

Петрівський Я.Б., д.т.н., професор (Рівненський державний гуманітарний університет)

КІЛЬКІСНА ОЦІНКА РАДІОЛІТИЧНОГО НАПРУЖЕННЯ В ОБ'ЄМІ МАТЕРІАЛУ ІНЖЕНЕРНОГО БАР'ЄРУ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ

Запропоновано методику розрахунку кількісної оцінки радіолітичного напруження у внутрішньому шарі матеріалу інженерного бар'єру в системі «тверді радіоактивні відходи – вода».

Ключові слова: радіолітичне напруження, тверді радіоактивні відходи.

It is offered a technique of a quantitative estimation of radiolysis pressure in an inside layer of a material of an engineering barrier in system «firm radioactive waste – water».

Keywords: radiolysis pressure, firm radioactive waste.

Предложено методику расчета количественной оценки радиолитического напряжения во внутреннем слое материала инженерного барьера в системе «твердые радиоактивные отходы – вода».

Ключевые слова: радиолитического напряжение, твердые радиоактивные отходы.

Серед критеріїв обґрунтування безпеки при створенні сховища радіоактивних відходів(РАВ) в глибоких надрах геологічних формацій важливе місце займають питання прогнозу розвитку процесів в матеріалах інженерних та природних бар'єрів під впливом випромінювання, а також процесів переносу та утримання радіонуклідів у геологічному середовищі. Радіаційно-термічний вплив радіоактивних відходів на інженерні та природні бар'єри визначається в першу чергу наявністю певної кількості води в матеріалах та гірських породах, що під дією радіоактивного випромінювання РАВ постійно знаходиться в стані радіолітичного розпаду. В процесі радіолізу певна кількість іонів водню рекомбінує з електронами в атомарний водень, що володіє достатньою міграційною здатністю у пористих середовищах. Мігруючи в ультра- та мікропорах, атомарний водень при накопиченні здатен переходити в молекулярний стан із виділенням при цьому значної кількості енергії – 485 кДж/моль, що переходить у кінетичну енергію. В областях накопичення водню утворюється значний тиск, що здатний призводити до крихкого руйнування матеріалів. Руйнівна здатність молеризованного водню, гелію в реакторних матеріалах, ядерному паливі, вакансійне розширення, його причини та основні механізми є достатньо відомими та вивченими [1].

Основним із матеріалів, що використовується для створення технічних бар'єрів є бетон, який являє собою пористий вологовміщуючий матеріал. При

моделюванні процесів газоутворення та газонакопичення розроблено ряд моделей. Наприклад, модель [2] передбачає наявність центрів газоутворення, а функція джерела компонентів радіолітичного газу визначається розв'язком системи звичайних диференціальних рівнянь

$$\left. \begin{aligned} \frac{d[B]}{dt} &= -2k_1[B] + 2k_2[H_2] \\ \frac{d[A]}{dt} &= 2k_1[B] - 2k_2[H_2] \\ \frac{d[H_2]}{dt} &= 2k_1[B] - 2k_2[H_2] \\ \frac{d[O_2]}{dt} &= k_1[B] - 2k_2[H_2] \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

В системі (1) $[B]$ – концентрація центрів газоутворення, $[H_2]$ – концентрація молекулярного водню, $[A]$ – концентрація незаповнених воднем місць у бетоні, $[O_2]$ – концентрація молекулярного кисню, k_1 – константа пропорційності потужності поглиненої дози, k_2 – константа швидкості рекомбінації.

Складність процесів радіолітичного газоутворення та необхідність при кінетичному зображенні процесу радіолізу, крім визначення механізму реакцій, враховувати і швидкості надходження реагентів – продуктів радіолізу води (радикалів, іон-радикалів, молекулярних продуктів) в реакційний об'єм, що є пропорційними потужності поглиненою водою дози опромінення та радіаційно-хімічному виходу даного продукту реакції, визначила необхідність в гомогенному наближенні розрахунку кінетики накопичення продуктів радіолізу води в техногенному родовищі [3] застосовувати модель виду [4]:

$$\frac{dC_i}{dt} = G_i \cdot I + \sum_{j=1}^n k_{i,j} \cdot C_i \cdot C_j + A_i \cdot (C_i - a_i \cdot p_i) - W_i, \quad i = \overline{1, n} \quad (2)$$

