

Dujų sklaidos modeliavimas didelio aktyvumo radioaktyviųjų atliekų conceptualaus geologinio atliekyno tunelyje

Darius Justinavičius,

Povilas Poškas

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

Panaudotas branduolinis kuras ir kitos ilgaamžės didelio aktyvumo radioaktyviosios atliekos negali būti talpinamos į žemės paviršiuje įrengtus atliekynus dėl šiose atliekose esančių radionuklidų skleidžiamos intensyvios jonizuojančiosios spinduliuotės keliamo pavojaus žmonėms ir aplinkai. Šiuo metu vyrauja tarptautinė nuomonė, kad tokios atliekos turėtų būti talpinamos žemės gelmėse (500–1 000 m gylyje) įrengtuose atliekynuose, o jų ilgalaikę saugą turi užtikrinti daugiabarjerė apsaugos sistema, susidedanti iš vienas kitą papildančių inžinerinių ir gamtinių barjerų.

Dėl plieninių radioaktyviųjų atliekų pakuočių (konteinerių) ir metalinių konstrukcinių elementų korozijos atsirandančios dujos gali kelti potencialią grėsmę ilgalaikiai geologinio atliekyno saugai. Šiuo metu atliekami eksperimentiniai ir skaitiniai tyrimai siekiant išanalizuoti dujų elgseną geologinio atliekyno sąlygomis (susidarymo greitis, galimi bei dominuojantys sklaidos mechanizmai, sklaidą lemiančios parametrų skaitinės vertės inžinerinėse ir geologinėse struktūrose).

Straipsnyje apžvelgiami potencialūs dujų susidarymo šaltiniai ir šių dujų sklaidos mechanizmai, patalpinus radioaktyvias atliekas geologiniame atliekynuose. Suformuluojamas uždavinys, supažindinama su dujų sklaidos vertinimo metodika ir pristatomi skaitinio dujų sklaidos vertinimo rezultatai viename didelio aktyvumo radioaktyviųjų atliekų talpinimo tunelyje molingoje aplinkoje. Vertinimas atliktas kompiuterine programa PETRASIM (JAV). Rezultatai parodė, kad didžioji dalis talpinimo tunelyje susidarančių dujų konvekciniu būdu sklinda link transportavimo tunelio. Dujų tirpimas požeminiame vandenyje ir difuzija į molingą aplinką yra mažiau reikšmingi procesai.

Raktažodžiai: dujų sklaida, skaitinis modeliavimas, ilgaamžės didelio aktyvumo radioaktyviosios atliekos, geologinis atliekynas, molingosios uolienos

ĮVADAS

Dujų generacija ir jų įtaka ilgalaikiai geologinių atliekynų saugai tiriama beveik du dešimtmečius. Daugiausiai tyrimų vykdoma šalyse, besirengiančiose talpinti panaudotą branduolinį kurą ar kitas didelio aktyvumo ilgaamžės radioak-

tyvias atliekas (toliau straipsnyje visas šias atliekas apibendrintai vadinsime didelio aktyvumo atliekomis – DAA) geologinėse aplinkose – Belgijoje, Didžiojoje Britanijoje, JAV, Kanadoje, Prancūzijoje, Suomijoje, Švedijoje, Šveicarijoje, Vokietijoje. Nors ir skiriasi šiose šalyse susidarančių DAA tipai, jų kiekiai, geologinio atliekyno koncepcijos

