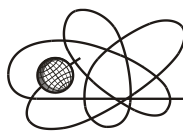




Российская Академия Наук

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

**ИНСТИТУТ ПРОБЛЕМ
БЕЗОПАСНОГО РАЗВИТИЯ
АТОМНОЙ ЭНЕРГЕТИКИ**



ИБРАЭ

RUSSIAN ACADEMY OF SCIENCES

**NUCLEAR SAFETY
INSTITUTE**

Препринт ИБРАЭ № ИБРАЭ-2017-11

Preprint IBRAE-2017-11

**К. А. Болдырев, Д. В. Крючков, К. В. Мартынов,
А. С. Нужный, В. В. Сускин**

**РАЗРАБОТКА РАСЧЕТНЫХ МЕТОДОВ
ОЦЕНКИ МИГРАЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ
ЗА ПРЕДЕЛЫ ИББ С УЧЕТОМ
ИХ ЭВОЛЮЦИИ**

Москва
2017

Moscow
2017

Болдырев К. А., Крючков Д. В., Мартынов К. В., Нужный А. С., Сускин В. В. РАЗРАБОТКА РАСЧЕТНЫХ МЕТОДОВ ОЦЕНКИ МИГРАЦИИ РАДИОНУКЛИДОВ ЗА ПРЕДЕЛЫ ИББ С УЧЕТОМ ИХ ЭВОЛЮЦИИ. Препринт ИБРАЭ № ИВРАЕ-2017-11 — Москва: ИБРАЭ РАН, 2017. — 23 с. — Библиогр.: 33 назв. — 46 экз.

Аннотация

В данной работе описаны расчетные методы комплекса РПК Б Destruct (Degradation structure), предназначенного для учета процессов эволюции барьеров безопасности при оценке миграции радионуклидов за их пределы. Представлены расчетные модели выщелачивания из стекломатриц, коррозии металлических, деградации бетонных, эволюции бентонитовых барьеров безопасности. Приведены примеры расчетов тестовых задач.

©ИБРАЭ РАН, 2017

Boldyrev K. A., Kryuchkov D. V., Martinov K. V., Nuzhny A. S., Suskin V. V. DEVELOPMENT OF CALCULATION METHODS FOR ESTIMATING THE MIGRATION OF RADIONUCLIDES BEYOND THE ENGINEERING SAFETY BARRIERS, TAKING INTO ACCOUNT THEIR EVOLUTION. Preprint IBRAE-2017-11 — Moscow: Nuclear Safety Institute, 2017 — 23 p. — Bibliogr: 33 items.

Abstract

Computational methods of the complex RPK B Destruct (Degradation structure) is presented. It designed to take into account the evolution of engineering safety barriers in the assessment of migration of radionuclides beyond their limits. Calculation models of leaching from glass matrices, corrosion of metallic, degradation of concrete, evolution of bentonite safety barriers are presented. Examples of calculation of test tasks are given.

©Nuclear Safety Institute, 2017

Разработка расчетных методов оценки миграции радионуклидов за пределы ИББ с учетом их эволюции

К. А. Болдырев, Д. В. Крючков, К. В. Мартынов, А. С. Нужный, В. В. Сускин

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

Введение	3
1 Общее описание разрабатываемого инструмента	3
2 Принципы задания исходных данных и сценариев эволюции ИББ.....	4
3 Формализация процессов изменения миграционных параметров при оценке эволюции барьеров	5
4 Математические модели решения уравнений переноса камерным методом.....	12
5 Результаты апробации реализуемых подходов на простых моделях.....	14
Заключение	21
Литература.....	22

Введение

Анализ безопасности объектов использования атомной энергии предполагает оценку воздействия объекта на окружающую среду и человека. Подобные исследования, как правило, подразумевают консервативные допущения о масштабах выхода радионуклидов из источника, о сроках сохранения защитных свойств инженерных барьеров безопасности (ИББ) (матрицы РАО, материалов контейнеров, гидроизоляционных и сорбционных экранов) и о скоростях распространения радионуклидов в них. Снижение консервативности таких оценок – актуальная на сегодняшний день задача расчетных исследований.

Разрабатываемый расчетно-прогностический комплекс Destruct (Degradation Structure) должен обеспечить прогнозирование динамики прохождения радионуклидов сквозь каскад ИББ с учетом изменения их защитных (противомиграционных и сорбционно-осадительных) свойств. Создание такого инструментария позволит обеспечить возможность моделирования перечня физико-химико-биологических процессов, приводящих к деградации ИББ, учета влияния деградации на изменение защитных свойств барьеров и оценки масштаба выхода радионуклидов за их пределы.

Результатом работы разрабатываемого комплекса является определение временной зависимости миграции радионуклидов через изолирующие слои и систему инженерных барьеров безопасности объекта вплоть до выхода их во вмещающие горные породы с учетом изменения защитных свойств барьеров в пространственных пределах системы ИББ объекта.

1 Общее описание разрабатываемого инструмента

В целом архитектуру комплекса можно представить в виде элементов, распределенных по нескольким группам (рис. 1):

- данные, необходимые для моделей, используемых при расчетах, обеспечивающих оценку деградации основных ИББ – бетона и бентонита, коррозии металлических ИББ, выщелачивание радионуклидов из матриц, миграции радионуклидов сквозь каскад барьеров с учетом физико-химико-биологических процессов;

- модели, в которых заложены принципиальные зависимости формализованных процессов деградации, миграции, изменения свойств материалов и среды от времени и сопутствующих процессов и механизмов;
- процедуры определения актуальных параметров и зависимостей на основе описанных моделей с учетом текущего состояния и влияния внешних факторов;
- расчетные инструменты, обеспечивающие анализ возможности и степень деградации барьеров безопасности и миграции радионуклидов за их пределы;
- пост- (и пре-) процессорная обработка исходных данных и результатов расчета, анализ неопределенностей и представление отчетов всего анализа пользователю либо стороннему программному средству.



Рисунок 1 — Структура компонентов комплекса Destruct

Результатами работы комплекса являются:

- динамика изменения радионуклидного состава источника;
- непрерывно изменяющиеся в процессе деградации свойства материалов и параметры физико-химико-биологических процессов, влияющие на конструкционные характеристики барьеров безопасности;
- динамика изменения концентрации и удельной активности радионуклидов, прошедших каскад барьеров безопасности.

2 Принципы задания исходных данных и сценариев эволюции ИББ

Особенностью прогнозирования является тот факт, что при проведении расчетного анализа безопасности одним из определяющих факторов является не только точность исходной информации об объекте, но и ее адекватная интерпретация. Вследствие этого, моделирование процессов в ближней зоне (в пределах ИББ) объекта исследования предполагает корректное задание ряда параметров и характеристик, необходимых для последующего выполнения расчетной части задачи. Их учет необходим для достоверного прогнозирования динамики выхода радионуклидов из ближней зоны и дальнейшего расчета их распространения в дальней зоне (вмещающих объект горных породах).

В рамках разработки комплекса реализуется сценарный подход, предполагающий последовательный запуск ряда расчетных средств, исходными данными для которых являются сценарии изменения параметров, оцененные на предыдущем шаге другими расчетными средствами.

Основной состав разрабатываемых расчетных элементов комплекса предполагает оценку динамики растворения матрицы РАО и выхода из нее радионуклидов (выщелачивание), моделирование динамики изменения фильтрационных, диффузионных и сорбционных свойств ИББ, формирование сценариев эволюции ИББ и непосредственно моделирование миграции загрязнителя сквозь ИББ с выходом за их пределы.

Перед запуском расчетных ядер моделирования миграции радионуклидов, в процессе подготовки сценариев изменения параметров источника для расчетной модели формируется таблица-расписание изменения относительной (нормированной на общую начальную величину) концентрации/удельной активности радионуклидов во времени. В таком виде обеспечивается более гибкий и универсальный подход к заданию сценарных изменений.

Таким образом, при запуске расчетных модулей, динамика изменения параметров источника будет автоматически учитываться преобразованной моделью.

Для задания параметров источника необходима возможность учета радиационных (радиационная деградация, тепловыделение, образование дочерних продуктов и пр.), физических (влияние давления, температуры и внешних нагрузок на разрушение матрицы РАО, и их влияние на выщелачивание матрицы РАО и др.) и химических параметров (зависимость скорости выщелачивания матрицы РАО от химического состава и величины рН подземной воды, зависимость скоростей химических реакций от температуры, влияние биологических процессов на деградацию матрицы РАО, а также роль коллоидов и биоколлоидов на содержание радионуклидов в подземной воде).

Структура комплекса предполагает формирование матрицы значений параметров, зависящих от времени и прочих условий для каждого материала ИББ. При моделировании происходит комплексный учет происходящих процессов согласно свойствам самих материалов, основными факторами влияния, которые необходимо учитывать в моделировании, являются:

- температурные нагрузки и их связь с процессами внутри системы ИББ;
- состав подходящей к каскаду ИББ природной воды;
- процессы выщелачивания ИББ;
- процессы радиационной, термической и химической эволюции материалов ИББ;
- процессы сорбции, диффузии и фильтрации в ИББ.

Для решения задач определения значений параметров или их функциональной зависимости от времени могут применяться верифицированные коды, детально описывающие принципиально важные процессы (химия, биология и пр.).

3 Формализация процессов изменения миграционных параметров при оценке эволюции барьеров

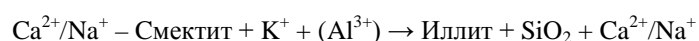
Основная функция барьеров безопасности – препятствовать миграции радионуклидов из источника как за счет препятствия миграции вследствие ограничения фильтрации, так и за счет препятствия миграции вследствие сорбции и осаждения радионуклидов в массиве барьера. Эволюция системы ИББ сопровождается изменением их физических и химических свойств.