В системі (2) C_i та C_j – концентрації продуктів радіолізу; $k_{i,j}$ – константи швидкості хімічних реакцій; I – потужність поглиненої в воді дози опромінення; a_i – константа Генрі; p_i – парціальний тиск i -го продукту у вільному об'ємі; A_i – коефіцієнти масо передачі; W_i – швидкість виносу продуктів радіолізу із зони опромінення з потоком рідини; G_i – радіаційно-хімічний вихід.

Отримані результати досліджень дозволили розробити методику розрахунку кінетики радіаційно-хімічного утворення та динаміки міграції водню в системі твердий радіоактивний відходи – вода [5].

Задача досліджень полягає у визначенні основних закономірностей радіаційного впливу на інженерні бар'єри могильника РАО разом із переносом та утриманням радіонуклідів в геологічному середовищі, що визначає методику оцінки стійкості матеріалу захисних бар'єрів інженерних споруд при поведженні із радіоактивними матеріалами.

Розрахункову формулу для обчислення радіолітичного напруження, що виникає в структурі матеріалу інженерного бар'єру захисту від радіоактивного опромінення, із врахуванням результатів робіт [3, 5], запишемо:

$$\sigma = \frac{4G(H_2) \cdot W \cdot Q \cdot k \cdot T}{\pi \cdot 100 \cdot N_A} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\sin \frac{(2k+1)\pi x}{H}}{(2k+1)} \sum_{i=1}^m \frac{A_{i,0} (n_{i,\gamma} E_{i,\gamma} + n_{i,\beta} E_{i,\beta})}{\left(\frac{D(2k+1)^2 \pi^2}{H^2} - \frac{\ln 2}{T_{i,1/2}} \right)} \left(e^{\frac{\ln 2 t}{T_{i,1/2}}} - e^{-\frac{D(2k+1)^2 \pi^2 t}{H^2}} \right) \cdot (3)$$

У формулі (3) $G(H_2) = 0,5 \frac{\text{молекула}}{100 \cdot eB}$ – радіаційно-хімічний вихід водню; W – вологість або частка води в матеріалі інженерного бар'єру; Q – пористість матеріалу інженерного бар'єру; k – стала Больцмана; T – абсолютна температура; N_A – число Авогадро; m – кількість радіонуклідів в складі радіоактивного матеріалу; $A_{i,0}$ – питома активність нукліда i ($\frac{Ки}{M^3}$) на момент часу t_0 ; D – ефективний коефіцієнт дифузії радіолітичного газу в об'ємі матеріалу інженерного бар'єру; $T_{1/2}$ – період піврозпаду радіонукліду; $n_{i,\gamma}$ – квантовий вихід на розпад для нукліда i із випромінюванням γ - квантів (%); $E_{i,\gamma}$ – енергія γ - квантів нукліда i (MeB); $n_{i,\beta}$ – квантовий вихід на розпад для нукліда i із випромінюванням β - квантів (%); $E_{i,\beta}$ – енергія β - квантів нукліда i (MeB); H – характерний лінійний розмір інженерного бар'єру, $0 < x \leq H$.

Розрахунки за формулою (3) проведено із врахуванням початкового складу відпрацьованого ядерного палива [6, 7], серед якого для оцінки напруження при обчисленні сумарної та питомої активності було вибрано радіонукліди цезій-стронцієвої групи та тривалоактивні елементи трансуранової групи, оскільки їх вплив при розрахунку на вказані показники є найбільшим. При виборі складу радіонуклідів відпрацьованого палива визначальними показниками є потужність дози (Р·см²), сумарна активність (Бк), енергія фотонів(МэВ), квантовий вихід на розпад(%), вихід β частинок і-го переходу (%); гранична енергія спектру β -випромінювання (кэВ), середня енергія спектру β - випромінювання і-го переходу ($\frac{\text{кэВ}}{\beta - \text{част}}$), середня енергія

спектру β - випромінювання радіонукліду ($\frac{\text{кЭВ}}{\text{розпад}}$).