ar potencialios talpinimo aplinkos, tačiau visas šalis vienija tikslas – turėti saugų geologinį atliekyną dabartinei ir ateities kartoms. Be tyrimų, atliekamų kiekvienoje šalyje atskirai, rengiami ir bendri tarpvalstybiniai tyrimų projektai. Šių tyrimų metu bendromis jėgomis atliekami sudėtingiausi eksperimentiniai ir skaitiniai tyrimai, lyginami gauti rezultatai, naujų žinių pagrindu kuriamos naujos teorijos. Paminėtini jau baigti vykdyti tarptautiniai mokslinių tyrimų projektai, kuriuose buvo nagrinėjami dujų elgsenos aspektai vertinant geologinių atliekynų saugą: EVAGAS [1], MEGAS [2], PEGASUS [3], GASNET [4], NF-Pro [5], PAMINA [6]. Šie tyrimai identifikavo geologiniuose atliekynuose susidarantių dujų potencialią grėsmę ilgalaikiai saugai: (i) – susidarantys viršslėgiai gali paveikti mechaninį inžinerinių barjerų sistemos stabilumą; (ii) – gali būti pakeistas požeminio vandens tekėjimo režimas, o dominuojančią lėtą difuzinę pernašą pakeistų sparti konvekcine pernaša; (iii) – dujinių radionuklidų bei toksiškų dujų patekimas į biosferą.

Šiuo metu pakankamų įrodymų apie egzistuojančias potencialias grėsmes ar galimą jų atmetimą nėra, todėl tarptautiniai tyrimai vykdomi toliau. 2009 m. prasidėjo ES 7-osios bendrosios programos projektas FORGE (angl. *Fate of Repository Gas*), kuriame nagrinėjama dujų, susidarantių geologiniuose atliekynuose, elgsena. Šio projekto skaitinių tyrimų sekcijoje, koordinuojamoje Prancūzijos nacionalinės radioaktyviųjų atliekų tvarkymo agentūros ANDRA, dalyvauja ir Lietuvos energetikos instituto Branduolinės inžinerijos problemų laboratorijos mokslininkai. Šiame straipsnyje pristatomi rezultatai, kurie buvo gauti sprendžiant I-ąją testinių palyginamųjų studijų (angl. *Benchmark Studies*) uždavinį, taikant specifikacijoje [7] pasiūlytas bazines parametrų vertes.

TEORINĖ DALIS

Uždarius geologinį atliekyną, jo aplinkoje vyraus aerobinės sąlygos, kurios po keliasdešimt – kelių šimtų metų (priklausomai nuo talpinimo koncepcijos ir geologinės aplinkos) taps anaerobinėmis dėl deguonies cheminės sąveikos su aplinkos medžiagomis ir dėl atliekyno aplinką visiškai prisotinančio požeminio vandens.

Dujų šaltiniai

Priklausomai nuo geologinio atliekyno koncepcijos, radioaktyviųjų atliekų ir jų pakuočių tipų, išskiriami 4 galimi dujų susidarymo šaltiniai – anaerobinė metalų korozija, biodegradacija, radiolizė, radioaktyvusis skilimas [8]. Dominuojančiu ir svarbiausiu dujų šaltiniu geologiniame atliekynuose laikoma DAA plieninių konteinerių ir inžinerinių konstrukcijų korozija [9]:



Šiuo metu vykdoma daug eksperimentinių ir skaitinių tyrimų siekiant nustatyti korozijos veikiamus vandenilio dujų (H_2) susidarymo greičius būsimuose atliekynuose. Tyrimai komplikuoti, kadangi korozijos greitis vienu metu priklauso nuo kelių aspektų: cheminių sąlygų geologinėje aplinkoje (vandenilio potencialo pH, oksidacinio-redukcinio potencialo Eh), temperatūros, jonizuojančios spinduliuotės intensyvumo, aplinkoje esančio vandens kiekio, reakcijos paviršiaus ploto. Apibendrinti tyrimų rezultatai [9] rodo, jog plieno korozijos greitis galėtų kisti ribose 0,1–10 $\mu\text{m}/\text{metus}$. Kaip rodo eksperimentinių tyrimų rezultatai, korozijos greitis nepastovus – iškart po atliekyno uždarymo jis didėja, o vėliau mažėja. Pagrindinės to priežastys – korozijos procesui reikalingo vandens trūkumas ir susidaranti pasyvacinė korozijos plėvelė [10].