В процессе эволюции наблюдаются следующие изменения:

- в процессе химической деструкции монтмориллонита в бентоните может происходить изменение сорбционной емкости, а также увеличение проницаемости;
- при эволюции бетонных барьеров происходит сложный комплекс преобразований, приводящих к изменению проницаемости, а также изменению сорбционных свойств бетонного барьера;
- продукты коррозии металлоконструкций влияют как на сорбционные свойства контактирующих барьеров, например, бентонита, занимая сорбционные центры ионами железа, а также вызывая его цементацию оксидными и карбонатами, вместе с тем они могут выступать в качестве новообразованных сорбирующих, а также противофильтрационных барьеров, а продукты коррозии могут образовывать новые минеральные фазы при взаимодействии с минеральными фазами барьеров (примером подобного процесса может быть хлоритизация бентонита).

Иллитизация монтмориллонита — процесс, широко распространенный в природе при гидротермальном преобразовании осадочных пород.

Упрощенная реакция может быть записана:



Для описания процесса иллитизации критически важными являются концентрации калия и уровень температуры. В настоящий момент разработаны модели, комплексно учитывающие эти факторы. Формализовать эти модели можно следующем уравнением:

$$\frac{dS}{dt} = -kC[K^+]S^n,$$

здесь:

$\frac{dS}{dt}$ — скорость иллитизации;

k — константа скорости;

$C[K^+]$ — концентрация калия (существуют зависимости, учитывающие и концентрации других ионов, они будут рассмотрены ниже);

S^n — текущее содержание смектита (монтмориллонита) в бентоните;

n — показатель степени.

Влияние температуры описывается кинетическим уравнением Аррениуса. Базовые методы описания или прогноза иллитизации бентонита были предложены на основании полевых наблюдений [1, 2, 3, 4], а также экспериментальных данных [5, 6]. Более сложные реактивно-транспортные модели процессов растворения и осаждения глинистых минералов включали иллит в качестве возможного продукта изменения бентонита [7-9]. Однако, иллитизация может происходить в результате процесса трансформации твердых фаз, а не только реакций растворения-осаждения, которые обычно учитываются в реактивных моделях транспорта.

Достоверность оценки степени влияния температурных режимов на процесс иллитизации базируется на практических результатах лабораторных исследований. Наиболее близки к ним для использования при прогнозировании иллитизации бентонитового буфера/засыпки модели Pytte, Cuadros и Huang.

В достаточно большом диапазоне температур (70-370°C) для определения скорости иллитизации можно воспользоваться моделью Pytte [2]:

$$\frac{dS}{dt} = -k \frac{[K^+]}{[Na^+]} S^5,$$

$$k = A \exp\left(\frac{-E_A}{RT}\right),$$

где:

S — доля монтмориллонита в бентоните;

t — время (единица);

A — константа (80800 (с×моль)⁻¹);

T — абсолютная температура;

E_A — энергия активации (117,15 кДж/моль);

R — универсальная газовая постоянная (8,314 Дж/моль×К);

$[K^+]$ — концентрация ионов калия, моль/л;

$[Na^+]$ — концентрация ионов натрия, моль/л.

Уравнение решается аналитически в границах $S: [S_0, S]$ и $t: [0, t]$:

$$S = \frac{S_0}{\sqrt[4]{1 + 4S_0^4 k \frac{[K^+]}{[Na^+]} t}},$$

где S_0 — начальная доля монтмориллонита в бентоните ($S_0 = 1$).

Численными методами решение находится на каждом шаге интегрирования относительно предыдущего значения:

$$S_t = S_{t-1} - k \frac{[K^+]}{[Na^+]} S_{t-1}^5 \cdot \Delta t,$$

где Δt — используемый расчетный шаг по времени (timestep).

При неизвестной концентрации Na^+ возможно определение содержания бентонита по модели Cuadros [6], применяемой в диапазоне температур 60-200°C:

$$\frac{dS}{dt} = -k[K^+]^{0,25} S^5, \quad (1)$$

В ряде случаев при повышенной температуре можно воспользоваться упрощенной моделью Huang [5], применяемой в диапазоне температур 250-325°C:

$$\frac{dS}{dt} = -k[K^+]S^2,$$

Параметры Аррениуса и вид моделей Pytte, Huang и Cuadros (для двух уравнений, отличающихся показателем степени и коэффициентами в уравнении Аррениуса) приведены в таблице 1.

Таблица 1 – Параметры моделей Pytte, Huang и Cuadros для описания иллитизации

Модель	Исследования	Диапазон температур	Параметры Аррениуса		Уравнение модели
			A, (с×моль) ⁻¹	E _A , кДж/моль	
Pytte	Полевое	70-370°C	5,2·10 ⁷	138	$\frac{dS}{dt} = -k \frac{[K^+]}{[Na^+]} S^5$
Huang	Лабораторное	250-325°C	8,1·10 ⁴	117	$\frac{dS}{dt} = -k[K^+]S^2$
Cuadros 1	Лабораторное	60-200°C	8,5·10 ⁻⁷	30	$\frac{dS}{dt} = -k[K^+]^{0,25} S$
Cuadros 5			6,4·10 ⁻⁷	31,4	$\frac{dS}{dt} = -k[K^+]^{0,25} S^5$

Существенное различие в результатах расчетов степени иллитизации монтмориллонита наблюдается при использовании разных моделей для реальной температуры 100°C, соответствующей высокому тепловыделению, в условиях глубинного захоронения РАО при концентрациях ионов К — 0,005 моль/л и Na — 0,008 моль/л (см. рис. 2). На этом рисунке видно, что результаты, основанные на модели Huang, слабо коррелируют с результатами моделей Cuadros и Pytte, что подчеркивает ее неприменимость в данном диапазоне температур.

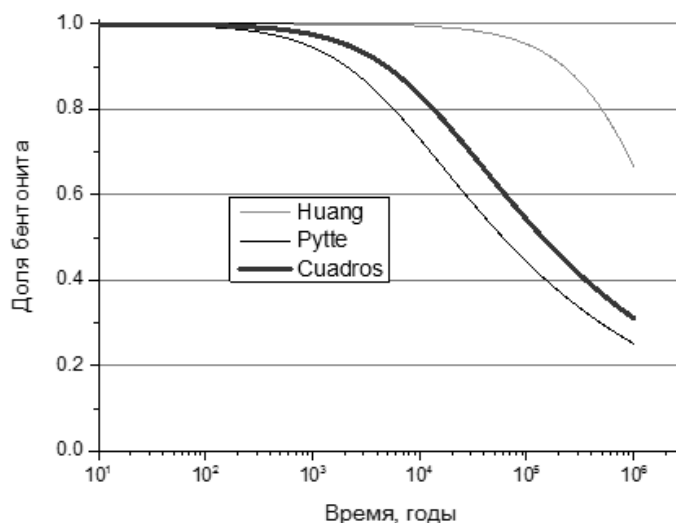
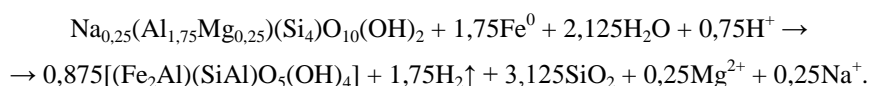


Рисунок 2 — Модельные результаты зависимости доли монтмориллонита в бентоните от времени при иллитизации при температуре 100 °C

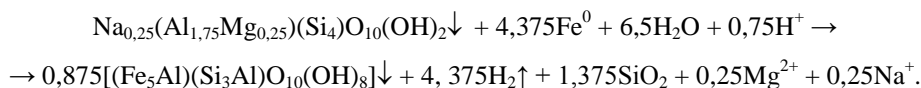
Более точная оценка изменения доли монтмориллонита и влияния на иллитизацию содержания основных компонентов бентонита (Na, K, Mn и пр.) может рассматриваться только с учетом всех химических реакций, скорость которых также зависит от температуры.

Хлоритизация бентонита — процесс, приводящий к ухудшению сорбционных свойств бентонита, во многом аналогичен процессу иллитизации. При взаимодействии продуктов коррозии стальных ИББ с бентонитом не следует исключать образования железосодержащих глинистых минералов – хлоритов.

Монтмориллонит трансформируется в бертьерин (железистый минерал из подгруппы серпентина) согласно упрощенной реакции:



Также может протекать реакция образования железистого хлорита (дафнита):



Таким образом, на трансформацию 1 моль монтмориллонита до бертьерина и хлорита, соответственно, требуется от 1,7 до 4,4 моль металлического железа.

Расчет параметров набухания. В случае хлоритизации происходит изменение объема набухающей фракции бентонита. Результирующая набухаемость может быть рассчитана при использовании соотношения, связывающего эффективную плотность глин и давление набухания. Эффективная плотность глины может быть определена как [13]:

$$\rho_b = \rho_d \frac{1 - R_s}{1 - \frac{\rho_d R_s}{\rho_s}},$$

где: ρ_d — сухая плотность бентонита,

R_s — доля соответствующего материала (в данном случае монтмориллонита),

ρ_s — его плотность.

В [14] показано, что при 30% потере содержания набухающей глины, эффективная плотность уменьшается с 1,56 до 1,32 кг/м³. Уменьшение давления набухания при полной конверсии железа в глинистые минералы может быть оценено, например, с использованием зависимости, связывающей давление набухания с плотностью, приведенной в работе [15]:

$$P_p = 0,0029e^{4,8554\rho},$$

в которой P_p — давление набухания (МПа), ρ — плотность сухого бентонитового материала (кг/м³).

Так, при плотности неизмененного бентонита в 1,56 г/см³ давление набухания составляло величину 7 МПа, при падении его плотности до 1,32 МПа, давление набухания уменьшилось до 2 МПа.