На випадок зміни потужності матеріалу інженерного бар'єру в межах від 0,5 м до 3 м відповідні значення внутрішніх напружень, що виникають внаслідок радіолізу води бетону в часі наведено на рис. 1.

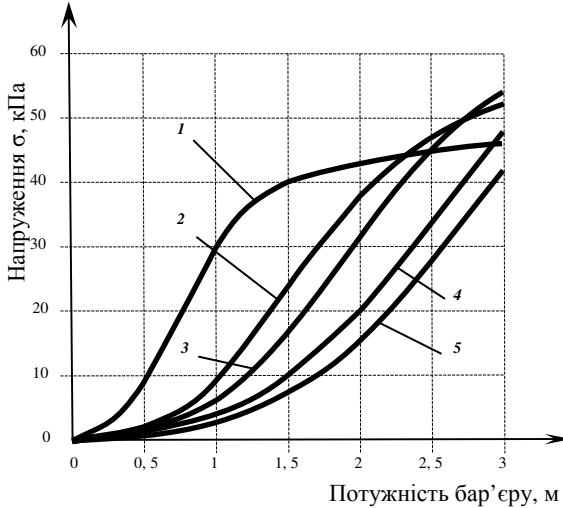


Рис. 1. Напруження в товщі бетону при радіолітичному газоутворенні залежно від потужності захисту інженерного бар'єру для різних моментів часу закладення РАВ: 1 – 1 рік, 2 – 5 років, 3 – 10 років, 4 – 25 років, 5 – 30 років

Характерною особливістю напруженого стану матеріалу інженерного захисту, як видно з графіків, є прогресуюче зростання внутрішнього напруження на початковій стадії утворення радіолітичного газу із наступним уповільненим зростанням і згасаючою інтенсивністю в подальшому.

Нижче, на рис. 2, наведено у вигляді залежностей від часу результати розрахунку значень радіолітичних напружень у внутрішньому шарі матеріалу інженерного бар'єру при вказаних вище параметрах на випадок товщини захисного бар'єру 1 м, 1,5 м, 2 м, 2,5 м, 3 м відповідно.

Інтенсивність радіолітичного газоутворення, а отже, і діючого на внутрішні шари бетону радіолітичного напруження, як видно із формули (3), суттєво залежить від вологості матеріалу інженерного бар'єру. Наступна серія розрахунків напруженого стану була проведена при варіюванні параметра вологості. На рис. 3 наведено результати розрахунків залежності радіолітичного напруження у внутрішньому шарі матеріалу інженерного бар'єру потужністю

1,5 м при радіолітичному газоутворенні в часі для модельних значень вологості – 0,9; 0,7; 0,5; 0,3; 0,1.

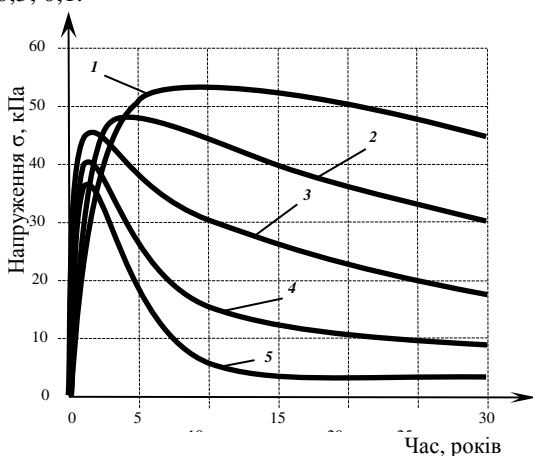


Рис. 2. Радіолітичні напруження у внутрішньому шарі матеріалу інженерних систем захисту залежно від часу для потужності бар'єру: 1 – 3 м, 2 – 2,5 м, 3 – 2 м, 4 – 1,5 м, 5 – 1 м

