radionuklidas  $^{226}Ra$ .  $^{226}Ra$  – dukterinis  $^{238}U$  skilimo grandinės radionuklidas ir yra mobilus nei jo motininiai radionuklidai. Detalesnė rezultatų analizė parodė, kad radionuklidų  $^{79}Se$ ,  $^{93}Zr$ ,  $^{99}Tc$ ,  $^{107}Pd$ ,  $^{126}Sn$ ,  $^{229}Th$ ,  $^{230}Th$ ,  $^{231}Pa$ ,  $^{232}Th$ ,  $^{233}U$ ,  $^{234}U$ ,  $^{235}U$ ,  $^{236}U$ ,  $^{237}Np$ ,

$^{238}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{242}\text{Pu}$  koncentraciją konteineryje bei jų sklaidą iš konteinerio riboja jų tirpumo riba.

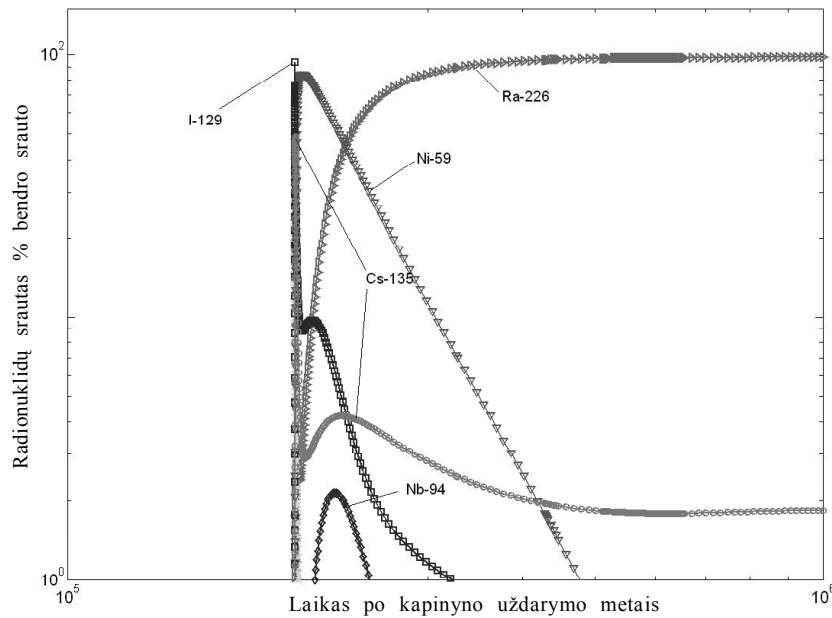
**4.1. Parametrų jautrumo analizė**

Remiantis metodologija, pateikta [21], atlikta parametrų, turinčių tiesioginę įtaką radionuklidų sklaidai iš artimojo lauko (PBK matricos irimo greičio, tirpumo ribos, difuzijos, sorbcijos koeficientų), jautrumo analizė. Pirmausia įvertinama radionuklidų sklaida esant būdingoms parametrų reikšmėms. Po to įvertinama radionuklidų sklaida esant pakeistai analizuojamo parametro reikšmei (padaugintai iš variacijos koeficiento) ir nustatomas didžiausios radionuklidų srauto reikšmės santykinis poky-