Модель ионного обмена на бентоните является наиболее простой моделью геохимического моделирования сорбции бентонитом. В процессе геохимического моделирования было оценено влияние иллитизации на сорбционные свойства бентонитового барьера безопасности. В модели предполагалось, что бентонит трансформируется в иллит. В качестве модельных допущений принимались:

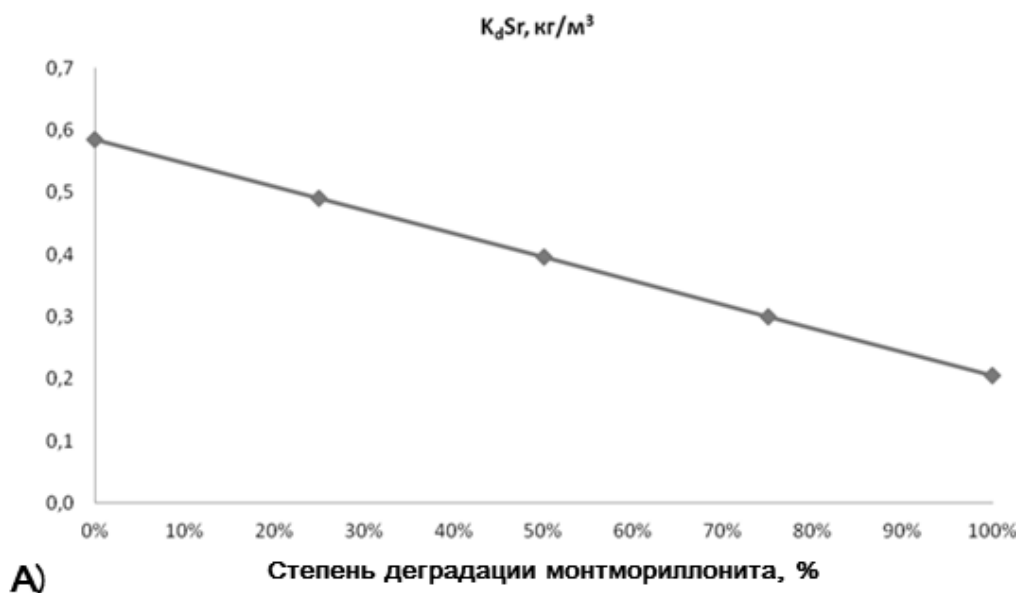
- модель сорбции описывалась стандартной моделью ионного обмена [16];
- емкость катионного обмена бентонита принималась в 100 мг-экв./100 г, иллита – 35 мг-экв./100 г;
- пористость и температура (20°C) постоянны в ходе модельного эксперимента;
- состав воды постоянен (рН = 7,38, концентрации компонентов: Fe(II) — 0,2 мг/л, CO₃ — 73 мг/л, F — 0,67 мг/л, SO₄²⁻ — 20,3 г/л, Cl — 12,7 мг/л, Na — 10 мг/л, K — 2,5 мг/л, Ca — 23 мг/л, Mg — 10,5 мг/л);
- начальное значение K_d Sr для этого раствора принималось равным 0,585 м³/кг;
- кинетика процесса не учитывалась.

Результаты показали, что с понижением доли бентонита (с ростом доли иллита) K_d ⁹⁰Sr падает. Процесс падения K_d по мере иллитизации справедлив для всех радионуклидов, кроме Cs.

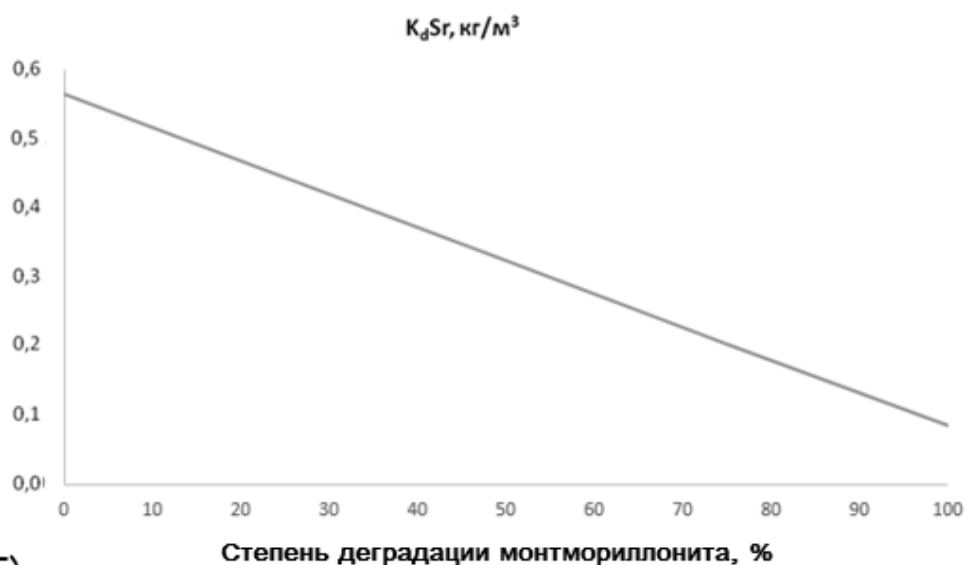
Моделирование проводилось в расчетном коде PhreeqC 2.18 (база термодинамических данных – llnl.dat). Результаты расчетов представлены на рис. 3. По оси X отложена степень деградации (доля) монтмориллонита в бентоните.

С понижением доли хорошо сорбирующего компонента бентонита - монтмориллонита (соответственно, с ростом доли иллита) K_d ⁹⁰Sr падает.

Эта модель может быть применена и для оценки изменения ЕКО в процессе хлоритизации бентонита, с ухудшением свойств аналогично процессу иллитизации. Параметризация модели та же, что и в вышеприведенной модели иллитизации, емкость катионного обмена хлорита принята 15 мг-экв./100 г. Результаты расчетов представлены на рис. 3.



А)



Б)

Рисунок 3 — зависимость $K_d^{90}Sr$ в процессе трансформации бентонита.

А) При иллитизации бентонита. Б) При хлоритизации бентонита

Разработанная модель может быть адаптирована с учетом механизма комплексообразования на поверхности и для оценки сорбции других радионуклидов.

Полученная в результате оценки эволюции барьеров динамика изменения параметров распространения радионуклидов используется при расчете их миграции методом камерного или 3D моделирования.

Расчет нарушения целостности металлических ИББ за счет развития коррозии базируется на оценках:

- скоростей коррозии;
- параметров механического разрушения.

Согласно литературным данным, интегральная скорость устоявшейся (постоянной) коррозии углеродистых сталей при контакте с бентонитом соответствует величине менее 1 мкм/год (см. рис. 4, на котором отражена скорость анаэробной коррозии углеродистой стали и чугуна в грунтовой воде Åsprö, содержащей хлорид-ион в концентрации менее 350 мг/л [17, 18]), увеличиваясь до 3 мкм/год в морской воде. Даже при высоких концентрациях хлорид-иона и при нагреве до 80°C скорость устоявшейся коррозии не превышала величину в 8 мкм/год [19]. Лишь в работе [20] было определено, что в контакте с глинами при температуре 170°C за 58 месяцев эксперимента скорость коррозии составила 8,6 мкм/год.

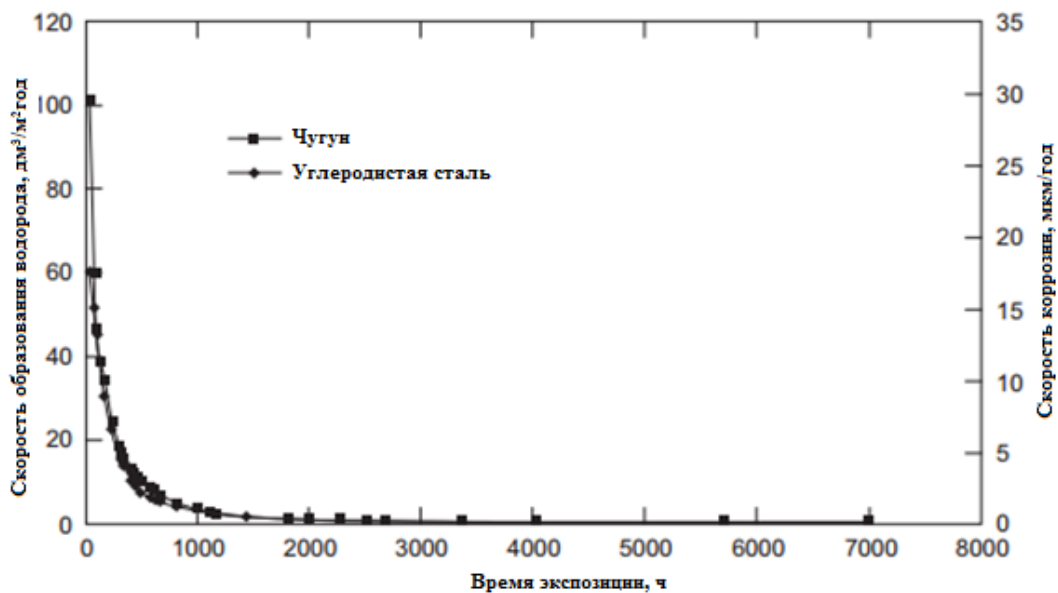


Рисунок 4 — Скорости коррозии углеродистой стали и чугуна в грунтовой воде Åsprö [17]

Скорость коррозии падает со временем (как обычно указывается в литературе, в результате блокирования поверхности металла образующимися продуктами коррозии), что проиллюстрировано на рис. 2. При этом следует учитывать, что в случае взаимодействия продуктов коррозии с материалом бентонитового барьера может сложиться ситуация, когда продукты коррозии не смогут блокировать поверхность металла, а скорость коррозии может оказаться выше, нежели в случае с блокированием поверхности. По этой причине при оценке скорости коррозии полезно учитывать данные работы [21], в которой рассматривались вопросы, связанные с прогнозированием скорости коррозии трубопроводов тепловых сетей. Так, зависимость скорости внутренней коррозии от температуры и значения pH воды теплосетей приведена на рис. 5.

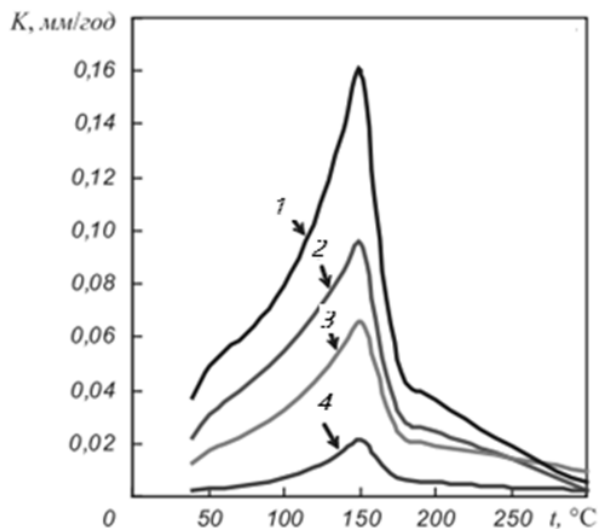


Рисунок 5 — Зависимость скорости внутренней коррозии K , от температуры и значения pH воды теплосетей; 1 – pH 8,3, 2 – pH 8,5, 3 – pH 8,7, 4 – pH 9,2. [21]

Модель сорбции радионуклидов бентонитом с учетом затруднения сорбции анионов вследствие уменьшения размера пор широко применяется для оценки сорбции ряда радионуклидов в бентонитовом барьере [22].