Kiti dujų šaltiniai būdingi tik esant tam tikroms sąlygoms, o dujų susidarymo greitis mažesnis nei vykstant korozijai. Pvz., geologiniame atliekynuose patalpinus ilgą laiką vidutinio aktyvumo atliekas, tikėtina organinių atliekų (celiuliozės, plastiko, dervų, bitumo, tepalų) biodegradacija, nors geologinio atliekyno sąlygos ir nėra palankios šiam procesui būtinų bakterijų dauginimuisi ir išgyvenimui. Anaerobinėmis sąlygomis dėl biodegradacijos susidarytų CO_2 , CH_4 , H_2 , N_2 ir H_2S dujos. Radiolizės metu dėl radioaktyviųjų atliekų pakuočių skleidžiamos jonizuojančios spinduliuotės yra paveikiamos vandens ar organinės molekulės ir sukuriama labai reaktyvūs laisvieji radikalai. Jiems reaguojant su aplinkos molekulėmis susidaro H_2 , CO_2 ar CH_4 dujos. Intensyvesnė jonizuojančioji spinduliuotė sukuria didesnę dujų kiekį. Radioaktyviųjų atliekų konteineriuose dujos gali susidaryti dėl radioaktyviojo skilimo, tačiau tikėtina, kad dėl šių dujų kiekių nesudarys viršslėgiai, keliantys grėsmę konteinerių sandarumui [11].

Dujų sklaidos mechanizmai

Sprendžiant vienfazius hidrodinaminis uždavinius tiriamas vandens judėjimas medžiagų poromis (porėtos aplinkos koncepcija plačiau aprašyta [12]) dėl hidrodinaminio slėgio skirtumų ir sunkio jėgos poveikio. Toks judėjimas uolienoje vadinamas vandens filtracija arba geofiltracija. Geologiniuose atliekynuose šis labai lėtas judėjimas yra specifinis ir skiriasi nuo vandens judėjimo vamzdžiais ar upėmis [13]. Nustatyti vandens judėjimą atskiromis poromis neįmanoma, todėl daroma prielaida, kad požeminio vandens srautas teka ne atskiromis poromis, bet visu medžiagos skerspjuvio plotu, t. y. porėtos medžiagos pakeičiamos ištisine vienalyte aplinka.

Analizuojant dujų, patekusių į visiškai vandeniui prisotintą porėtą aplinką, elgseną reikia vertinti konvekcine (geofiltracine) dujų pernašą bei molekulinę difuziją, atsirandančią dėl skysčio koncentracijos gradiento. Dujų

sklaida porėtoje aplinkoje priklauso nuo porėtos medžiagos charakteristikų – absoliutinio skvarbos koeficiento k (angl. *Intrinsic Permeability*), poringumo rodiklio ϕ , prisotinimo vandeniu S_{sk} ir susidarančių dujų slėgio P_d . Šiuo metu atliekami tyrimai siekiant nustatyti dujų sklaidos mechanizmus geologinio atliekyno sąlygomis. Išskiriami keletas etapų:

1. *Difuzinė vandenyje ištirpusių dujų pernaša* – prasidėjus korozijai, H_2 dujų kiekis yra mažas, todėl jos spėja ištirpti inžinerinių barjerų porose esančiame vandenyje ir difunduoja nuo koroduojančio paviršiaus link geologinės aplinkos. Dujų susidarymo greičiui viršijus ištirpusių dujų difuzijos greitį, dėl didėjančio dujų slėgio medžiagos porose ima formotis dujinė fazė – izoliuoti ir nejudantys burbulai. Medžiagos poros tampa nevisiškai prisotintos vandeniu, kadangi dalis vandens išstumama poromis tolyn nuo koroduojančio paviršiaus. Svarbu pastebėti, kad šioje stadijoje dar nevyksta dvifazio srauto tekėjimas.

2. *Klampi-kapiliarinė dvifazio srauto pernaša* – korozijai tęsiantis, H_2 dujų slėgis didėja. Pasiekus slenkstinį slėgį $P_{slenkst}$ (angl. *Gas Entry Pressure*), izoliuoti dujų burbulai porose ima jungtis tarpusavyje, sudarydami vientisą dujinę fazę. Prasideda dvifazio srauto tekėjimas, t. y. H_2 dujos pernešamos konvekcinio srautu. Taip pat vyksta ir difuzinė ištirpusių dujų pernaša.