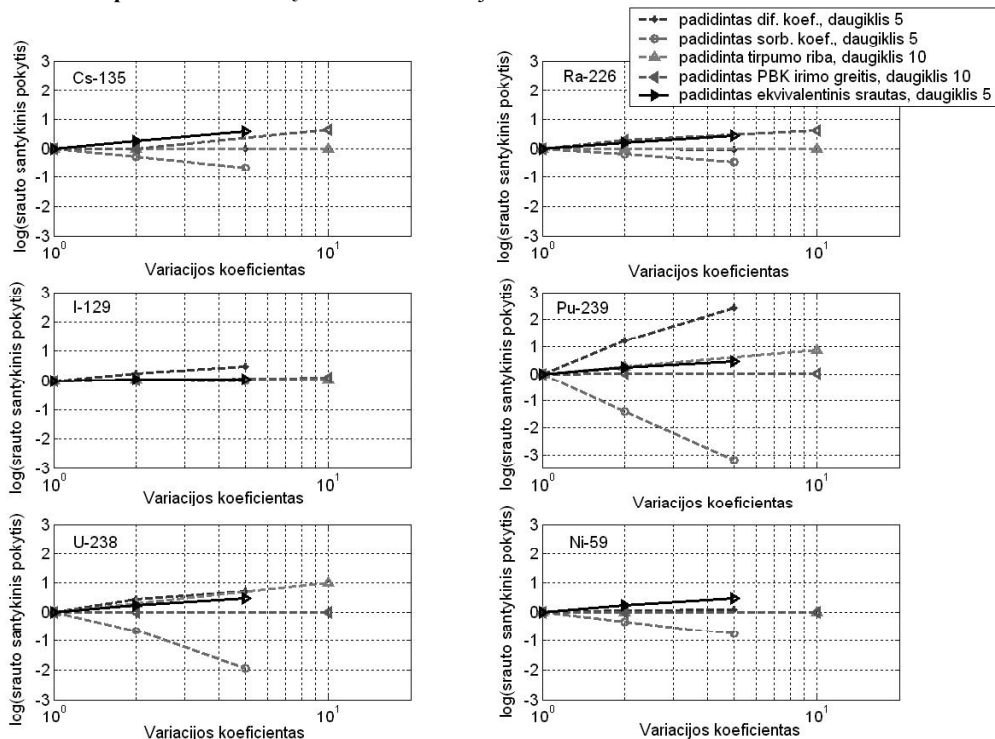
tis. Jautrumo analizė atlikta radionuklidams, kurie parinkti atsižvelgiant į jų pusėjimo trukmę, sorbcines, difuzines savybes ( $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{238}\text{U}$ ).

Sorbcijos ir difuzijos parametrų reikšmės ir jų kitimo ribos, pateiktos [17], rodo, kad kai kurių radionuklidų atveju šios ribos yra gana didelės. Minėtų parametrų variacijos koeficientas parinktas lygus 5. Kadangi tirpumo ribos kitimas galimas vienos eilės ribose, parametro variacijos koeficientas priimtas lygus 10 [21]. Ekvivalentinio vandens srauto parametro variacijos koeficientas priimtas lygus 5, o tai atitiktų plyšio pralaidumo padidėjimą 10 kartų.

PBK matricos irimo greičio neapibrėžtumai turi įtakos srautui tų radionuklidų, kurių koncentracija konteinerio



3 pav. Radionuklidų srautas iš artimojo lauko



4 pav. Parametrų jautrumo analizės rezultatai

viduje esančiame vandenyje nėra ribojama jų tirpumo ribos ( $^{226}\text{Ra}$  atveju, srauto iš artimojo lauko maksimumas padidėjo apie 4 kartus) (4 pav.).

Padidėjus PBK matricos irimo greičiui, įtaka radionuklidų  $^{135}\text{Cs}$ ,  $^{129}\text{I}$  srautui iš artimojo lauko priklausys nuo to, kuri radionuklido srauto dalis (iškart ar palaipsniui iš PBK išsiskiriantys srautai) nulemia didžiausią radionuklido srautą iš artimojo lauko. Nagrinėjamu atveju, padidėjus PBK matricos irimo greičiui 10 kartų, cezio srauto iš artimojo lauko aplinkos maksimumas padidėjo apie 4 kartus, tuo tarpu jodo srauto iš artimojo lauko maksimumas pakito tik apie 24%, nes padidėjęs radionuklidų srautas, lemiamas palaipsninio PBK irimo, tampa tik panašios eilės kaip srauto dalis, lemiamas IRF.