Модель основана на том факте, что при набухании насыщенного водой бентонита происходит сжатие пор, наступает т.н. «эффект анионного» исключения. При заполнении молекулами воды межслоевых промежутков в результате набухания бентонитовых пакетов возникает электростатическое взаимодействие между двойными электронными слоями внешней поверхности пакетов, образующих индивидуальные чешуйки бентонита, что может снизить диффузию сквозь поры бентонита. Доступная для сорбции и взаимодействия с ионами пористость дифференцируется – в англоязычной литературе доступная пористость называется «Diffusion-available porosity». Считается, что этот эффект может начать происходить при плотности сухого бентонита 1200-1500 кг/м³ [22-25].

Процесс «анионного сжатия» (эффект Доннана) приводит к изменению эффективного коэффициента диффузии индивидуальных радионуклидов (и других растворенных веществ), а также к изменению доступной к сорбции пористости для анионов.

Согласно [26], при высоких ионных силах ($I \geq 1 \text{ M NaCl}$) доступная хлорид-иону пористость приближается к свободной пористости, т.е. пористости между частицами. Эта общая пористость является разницей между общей и межслойной пористости бентонита. Межслойная пористость зависит от степени уплотнения бентонита. При насыпной плотности бентонита до 1200 кг/м^3 поровое пространство состоит из трех водных слоёв. При насыпной плотности бентонита от 1200 до 1600 кг/м^3 поровое пространство уменьшается с трех до двух слоев воды. При насыпной плотности бентонита свыше 1600 кг/м^3 поровое пространство сужается до одного слоя воды. Это подтверждается данными рентгеновского исследования работы [27], согласно которым с повышением степени уплотнения бентонита уменьшается расстояние между слоями натриевого бентонита.

Считается, что для катионов доступна для взаимодействия с бентонитом вся пористость, в то время как для анионов доступна лишь часть пористости набухшего бентонита – до 0,2 от эффективного порового пространства.

Также от плотности насыпной бентонита зависят и коэффициенты диффузии. В работе [22] предложена связь между коэффициентом эффективной самодиффузии воды в бентоните МХ-80 в зависимости от его сухой плотности, которая выражена в виде полинома:

$$De = -1,1844\rho^3 + 8,130\rho^2 - 1,9473\rho + 1,6167 \cdot 10^{-10},$$

или степенной зависимости:

$$De = 5,30087 \cdot 10^{-10} \exp(-2,561 \cdot 10^{-3} \rho),$$

где: De — коэффициент эффективной диффузии; ρ — эффективная (насыщенная) плотность бентонита, кг/м^3 .

Разложение бетона в процессе его жизненного цикла. В бетоне происходят разрушающие процессы: деформации, ухудшение механических свойств, дегидратация цементного камня, газовыделение, что снижает его барьерную функцию.

Традиционно применяются два подхода для описания деградации:

- аналитический, в котором применяются различные аналитические зависимости;
- численный, при использовании расчетных кодов, который использует подходы геохимического моделирования с комплексным учетом преобразований.

Как правило, деградацию бетона можно рассмотреть с точки зрения стадий его разложения.

В работе [11] для модели с тремя стадиями разложения бетона рекомендовались постоянные значения K_d для каждой стадии. Стадии описывались как:

- 1 стадия, наступающая сразу после твердения цемента, поровая вода бетона имеет высокое значение рН (12,5), высокую соленость, высокие концентрации K^+ и Na^+ (длительность этой стадии от 100 до 10000 лет, [11]);
- 2 стадия выхода Na^+ и K^+ , минеральный состав воды задается в основном растворением портландита, рН поровой воды 11-12,5, продолжительность стадии от 100-10000 до 1000-100000 лет;
- 3 стадия – цемент разложен до состояния песка (пористость и коэффициент фильтрации приравнены свойствам песка).

В работе [12] проводилось численное моделирование разложения бетона водой, причем выделялись четыре стадии:

- 1 стадия – в выходящей из бетона воде значения рН $> 12,5$ вследствие выщелачивания в водную фазу ионов натрия и калия, в модели этих авторов стадия завершалась при фильтрации сквозь 1 м^3 бетона ($\sim 2,2 \text{ кг}$) $0,35 \text{ м}^3$ воды;
- 2 стадия – в выщелачиваемой из бетона воде значения рН $\sim 12,5$, основной контролирующей поведением системы процесс – растворение портландита (стадия завершается при фильтрации сквозь 1 м^3 бетона $\sim 70 \text{ м}^3$ воды);
- 3 стадия – в выщелачиваемой из бетона воде значения рН находится в пределах 10,5–12,5 и определяется растворением С-S-H фаз бетона в фильтрующейся воде, стадия завершается при прохождении сквозь 1 м^3 бетона $\sim 1800 \text{ м}^3$ воды (состав — местная подземная воды), однако при фильтрации дождевой воды стадия завершалась по прохождении 250 м^3 воды сквозь 1 м^3 бетона;
- 4 стадия – в выщелачиваемой из бетона воде, значения рН в которой контролируется растворением кальцита, рН 9,5-10 (стадия завершается при фильтрации сквозь 1 м^3 бетона 4400 м^3 воды).

Таким образом, для моделирования изменения условий бетонных ИББ применяются подходы:

- с постоянными значениями K_d ;
- с изменяющимися значениями K_d на основе геохимического моделирования;
- с табличными значениями K_d на основе табличного формализма для стадийно меняющихся состояний ИББ.

4 Математические модели решения уравнений переноса камерным методом

Камерное моделирование предполагает приближенное представление реальных физических систем в виде набора камер, которые содержат вещества (компоненты). Цель моделирования – описать изменения концентраций компонент во времени. При этом процессы миграции веществ в ходе эволюции системы описываются, как обмен компонент между камерами.

Если моделируемая система не является замкнутой и в нее, к примеру, поступают вещества извне по некоторому временному закону, то такая ситуация также может быть учтена в камерном приближении путем задания внешних источников. В случае наличия в системе радиоактивных компонент в камерном моделировании учитывается изменение их концентраций, связанное с радиоактивными превращениями.

Математически задача камерного моделирования формулируется в виде системы линейных дифференциальных уравнений. В общем виде данная система выглядит таким образом:

$$\frac{dI_i^m}{dt} = - \left(Lr^m + \sum_j L_{i,j} \right) I_i^m + Lr^{m+1} L_i^{m+1} + \sum_j L_{j,i} I_j^m,$$

где $L_{i,j}$ — скорость обмена между камерами, Lr^{m+1} — скорость распада родительского по отношению к m -му веществу и Lr^m — скорость распада m -го вещества. Здесь индексы i и j принимают значения каждой компоненты в каждой камере. Данная система уравнений может быть представлена в матричном виде:

$$\frac{d\vec{I}}{dt} = \hat{A}\vec{I}, \quad (1)$$

где вектор \vec{I} составлен из всех рассматриваемых в модели веществ во всех камерах.

В некоторых ситуациях система (1) может иметь аналитическое решение, однако в самом общем случае решить ее можно только численно.

Для решения этой системы уравнений в ходе работы были реализованы и опробованы несколько различных схем — явная и неявная схемы Эйлера, схема Кранка-Николсона, неявные двух- и трехшаговые схемы, схема Мейерса.

В явной схеме Эйлера значения на шаге $t + 1$ получаются из соотношения:

$$\vec{I}(t+1) = \vec{I}(t) + \hat{A}\vec{I}(t)dt,$$

в неявной схеме Эйлера значения на следующем шаге получаются из соотношения:

$$\vec{I}(t+1) = \left(1 - \hat{A}dt\right)^{-1} \vec{I}(t),$$

в схеме Кранка-Николсона:

$$\vec{I}(t+1) = \left(1 + \frac{1}{2}\hat{A}dt\right) \left(1 - \frac{1}{2}\hat{A}dt\right)^{-1} \vec{I}(t),$$

Двухшаговая схема для получения значений моделируемой величины на $t + 1$ -ом шаге использует ее значения на шаге $t - 1$:

$$\vec{I}(t+1) = \left(1 - \frac{5}{12}\hat{A}dt\right)^{-1} \left(\left(1 + \frac{2}{3}\hat{A}dt\right) \vec{I}(t) - \frac{1}{12}\hat{A}dt \vec{I}(t-1) \right).$$

Трехшаговая схема использует в дополнение значение моделируемой величины на шаге $t - 2$:

$$\vec{I}(t+1) = \left(1 - \frac{9}{24}\hat{A}dt\right)^{-1} \left(\left(1 + \frac{19}{24}\hat{A}dt\right) \vec{I}(t) - \frac{5}{24}\hat{A}dt \vec{I}(t-1) + \frac{1}{24}\hat{A}dt \vec{I}(t-2) \right),$$

Явная схема Эйлера наименее затратная в вычислительном смысле. Однако может оказаться неустойчивой в случае, если система уравнений относится к так называемым «жестким» системам. Неявная схема Эйлера дает устойчивое решение, но требует вычисления обратной матрицы, что утяжеляет расчет. Схема Кранка — Николсона также является устойчивой, при этом имеет более высокий (второй) порядок точности. Двух- и трехшаговые схемы имеют, соответственно, третий и четвертый порядок точности.