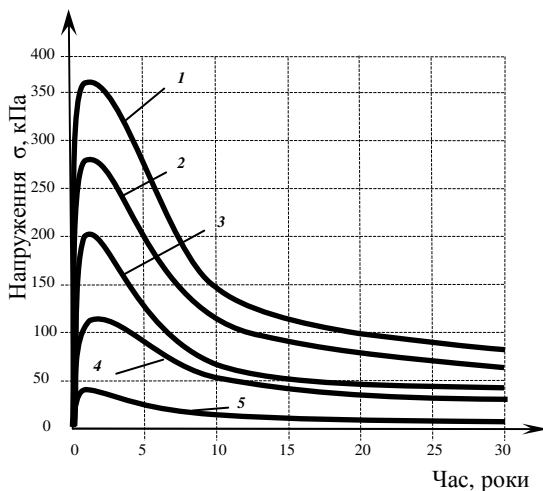


Рис. 3. Радіолітичні напруження у внутрішньому шарі матеріалу інженерного бар'єру потужністю 1,5м залежно від часу для значень вологості: 1 – 0,9; 2 – 0,7; 3 – 0,5; 4 – 0,3; 5 – 0,1

Результати розрахунків, наведені на рис.2 вказують на те, що радіолітичні напруження у внутрішньому шарі матеріалу інженерних систем захисту мають менші значення для бар'єрів меншої потужності. Даний результат пояс-

нюється дифузією радіолітичного газу із матеріалу інженерного захисту, що вказує на недостатність захисних властивостей бар'єрів такої потужності.

Якщо врахувати, що допустимі напруження на розтяг для бетону марки М200 дорівнюють 0,35 МПа, а для бетону марки М400 відповідно 0,15 МПа, то на основі отриманих результатів можна зробити висновок, що вказані марки бетону можуть бути використаними як матеріал для створення інженерних бар'єрів захисту від джерел опромінення із початковою питомою активністю до 10^4 Ки/м³ по ¹³⁷Cs. Зауважимо, що для широкого діапазону гірничих порід граничне значення параметру міцності на одновісний розтяг знаходиться в межах до значення порядку 10^7 Па. Вказане означає, що внаслідок радіолітичного розпаду води, процесів радіолітичного руйнування внутрішньої структури таких геоматеріалів відбуватись не буде, що означає можливість їх використання при створенні інженерних бар'єрів захисту від іонізуючого випромінювання.

Динаміка зміни у часі та просторі радіолітичного напруження у внутрішньому шарі матеріалу інженерного бар'єру бетону марок М200, М400, геоматеріалів із значення параметру міцності на одновісний розтяг порядку 10^7 Па на початку закладення РАВ має прогресуючий характер впродовж перших двадцяти років із подальшим уповільненням зростання і згасання інтенсивності та стабілізацією, що дозволяє використання матеріалів із фізико-механічними властивостями, аналогічними до вказаних, при створенні інженерних бар'єрів захисту від іонізуючого випромінювання.

1. Федоров Г.Б., Смирнов Е.А. Диффузия в реакторных материалах. М. – Атомиздат, 1978. – 160 с.
2. Алексеев Н.Н., Бледных Е.И. Модель радиационного газообразования в бетоне. – Свердловск, 1981. Деп. в ВИНТИ. 28.10.81, № 4965-81.
3. Петрівський Я.Б. Оцінка інтенсивності дії джерела радіолітичного газу техногенного родовища // Вісник інженерної академії України. – 2008. – №1. – С. 32-36.
4. Пикаев А.К. Современная радиационная химия. Радиолитиз жидкостей и газов. – М.: Наука, 1986. – 440 с.
5. Петрівський Я.Б. Кількісна оцінка граничної концентрації радіолітичного газу та напружень в об'ємі техногенного родовища // Вісник Рівненського національного університету водного господарства та природокористування. – 2008. – Вип. 2(42). – С. 446-453.
6. Боровой А.А. Ядерное топливо в объекте «Укрытие» // Атом. энерг. – 2006. – Т. 100, вып.4 – С. 259-267.
7. Козлов Справочник по радиационной безопасности. – М.: Энергоатомиздат, 1999. – 520 с.

Рецензент: д.т.н., проф. Власюк А.П. (НУВГП)