Radionuklidų, kurių koncentraciją konteineryje esančiame vandenyje riboja jų tirpumo riba, srautui iš artimojo lauko tirpumo ribos pokytis turi didelę įtaką ( $^{238}\text{U}$  srauto maksimumas padidėjo apie 10 kartų,  $^{239}\text{Pu}$  – apie 7 kartus). Difuzijos koeficiento padidėjimas turi didesnę įtaką radionuklidų srauto maksimumui iš kapinyno, kai radionuklido koncentracija konteineryje išlieka pastovi (pavyzdžiui, ribojama tirpumo ribos). Šiuo atveju sumažėjus bentonito barjero difuzinei varžai ir padidėjus koncentracijos gradientui padidėja radionuklido srautas iš artimojo lauko ( $^{238}\text{U}$  atveju apie 5 kartus,  $^{239}\text{Pu}$  atveju apie 250 kartų šiame darbe). Kitu atveju padidėjęs difuzijos koeficientas gali sąlygoti radionuklidų srauto iš artimojo lauko padidėjimą kol radionuklidų sklaidą riboja bentonito barjero difuzinė varža, o ne sklaidi galinčių radionuklidų koncentracija (kaip Ra atveju). Kadangi jodo atveju jo difuzijos koeficientas yra mažas, palyginti su cezio, padidėjus šiam koeficientui jodo srautas iš artimojo lauko padidėja. Tačiau šis padidėjimas nėra toks žymus (jodo srauto maksimumas padidėjo apie 3 kartus) kaip radionuklidų, kurių koncentraciją konteineryje riboja tirpumo riba, nes dalis jodo radionuklidų greičiau praeina artimojo lauko aplinką, sumažėja jų koncentracija konteineryje ir sumažėja koncentracijos gradientas.

Sorbcijos koeficiento neapibrėžtumai turi didelę įtaką labiau sorbuojamiems radionuklidams. Dėl padidėjusios sorbcijos sorbuojami radionuklidai ilgiau būna artimo lauko aplinkoje ir turi daugiau laiko suskilti iki nežymių koncentracijų. Konteinerį supančio bentonito sorbcinė geba ir plyšio kristalinėse uolienose hidraulinės savybės (per ekvivalentinį vandens srautą) šalia patalpinto konteinerio su PBK turi būti įvertintos kuo tiksliau, siekiant sumažinti radionuklidų srauto į tolimojo lauko aplinką neapibrėžtumus. Padidėjus sorbcijos koeficientui 5 kartus radionuklidų srautas sumažėjo  $10^1$ – $10^4$  kartų, padidėjus plyšio pralaidumui (ir  $Q_{eq}$ ) radionuklidų srauto maksimumas padidėjo apie 3–4 kartus. Kita vertus, nesorbuojamo ilgaamžio jodo ( $^{129}\text{I}$ ), kurio difuzijos koeficientas yra mažas, atveju hidraulinių savybių neapibrėžtumai turi labai mažą įtaką jo srautui iš artimojo lauko aplinkos.

## IŠVADOS

Atlikus preliminarią radionuklidų sklaidos koncepcinio Lietuvos PBK kapinyno artimojo lauko aplinkoje analizę konteinerio su defektu scenarijaus atveju galima padaryti šias išvadas:

1. Dauguma RBMK-1500 PBK kapinyno saugos vertinimui svarbių radionuklidų efektyviai sulaikomi artimojo lauko aplinkoje. Pradžioje radionuklidų srautą iš artimojo lauko lemia radionuklidai  $^{59}\text{Ni}$  ir  $^{129}\text{I}$ , o vėliau, praėjus apie 50 tūkst. metų, ima vyravuti  $^{226}\text{Ra}$ .

2. Parametrų jautrumo analizė parodė, kad  $^{226}\text{Ra}$  srauto iš artimojo lauko reikšmei turi didesnę įtaką ekvivalentinio vandens srautas, PBK matricos irimo greičio ir sorbcijos neapibrėžtumai, tuo tarpu nesorbuojamo  $^{129}\text{I}$  srautui įtakos turi tik difuzijos koeficiento neapibrėžtumai.