Точность численного решения также зависит от величины шага по времени dt . Уменьшая шаг можно добиться любой наперед заданной точности, однако это приводит к увеличению числа операций и, как следствие, времени счета. В ходе численных экспериментов при достижении точности, которую показывал расчетный код Amber [30], все вышеперечисленные численные схемы заметно уступали ей в скорости счета. Существенно продвинуться в решении этой проблеме удалось, перейдя к схеме с переменным шагом по времени. Схемы этого класса производят оценку точности, полученного значения на текущем шаге. Если точность оказывается ниже пороговой, то производится пересчет с уменьшенным шагом, если было превышение точности, то шаг увеличивается чтобы повысить скорость расчетов. В качестве такой схемы была взята схема Мерсона [31].

Численная схема Рунге-Кутты-Мерсона или схема Мерсона отличается от схемы Рунге-Кутты возможностью оценивать погрешность на каждом шаге и в зависимости от результата принимать решение об изменении шага. Ниже приведем один из вариантов формульного описания метода Мерсона, использованный при ее реализации в программе.

Концентрации на $t + 1$ -м шаге выражаются следующим образом:

$$\bar{I}(t+1) = \bar{I}(t) + \frac{1}{2}(\bar{K}_4 + \bar{K}_5) + O(dt^5),$$

$$\bar{K}_1 = \hat{A}(t)\bar{I}(t)h_3,$$

где: $h_3 = \frac{dt}{3}$,

$$\bar{K}_2 = \hat{A}(t)(\bar{I}(t) + \bar{K}_1)h_3,$$

$$\bar{K}_3 = \hat{A}(t)\left(\bar{I}(t) + \frac{\bar{K}_1 + \bar{K}_2}{2}\right)h_3,$$

$$\bar{K}_4 = \hat{A}(t)\left(\bar{I}(t) + \frac{3}{8}\bar{K}_1 + \frac{9}{8}\bar{K}_3\right)h_3,$$

$$\bar{K}_5 = \hat{A}(t)\left(\bar{I}(t) + \frac{3}{2}\bar{K}_1 - \frac{9}{2}\bar{K}_3 + 6\bar{K}_4\right)h_3.$$

Далее на каждом шаге оценивается погрешность:

$$\bar{R} = \frac{2\bar{K}_4 - 3\bar{K}_3 - \bar{K}_5}{10}$$

Допустим, что задано некоторое максимальное значение погрешности ξ . Временной шаг dt в схеме Мерсона подбирается следующим образом:

если $R_i > \xi$ хотя бы для одного i , то шаг уменьшается вдвое,

если $R_i < \xi/32$, то шаг увеличивается в два раза.

В текущей версии разрабатываемого комплекса реализованы все описанные выше численные схемы. Схема Рунге-Кутты-Мерсона используется по умолчанию.

Способ описания камерных моделей

Создавая камерную модель, например, с помощью конструктора камерных моделей, пользователь получает ее графическое описание. Графическое описание должно быть переведено в некоторое формальное описание, чтобы затем передать его в расчетный модуль.

Программа расчета получает на вход описание камерной модели в виде CSE файла. Это файл текстового формата, в котором модель описывается на специальном скриптовом языке. Разрабатываемый модуль ориентируется на формат CSE файла, используемый код Amber. Это было сделано для того, чтобы данные расчетные модули были взаимозаменяемы для вызывающих их программ.

Коэффициенты матрицы $\hat{A}(t)$ в уравнении (2) выражаются через скорости распада компонент и скорости обмена между камерами $L_{i,j}$. Если первые являются табличными константами, то последние могут меняться во времени. В случае, когда скорости обмена между камерами зависят от времени, в ходе численного моделирования матрица $\hat{A}(t)$ пересчитывается на каждом шаге t .

Скорости обмена $L_{i,j}$ задаются при описании физической задачи в CSE файле. Их можно задавать как константами, так и функциями от времени. При этом могут быть использованы любые аналитические функции или их суперпозиции. В разрабатываемом коде этот функционал был внедрен с помощью библиотеки CodeDom [32], реализующей подход, известный, как метопрограммирование.

Кроме того временные зависимости могут задаваться, например, ступенчатой функцией. В CSE файле соответствующая строчка выглядит следующим образом:

```
"_LOOKUP(t,5 [Bq/y],10,0 [Bq/y]) "
```

В этом примере задается равномерная скорость обмена, соответствующая поступлению 5 Бк/год в первые 9 лет. Далее 0 – нет поступления.

Другой вариант неаналитического описания зависимостей – кусочно-линейная функция. Формат ее задания следующий:

```
"_LINEAR_LOOKUP(t,0,50 [Bq/y],10,40 [Bq/y],20,5 [Bq/y],50,1 [Bq/y]) "
```

В этом примере первые 9 лет скорость вещества составляет 40 Бк/год, далее с 10 по 19 годы — 5 Бк/год, с 20 по 49 — 1 Бк/год, с 50 лет — 0.

Также в CSE файле может быть использована кусочно-непрерывная зависимость, в которой на отдельных временных участках скорость имеет аналитическое задание, например:

```
"_LOOKUP(t,0 [1/y],100,(log10(100+50-140)*10^1/10-(sqrt(4)-1.001))*1 [1/y]) "
```

Все вышеописанные варианты задания временных зависимостей могут быть расшифрованы и учтены в разработанном расчетном модуле.

Уравнения (1) описывают замкнутую систему. Однако, как было упомянуто выше, система, задаваемая набором камер, может быть незамкнутой, в нее могут поступать вещества извне. В CSE файле внешние поступления описываются посредством внешних источников. При этом указывается, какие вещества и в какие камеры поступают.

В расчете поступления из источников учитываются путем добавления после каждого шага dt к полученным значениям концентраций внешних веществ:

$$\bar{I}(t) = \bar{I}(t) + \bar{V}(t)dt ,$$

где $\bar{V}(t)$ — скорости поступления веществ из источников.

Скорость поступления, также как и скорость обмена, может зависеть от времени. Формат задания такой зависимости в CSE файле полностью аналогичен формату задания скоростей обмена.

Также для задания описания модели необходимо указать начальные значения концентраций компонент в камерах. Они записываются в соответствующем блоке CSE файла, выделенном специальными тегами.

5 Результаты апробации реализуемых подходов на простых моделях

Для верификации разрабатываемого расчетного средства Destruct были выбраны два теста из верификационного отчета по расчетному коду Amber [30]. Данные тесты имеют аналитическое решение и позволяют сравнить проведенные расчеты с результатами расчета Amber. Помимо этого приводятся сравнение с результатами расчетов программой SPADE [33].

Тест 1. (SN2 верификационного отчета Quintessa)

Рассматривается система, состоящая из трех камер, между которыми происходит перенос условных радионуклидов. Схема задачи приведена на рис. 6.

Распад нуклида Nuc1 происходит со скоростью 10^{-4} год⁻¹, в результате чего образуется нуклид Nuc2. Нуклид Nuc2, в свою очередь, распадается со скоростью 10^{-2} год⁻¹.

В систему поступает нуклид Nuc1 через камеру А. Принимается, что скорость поступления нуклида Nuc1 равна нулю, за исключением двух временных интервалов: 0-10 лет (скорость поступления 1 моль/год) и 30-50 лет (скорость поступления 2 моль/год).

Скорости обмена между камерами приведены в таблице 2. По истечению срока 40 лет все скорости уменьшаются в 100 раз.

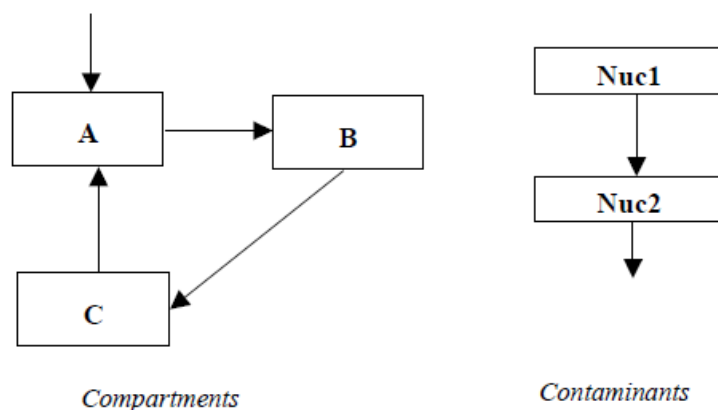


Рисунок 6 — Модель задачи 1

Таблица 2 — Начальные скорости обмена между камерами

Обмен		Скорости (год ⁻¹)	
Начальная	Конечная	Nuc1	Nuc2
A	B	0,01	0,001
B	C	0,001	0,1
C	A	0,1	0,1

Расчеты выполнялись для интервала времени 10-100 лет. Соответствующие расчетные данные приведены в таблице 3. Результаты расчетов с помощью программ решения систем дифференциальных уравнений SPADE [33] и Amber были взяты из работы [30]. Результаты аналогичного расчета, выполненного тестируемым средством, демонстрируют удовлетворительную точность совпадения результатов.

Таблица 3 — Сравнение результатов моделирования для теста 1

Камера	Нуклид	Время, лет	SPADE	Amber	Destruct
A	Nuc1	10	9,51191	9,51191	9,51239
A	Nuc2	10	0,00466821	0,00466821	0,00466369
B	Nuc1	10	0,481807	0,481807	0,481334
B	Nuc2	10	0,000137848	0,000137849	0,000137660
C	Nuc1	10	0,00128303	0,00128303	0,0012812
C	Nuc2	10	2,97304E-5	2,97310E-5	2,96774E-5
A	Nuc1	100	45,5501	45,5501	45,5488
A	Nuc2	100	0,220230	0,220229	0,220212
B	Nuc1	100	4,09113	4,09114	4,09236
B	Nuc2	100	0,0188336	0,0188335	0,0188375
C	Nuc1	100	0,0249555	0,0249547	0,0249627
C	Nuc2	100	0,00142203	0,00142206	0,00142239

Тест 2. (SN7 верификационного отчета Quintessa)

В этой задаче рассматривается «замкнутая» система камер с одинаковыми скоростями обмена и не распадающимся веществом. Всего в системе используется 12 камер. Ее схема приведена на рис. 7

Скорость переноса вещества постоянна во времени и для всех камер составляет 0,1 год⁻¹. В камерах A1, A2, A4, A6, A7 и A10 первоначальное содержание вещества равно 1 моль. В остальных камерах количество вещества в начальный момент времени равно нулю.