3. Šiuo metu tiksliai nėra žinomas tolimesnis dujų elgsenos mechanizmas, jų slėgiui dar labiau didėjant. Egzistuoja dvi hipotezės:

3.1. *sklaida porėtose aplinkose cikliška atsiveriančiais ir užsiveriančiais plyšiais* (angl. *Fracture*) [14]. Atliekynuose numatomos naudoti medžiagos pasižymi mažu pralaidumu fluidams (mažu absoliutiniu skvarbos koeficientu k), todėl visos susidarančios dujos negali būti pernešamos į geologinę aplinką vien konvekcines ir difuzines pernašos būdu. Dujos kaupiasi, porose didėja slėgis. Kai dujų slėgis $P_{slenkst}$ (angl. *Breakthrough Pressure*) viršija litostatinį (uolienu masės) slėgį, medžiagose susidaro plyšiai, sukuriantys pirmumo dujų sklaidos kelius (angl. *Preferential Flow Path*). Dujos staigiai išsklaidomos, sumažėja jų slėgis, ir plyšiai užsiveria. Šis cikliškas procesas vyksta, kol dujų susidarymo greitis sulėtėja tiek, jog porose dujų slėgis nedidėja, t. y. jos pernešamos konvekcinio srautu ar spėja ištirpti vandenyje. Remiantis šia hipoteze, skaitiniam dujų sklaidos vertinimui (kai $P_{dujų} \geq P_{slenkst2}$) negalima taikyti tradicinių dvifazių srautų pernašos modeliavimui skirtų programinių paketų (tokių kaip PETRASIM), kadangi analizuojamoje sistemoje neišlaikoma nepertraukiamo fluidų srauto nepertraukiamumo sąlyga;

3.2. *sklaida porėtose aplinkose atsiveriančiais ir užsiveriančiais mikro- ir makroplyšiais* [15]. Ši hipotezė analogiška pirmajai: dujų slėgiui viršijus minimalius įtempimus medžiagoje, sukuriama mikroplyšiai, tačiau skirtumas, jog jie sukuriama ne medžiagai skylant įtempimų kryptimi, o

išplečiant poras (angl. *Pathway Dilatation*). Taip padidinamas medžiagų pralaidumas fluidams. Šiuo atveju dujų sklaidos vertinimui galima taikyti tradicinius dvifazių srautų pernašos modeliavimo paketus, tačiau reikia kompleksiskai įvertinti mechaninių deformacijų įtaką. Jeigu mikroplyšių susidarymas nekompensuoja tolesnio dujų slėgio didėjimo, atsiveria makroplyšiai, savo prigimtimi panašūs į aptartuosius pirmoje hipotezėje. Mikroplyšiai užsiveria, kai dujų slėgis tampa mažesnis už minimalius įtempimus medžiagoje.