## PADEKA

Publikacija parengta vykdant biudžetinę temą bei Lietuvos valstybinio mokslo ir studijų fondo finansuojamą mokslo programą (reg. Nr. C-03049).

Už suteiktą pagalbą ir konsultacijas autoriai dėkingi P. Sellin, F. Vahlund (SKB, Švedija) ir I. Neretnieks, L. Moreno, J. Crawford (KTH, Švedija).

Gauta 2007 01 16  
Parengta 2007 03 20

## Literatūra

1. Brazauskaitė A., Poškas P. Radionuklidų sklaida iš kristalinėse uolienose įrengto geologinio kapinyno RBMK-1500 panaudotam branduoliniam kurui laidoti. 1. Kapinyno koncepcija // Energetika. 2005. Nr. 3. P. 70–78.
2. Brazauskaitė A., Poškas P. Radionuklidų sklaida iš kristalinėse uolienose įrengto geologinio kapinyno RBMK-1500 panaudotam branduoliniam kurui laidoti. 2. Geologinio kapinyno saugos vertinimui svarbių radionuklidų identifikavimas // Energetika. 2006. Nr. 2. P. 47–56.
3. Scenario development Methods and Practice. An evaluation based on the NEA Workshop on scenario development, Madrid, Spain, 1999 // Proceedings of NEA workshop / Nuclear Energy Agency. Paris: OECD, 1999. 241 p.
4. SR 97. Deep Repository for Spent Nuclear Fuel. SKB Technical Report TR-99-06, 1999.
5. International Atomic Energy Agency. Deep Underground Disposal of Radioactive Wastes // Near-Field Effects. Technical reports series No. 251. IAEA, Vienna, 1985. 60 p.
6. International Atomic Energy Agency. Model Formulation, Implementation and Data for Safety Assessment of Near Surface Disposal Facilities. Working document: ISAM/MDWG/WD01, Version 0.4, Modelling and Data Working Group, 2001. 192 p.
7. Interim Main Report of the Safety Assessment SR-Can. SKB Report TR-04-11. 2004. 378 p.

8. Ferry C. Key processes affecting the dissolution and release from the Spent Nuclear Fuel // NF-PRO's 2nd Training Course-workshop. Cardiff, Wales, 19–21 October, 2005.
9. Johnson L. et al. Spent fuel radionuclide source-term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part I: Assessment of the instant release fraction // Journal of Nuc. Mat. 2005. No. 346. P. 56–65.
10. Spent Fuel Performance Under Repository Conditions: A model for use in SR-Can. SKB Technical Report TR-04-19. 2004. 34 p.
11. Project Opalinus Clay: Safety report. Demonstration of Disposal Feasibility for Spent Fuel, Vitrified High-level Waste and Long-lived Intermediate-level Waste (Entsorgungsnachweis). Nagra Technical Report NTB 02-05, Wettingen, 2002.
12. Poinssot C. et al. Spent fuel radionuclide source-term model for assessing spent fuel performance in geological disposal. Part II: Matrix alteration model and global performance // Journal of Nuc. Mat. 2005. Vol. 346. P. 66–77.
13. Ferry C. Key processes affecting the dissolution and release from the Spent Nuclear Fuel // NF-PRO's 2nd Training Course-workshop. Cardiff, Wales, 19–21 October, 2005.
14. Grambow B. Modelling approaches. Glass dissolution, Spent fuel dissolution // NF-PRO's 2nd Training Course-workshop. Cardiff, Wales, 19–21 October, 2005.
15. Broczkowski M. E. et al. The inhibiting effects of hydrogen on the corrosion of uranium dioxide under nuclear waste disposal conditions // Journal of Nuc. Mat. 2005. Vol. 346. P. 16–23.
16. Cavedon J. M. Development of radionuclides source term for spent fuel in geological disposal. Major outcomes of the European projects "In Can Proc" and "Spent Fuel Stability" // Proceedings of EURADWASTE'04. Luxembourg, 29–31 March, 2004.
17. Data and Uncertainty Assessment. Migration Parameters for the Bentonite Buffer in the KBS-3 Concept. SKB technical Report TR-04-18, 2004. 159 p.
18. Nordman H., Vieno T. Equivalent Flow Rates from Canister Interior into the Geosphere in a KBS-3H Type Repository. Posiva working report 2004-06, 2004. 14 p.
19. Thurner E. et al. KBS-3H – development of the horizontal disposal concept // Proc. of Int. Conference TopSeal 2006. Oulkuoto, 17–20 September 2006 (accepted for publication).
20. Romero L. et al. Fast multiple path model to calculate radionuclide release from the near field of a repository // Nuclear Technology. 1995. Vol. 112. P. 86.
21. Romero L. et al. Sensitivity of the radionuclide release from a repository to the variability of materials and other properties // Nuclear Technology. 1996. Vol. 113. P. 316–326.