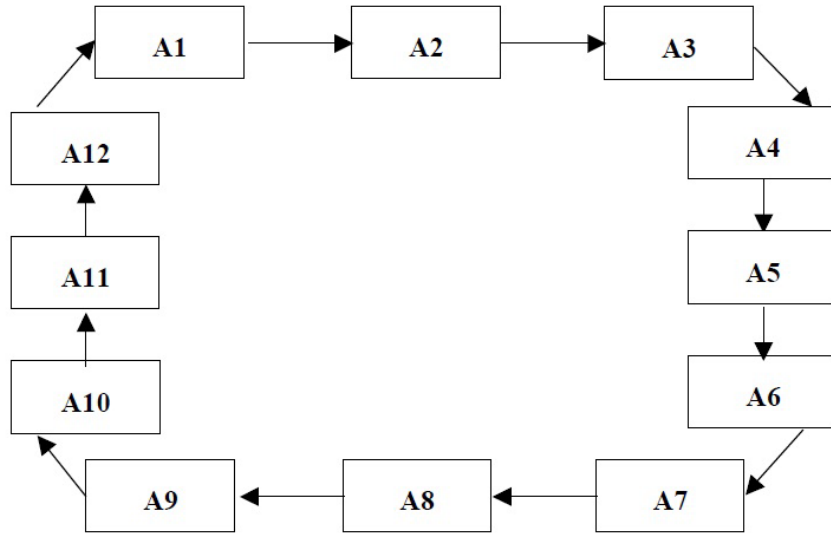


Рисунок 7 — Модель задачи 2

Аналитический результат для обобщенной системы с N камерами в петле и нормой переноса μ описывается следующим образом.

Уравнение для количества вещества в n -ой камере запишется как:

$$\frac{dA_n}{dt} = \mu A_n - \mu A_{n-1},$$

где камеры A_0 и A_N эквивалентны. Рассмотрим следующее собственное решение:

$$A_n(t) = E_n e^{-\gamma t}.$$

Подставляя его в уравнение, получим:

$$E_n = \frac{\mu}{\mu - \gamma} E_{n-1}$$

При этом замкнутость системы дает:

$$\left(\frac{\mu}{\mu - \gamma} \right)^N = 1.$$

Вследствие чего собственные значения задаются выражением:

$$\gamma^{(k)} = \mu[1 - \exp(-2\pi i k/N)],$$

с соответствующими собственными решениями:

$$E_n^{(k)} = \exp(2\pi i k n/N).$$

В результате приходим к решению:

$$A_n(t) = \sum_{k=1}^N \alpha^{(k)} E_n^{(k)} \exp(-\gamma^{(k)} t),$$

где:

$$\alpha^{(k)} = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N A_n(0) E_n^{(k)}.$$

Из данного выражения получены значения на моменты времени 20, 40, 60, 80 и 100 лет. Соответствующие результаты приведены в следующем разделе.

Из выше приведенных формул получены значения количества активности в камерах на моменты времени 20, 40, 60, 80 и 100 лет. Соответствующие результаты приведены для аналитики (Таблица 4), AMBER (таблица 5) и программного средства Destruct (таблица 6).

Таблица 4 — Результаты аналитического решения задачи тест 2.

Камера	Количество вещества (моль)				
	t=20 лет	t=40 лет	t=60 лет	t=80 лет	t=100 лет
A1	0,331448	0,393231	0,493590	0,545518	0,541057
A2	0,500565	0,382391	0,450256	0,521544	0,542698
A3	0,578488	0,421262	0,422288	0,489768	0,532723
A4	0,598713	0,483640	0,421521	0,460279	0,513205
A5	0,544824	0,530970	0,445906	0,443184	0,489534
A6	0,533186	0,548898	0,481307	0,443560	0,468849
A7	0,634764	0,561520	0,514184	0,459365	0,457322
A8	0,647070	0,584441	0,540759	0,484075	0,457839
A9	0,491510	0,589493	0,561193	0,510966	0,469434
A10	0,419087	0,556907	0,570820	0,534847	0,488415
A11	0,400650	0,503189	0,562832	0,551199	0,509930
A12	0,319694	0,444059	0,535343	0,555695	0,528994

Таблица 5— Результаты решения теста 2 с применением Amber

Объем	Количество вещества (моль)				
	t=20 лет	t=40 лет	t=60 лет	t=80 лет	t=100 лет
A1	0,331439	0,393228	0,493591	0,545508	0,541053
A2	0,500576	0,382384	0,450256	0,521533	0,542690
A3	0,578493	0,421278	0,422296	0,489764	0,532711
A4	0,598697	0,483641	0,421539	0,460290	0,513196
A5	0,544834	0,530961	0,445919	0,443209	0,489540
A6	0,533181	0,548888	0,481297	0,443584	0,468849
A7	0,634769	0,561518	0,514158	0,459366	0,457353
A8	0,647075	0,584458	0,540749	0,484052	0,457857
A9	0,491499	0,589501	0,561213	0,510944	0,469429
A10	0,419083	0,556886	0,570833	0,534847	0,488397
A11	0,400666	0,503184	0,562819	0,551208	0,509914
A12	0,319687	0,444074	0,535331	0,555695	0,528988

Таблица 6 — Результаты решения теста 2 с применением разрабатываемого модуля Destruct

Объем	Количество вещества (моль)				
	t=20 лет	t=40 лет	t=60 лет	t=80 лет	t=100 лет
A1	0,331448	0,393231	0,493590	0,545518	0,541057
A2	0,500565	0,382391	0,450256	0,521544	0,542698
A3	0,578488	0,421262	0,422288	0,489768	0,532723
A4	0,598713	0,483640	0,421521	0,460279	0,513205
A5	0,544824	0,530970	0,445906	0,443184	0,489534
A6	0,533186	0,548898	0,481307	0,443560	0,468849
A7	0,634764	0,561520	0,514184	0,459365	0,457322
A8	0,647070	0,584441	0,540759	0,484075	0,457839
A9	0,491510	0,589493	0,561193	0,510966	0,469434
A10	0,419087	0,556907	0,570820	0,534847	0,488415
A11	0,400650	0,503189	0,562832	0,551199	0,509930
A12	0,319694	0,444059	0,535343	0,555695	0,528994

Тест 3. (на примере решения реальной задачи анализа безопасности пункта захоронения РАО 1 класса Нижнеканского массива — НКМ)

Сформированная камерная модель включает основные барьеры безопасности, которые будут применяться на объекте.

Схема модели представлена на рис. 6.

Модель состоит из следующего набора камер:

- одна камера источника (Source) длиной 0,281 м,
- одна камера стали (Steel) длиной 0,003 м,
- пять камер с бентонитом (Bentonite), длина каждой – 0,04 м; общая длина бентонита составляет 0,2 м (от 0,284 до 0,484 м),
- одна камера бетона (Concrete) длиной 0,06 м,
- четыре камеры шликера (Slip), длина каждой – 0,03 м; общая длина шликера – 0,12 м (от 0,544 до 0,664 м),
- одна камера зоны разуплотнения (EDZ), соответствующая дальней зоне и условно содержащая песок (параметры камеры не важны, так как от них не зависит скорость выхода радионуклидов из ближней зоны в дальнюю зону).

Между камерами формируются потоки. Выход радионуклидов из камеры источника задается параметрами выщелачивания. Между камерами бентонита, бентонита и бетона, а также между камерами шликера задаются прямая и обратная диффузии. Между последней камерой шликера и дальней зоной задается только прямая диффузия. А выход радионуклидов из стали и бетона задается деградацией стали и бетона соответственно.

Деградация бетона задается ступенчато следующим образом: от 0 до 50 лет – 0 год^{-1} (бетон сохраняет свою сплошность), далее от 50 до 100 лет – $0,1 \text{ год}^{-1}$, затем от 100 до 200 лет – $0,3 \text{ год}^{-1}$. Свыше 200 лет – 1 год^{-1} . Схема модели представлена на рис. 8.

В модели принято, что сталь до 1000 лет сохраняет целостность, а затем, после 1000 лет одновременно теряет свои свойства, и выщелачивание из стали задается равным 1 год^{-1} .

Выщелачивание из стекла начинается через 100 лет от начала захоронения и равно $0,00183 \text{ год}^{-1}$.

Общая активность радионуклидов приведена в таблице 6. Параметры камер приведены в таблице 8. Заданные в модели коэффициенты распределения и диффузии приведены в таблицах 9 и 10 соответственно.

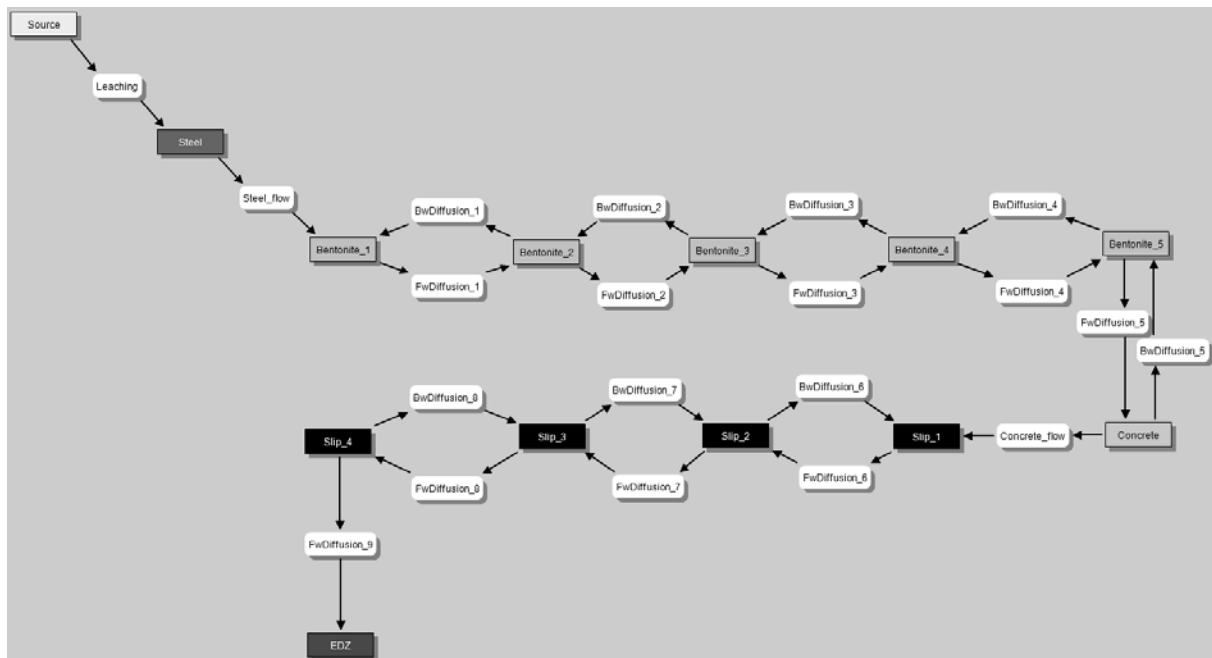


Рисунок 8 — Схема камерной модели захоронения РАО 1 класса

В крайних камерах бентонита и шликера коэффициент распределения задавался равным 0,5 от типичного для этого барьера, ввиду процессов хлоритизации на границе со сталью.