**Asta Brazauskaitė, Povilas Poškas**

### **RADIONUCLIDE MIGRATION FROM THE GEOLOGICAL REPOSITORY OF THE RBMK-1500 SPENT NUCLEAR FUEL IN CRYSTALLINE ROCKS 3. RADIONUCLIDE RELEASE FROM THE NEAR FIELD**

#### **Summary**

Assessment of radionuclide release from the near field for canister defect scenario was performed for the identified safety-relevant radionuclides. First of all the processes defining radionuclide migration from the repository of the RBMK-1500 spent nuclear fuel (SNF) were discussed. For radionuclide migration assessment the computer code COMPULINK7 (Sweden) was used. The results of analysis show that most of safety-relevant radionuclides of the RBMK-1500 SNF are effectively retarded in the near field region. The release is first dominated by  $^{59}\text{Ni}$  and  $^{129}\text{I}$  while after approx. 50 thousand years  $^{226}\text{Ra}$  will dominate. Sensitivity analysis was also performed for the parameters that have a direct influence on the releases.

**Key words:** disposal in crystalline rocks, RBMK-1500 spent nuclear fuel, radionuclide release, canister defect scenario, near field, parameter sensitivity analysis

**Аста Бразаускайте, Повилас Пошкас**

### **МИГРАЦИЯ РАДИОНУКЛИДОВ ИЗ ГЕОЛОГИЧЕСКОГО МОГИЛЬНИКА В КРИСТАЛЛИЧЕСКИХ МАССИВАХ ДЛЯ ЗАХОРОНЕНИЯ ОТРАБОТАВШЕГО ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА РБМК-1500 3. МИГРАЦИЯ РАДИОНУКЛИДОВ В БЛИЗКОЙ ЗОНЕ МОГИЛЬНИКА**

#### **Резюме**

В настоящей статье представлены результаты оценки миграции радионуклидов в близкой зоне могильника для сценария дефектного контейнера. Прежде всего обсуждены процессы, определяющие миграцию радионуклидов из могильника для захоронения отработавшего ядерного топлива (ОЯТ) РБМК-1500.

Оценка миграции была выполнена для радионуклидов, важных для безопасности могильника. Для оценки миграции радионуклидов использовался компьютерный код COMPULINK7 (Швеция). Результаты анализа показывают, что большинство важных радионуклидов в ОЯТ РБМК-1500 будут эффективно задержаны в близкой зоне могильника. В потоке радионуклидов из близкой зоны могильника доминируют радионуклиды  $^{129}\text{I}$  и  $^{59}\text{Ni}$ , а спустя около 50 тысяч лет –  $^{226}\text{Ra}$ . Также был проведен анализ чувствительности параметров, имеющих непосредственное влияние на интенсивность миграции.

**Ключевые слова:** захоронение в кристаллических массивах, отработавшее ядерное топливо РБМК-1500, миграция радионуклидов, сценарий дефектного контейнера, близкая зона могильника, анализ чувствительности параметров