Таблица 7— Заданная активность радионуклидов в модели

Радионуклид	Общая активность, Бк	Удельная активность, Бк/кг	Количество, кг
⁷⁹ Se	1,06E+14	9,30E+06	1,14E+07
¹²⁹ I	1,06E+13	9,30E+05	1,14E+07
¹³⁵ Cs	1,59E+14	1,40E+07	1,14E+07
⁹⁰ Sr	2,27E+19	2,00E+12	1,14E+07

Таблица 8 — Параметры материалов камер

Камера	Длина камеры, м	Пористость, -	Плотность, кг/м ³
Сталь	0,003	0,001	7850
Бентонит	0,2	0,4	1600
Бетон	0,06	0,4	2200
Шликер	0,12	0,6	1800

Таблица 9 — Значения коэффициентов распределения радионуклидов

Камера	K _d ⁷⁹ Se,	K _d ¹³⁵ Cs	K _d ¹²⁹ I	K _d ⁹⁰ Sr
	м ³ /кг	м ³ /кг	м ³ /кг	м ³ /кг
Источник	0	0	0	0
Сталь	0	0	0	0
Бентонит	0,04	0,11	0	0,005
Бетон	0,005	0,005	0,005	0,015
Шликер	0,01	0,0275	0	0,088

Таблица 10 — Коэффициенты диффузии радионуклидов

Нуклид	Коэффициент диффузии, м ² /год			
	Сталь	Бентонит	Бетон	Шликер
¹³⁷ Cs		0,0095	0,0095	0,0095
⁷⁹ Se		0,0003	0,0095	0,0095
¹²⁹ I		0,0003	0,0095	0,0095
⁹⁰ Sr		0,0038	0,0038	0,0038

Сравнение активностей радионуклидов в результате моделирования данной задачи с помощью расчетного комплекса AMBER и модуля Destruct проводилось до пятой значащей цифры после запятой. Разница наблюдается в четвёртой значащей цифре, что говорит об отличном соответствии, а также о пригодности разработанного кода для моделирования реальных задач.

Графики с результатами расчетов представлены на рис. 9 – рис. 13.

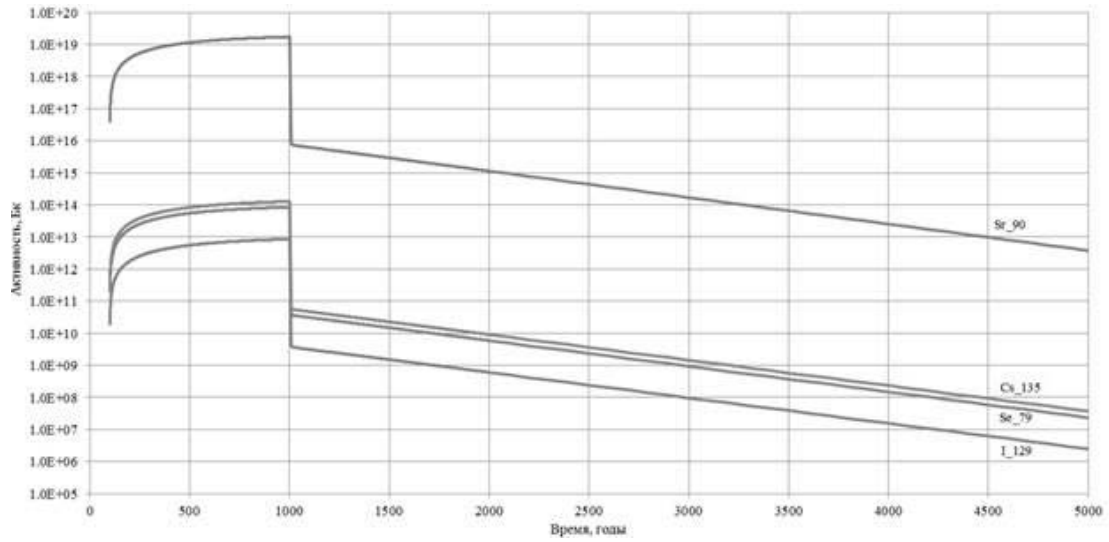


Рисунок 9 — График изменения активности от времени в камере стали модели НКМ

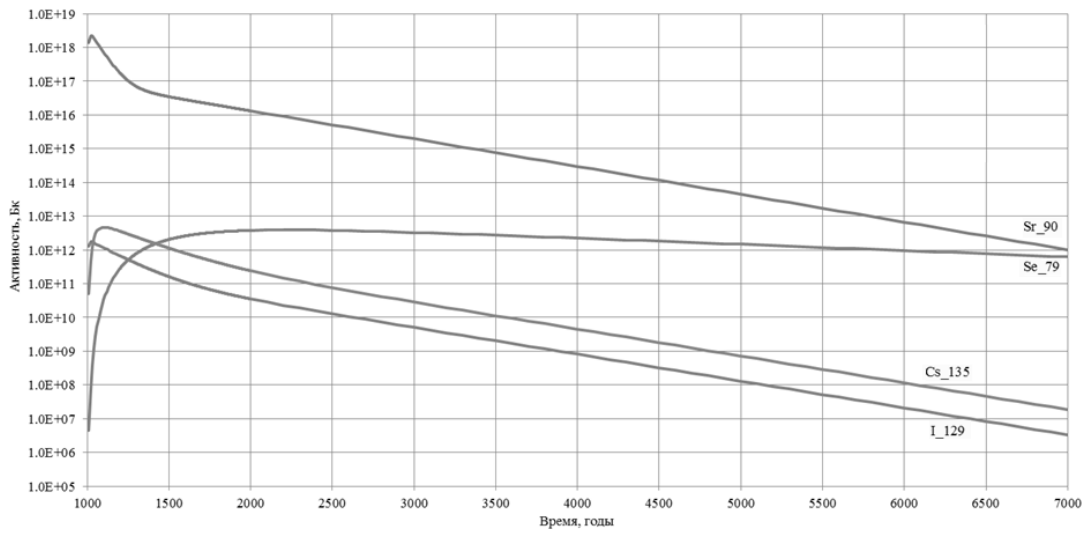


Рисунок 10 — График изменения активности от времени в последней камере бентонита модели НКМ

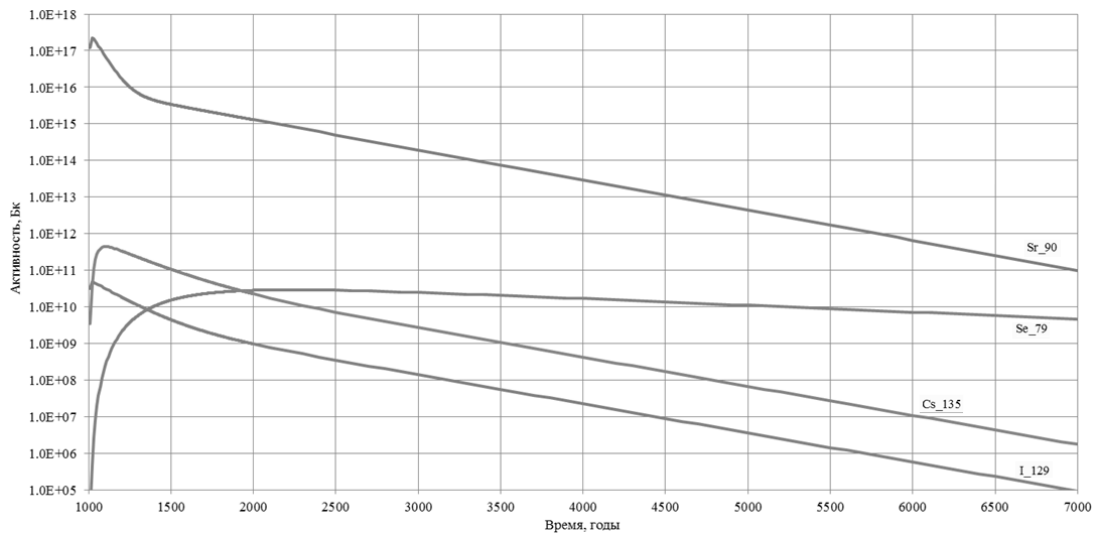


Рисунок 11 — График изменения активности от времени в камере бетона модели НКМ

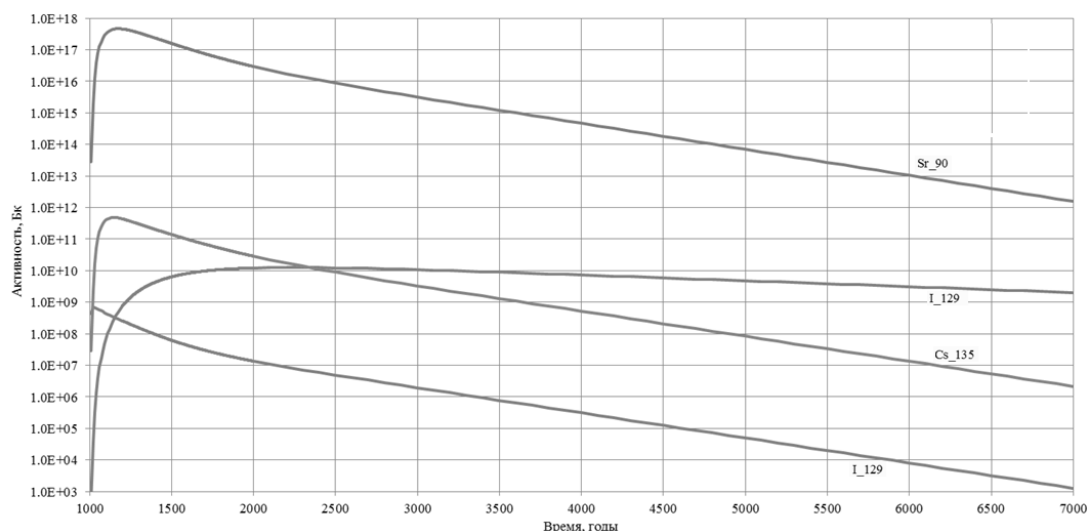


Рисунок 12 — График изменения активности от времени в последней камере шликера модели НКМ

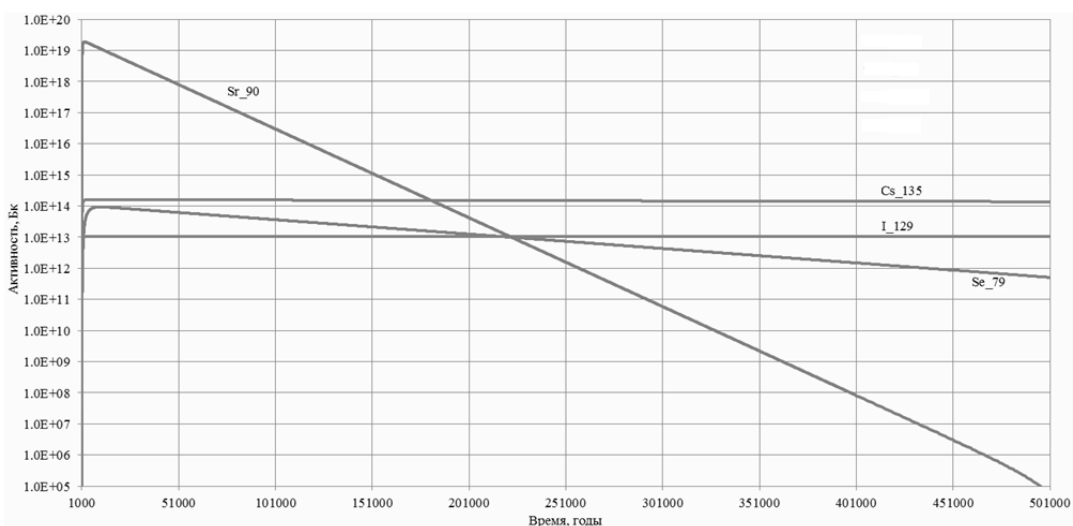


Рисунок 13 — График изменения активности от времени в камере EDZ (выход в дальнюю зону) модели НКМ

Заключение

Разработанный инструмент расчетного моделирования, как элемент расчетно-прогностического комплекса, позволяет корректно оценить распространение радионуклидов в ближней зоне радиационно-опасного объекта, основываясь на динамике изменения параметров инженерных барьеров безопасности в ходе их эволюции, полученной с применением расчетных средств анализа физико-химических процессов комплекса.

Достоверность расчетов распространения веществ подтверждается результатами верификационных тестов. Сравнение результатов расчетов с аналитическими решениями и экспериментальными данными показывают удовлетворительное соответствие.

Разработанный инструмент готов к его тестовому применению в реальных задачах оценки миграции радионуклидов для определения методов его оптимизации, совершенствования и интеграции в расчетно-прогностический комплекс.

В дальнейшем планируется развитие расчетного инструмента, которое позволит эффективнее использовать библиотеки справочных данных (характеристик радиоактивного распада, коэффициентов распределения радионуклидов, сорбции, фильтрации и пр.).

Литература

1. Bethke, C.M. and Altaner, S.P. (1986) Layer-by-layer mechanism of smectite illitization and application to new rate law. *Clays and Clay Minerals* 34, 146–154.
2. Pyette, A. M. and Reynolds, R.C. (1989) The thermal transformation of smectite to illite. In ‘Thermal History of Sedimentary Basins,’ Naeser N.D. and McCulloh T.H.(eds). Springer-Verlag New York, 133–140/
3. Velde, B. and Vasseur, G. (1992) Estimation of the diagenetic smectite illite transformation in time-temperature space. *American Mineralogist* 77, 967–976.
4. Wei, H., Roaldset, E. and Bjorøy, M. (1993) Kinetics of smectite to illite conversion. EAPG 5th Conference, Stavanger 1993/
5. Huang, W.L., Longo, J.M. and Pevear, D.R. (1993) An experimentally derived kinetic model for smectite-to-illite conversion and its use as a geothermometer. *Clays and Clay Minerals* 41, 162–177.
6. Cuadros, J. and Linares, J. (1996) Experimental kinetic study of the smectite-to-illite transformation. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 60, 439-453.
7. Montes-H, G., Fritz, B., Clement, A. and Michau, N. (2005a) Modeling of transport and reaction in an engineered barrier for radioactive waste confinement. *Applied Clay Science* 29, 155-171.
8. Montes-H, G., Marty, N., Fritz, B., Clement, A. and Michau, N. (2005b) Modelling of long-term diffusion-reaction in bentonite barrier for radioactive waste confinement. *Applied Clay Science* 30, 181-198.
9. Marty, N.C.M., Fritz, B., Clément, A. and Michau, N. (2010) Modelling the long term alteration of the engineered bentonite barrier in an underground radioactive waste repository. *Applied Clay Science* 47, 82-90.
10. TR-10-13. Spent nuclear fuel for disposal in the KBS-3 repository Svensk Kärnbränslehantering AB December 2010.
11. Recommended values for the distribution coefficient (kd) to be used in dose assessments for decommissioning the Zion nuclear power plant. Terry Sullivan September 24, 2014 Revision 1.
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. JNC 2000. H12: Project to establish the scientific and technical basis for HLW disposal in Japan. Supporting Report 2. Repository design and engineering technology. JNC TN1410 2000-003, Japan Nuclear Cycle Development Institute, Tokai, Japan.
14. Impact of Corrosion-Derived Iron on the Bentonite Buffer Within the KBS-3H Disposal Concept – the Olkiluoto Site as Case Study. POSIVA 2007-11
15. Dixon, D.A. 2000. Porewater salinity and the development of swelling pressure and bentonite-based buffer and backfill materials. POSIVA 2000-04. Posiva Oy, Helsinki, Finland.
16. Geochemistry, Groundwater and Pollution. C.A.J. Appelo and D. Postma A.A. Balkema Publishers, Leiden, The Netherlands. 2005. 2nd Ed. 649 pages.
17. Corrosion of carbon steel under anaerobic conditions in a repository for SF and HLW in Opalinus Clay. NAGRA, Technical Report 08-12
18. 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.
19. Corrosion of carbon steel under anaerobic conditions in a repository for SF and HLW in Opalinus Clay. NAGRA, Technical Report 08-12
20. Kursten, B., B. Cornélis, S. Labat, and P. Van Iseghem. 1996. Geological disposal of conditioned highlevel and long lived radioactive waste. In situ corrosion experiments. SCK-CEN Report R-3121.
21. Чапаев Д. Б., Оленников А. А. Расчёт скорости внутренней коррозии трубопроводов водяных тепловых сетей из углеродистых сталей // Известия высших учебных заведений. Черная металлургия. 2012. № 4. С. 33–36.
22. Ochs, M., Caterina Talerico. SR-Can Data and uncertainty assessment Migration parameters for the bentonite buffer in the KBS-3 concept BMG Engineering Ltd. August 2004.
23. Karnland, O, 1997. Bentonite swelling pressure in strong NaCl solutions. Correlation between model calculation and experimentally determined data. SKB TR 97-31, Svensk Kärnbränslehantering AB.
24. Kozaki T, Saito N, Fujishima A, Sato S, Ohashi H, 1998. Activation energy for diffusion of chloride ions in compacted sodium montmorillonite. *J. Contam. Hydrol.* 35, 67–75.
25. Ochs M, Lothenbach B, Wanner H, Sato H, Yui M, 2001. An integrated sorption-diffusion model for the calculation of consistent distribution and diffusion coefficients in compacted bentonite. *J. Contam. Hydrol.* 47, 283–296.
26. Luc R. Van Loon, Martin A. Glaus, Werner Müller. Anion exclusion effects in compacted bentonites: towards a better understanding of anion diffusion. International meeting, September 17-18, 2007, Lille, France Clays in natural & engineered barriers for radioactive waste confinement.

27. Kozaki, K., Fujishima, A., Sato, S. & Ohashi, H., (1998), Self-diffusion of sodium ions in compacted sodium montmorillonite. Nuclear Technology, 121, p. 63-69.
28. Generic Post-closure Safety Assessment. NDA Report no. NDA/RWMD/030, December 2010.
29. Geological Disposal Radionuclide behaviour status report. NDA Report no. NDA/RWMD/034, December 2010.
30. AMBER 5.4 Verification Summary. Quintessa Limited Oxfordshire United Kingdom. December 2010.
31. Е.А. Новиков, Ю.В. Шорников, Компьютерное моделирование жестких гибридных систем, монография. – Новосибирск : Изд-во НГТУ, 2012. – 451 с.
32. [https://msdn.microsoft.com/ru-ru/library/y2k85ax6\(v=vs.110\).aspx](https://msdn.microsoft.com/ru-ru/library/y2k85ax6(v=vs.110).aspx)
33. Technical Description of the SPADE Solver for Differential and Algebraic Equations. QuantiSci Report IENV-COD/12-1, version 1.0, QuantiSci Ltd, Henley-on-Thames, UK.