UŽDAVINIO FORMULAVIMAS

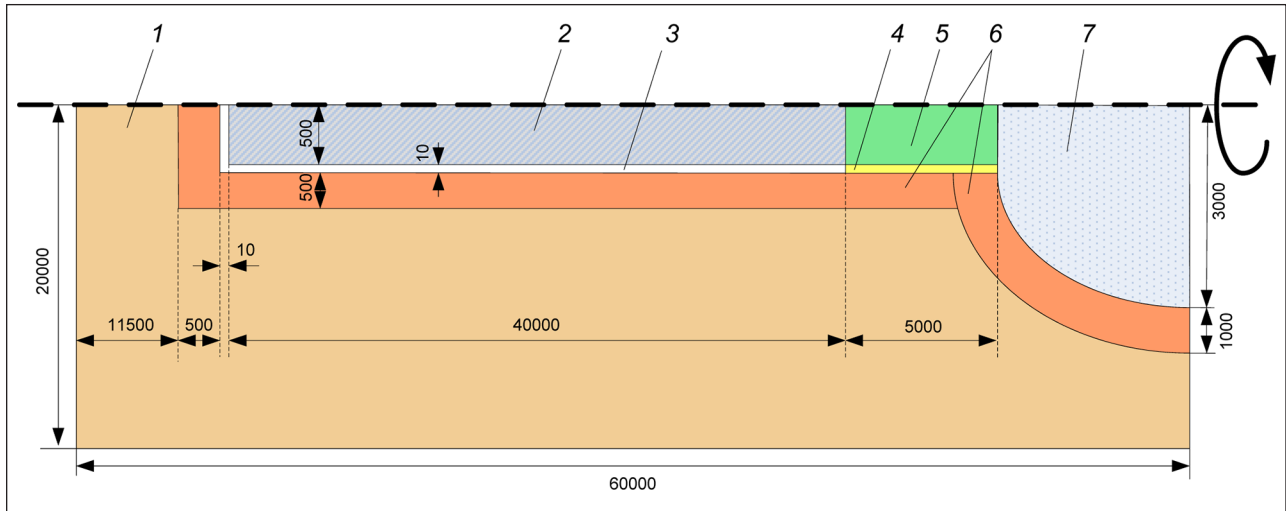
Uždavinys analizuojamas projekto FORGE skaitinių tyrimų sekcijoje. Kadangi sekcijos dalyviai yra iš skirtingų šalių, todėl geologinio atliekyno koncepcija yra ne nacionalinė, bet bendrojo pobūdžio. Remiantis uždavinio specifikacija [7], DAA konteineriai šachta nuleidžiami į 500 m gylyje iškastą pagrindinį tunelį, iš kurio transportavimo tuneliais gabenami į molingoje uolienoje įrengtus talpinimo tunelius, konteineriai juose guldomi vienas paskui kitą ir pabaigoje užsandarinami bentonito¹ kamščiu (žr. 1 pav.). Talpinimo tuneliai turi būti šiek tiek didesnio skersmens nei DAA konteinerių skersmuo, todėl liks minimalūs tarpeliai tarp jo ir kasimo sutrikdytos zonos (KSZ) bei tarp bentonito kamščio ir KSZ. Talpinimo tunelius užpildžius DAA, transportavimo ir pagrindiniai tuneliai bei šachta užpilami susmulktintų uolienu bei bentonito mišiniu.

Uždavinio tikslas – dujų sklaidos modeliavimas viename DAA talpinimo tunelyje. Būtina įvertinti mažų matmenų inžinerinius tarpelius tunelyje, atsirandančius po DAA patalpinimo ir atliekyno uždarymo. Uždavinys priimamas, jog hidraulinės charakteristikos tarpelyje tarp DAA konteinerio ir KSZ ekvivalenčios smėliui (labai hidrauliškai laidžiai medžiagai), o tarpelyje tarp bentonito kamščio ir KSZ – dėl tikėtino bentonito brinkimo ir tarpelio susitraukimo – priimtos tarpinės tarp smėlio ir bentonito. Straipsnyje dujų sklaida analizuojama taikant bazinius (labiausiai tikėtinus) inžinerinių medžiagų parametrus.

VERTINIMO METODIKA

Skaitinis dujų sklaidos vertinimas atliktas programiniu paketu PETRASIM (JAV), kurio pagrindu yra plačiai taikoma dvifazių srautų (fluidų) pernašos modeliavimo programa TOUGH2 (JAV) [16]. Taikytas EOS5 modulis, kuriame aprašytos vandens ir H_2 dujų termodinaminės savybės. Geologinis atliekynas laikomas porėta aplinka, kurios poros gali būti visiškai ar nevisiškai užpildytos skysta ar dujine faze.

¹ Bentonitas – specialio molio rūšis, kurio sudėtyje daugiausia montmorilonitinio molio ir panašių smektitų grupės mineralų. Bentonitas yra numatomas naudoti kaip atliekynų inžinerinių barjerų medžiaga.



1 pav. Konceptualus modelis dujų sklaidos modeliavimui: 1 – molingosios uolienos; 2 – didelio aktyvumo atliekų konteineriai; 3 – inžinerinis tarpelis tarp didelio aktyvumo atliekų konteinerių ir kasimo sutrikdytosios zonos; 4 – inžinerinis tarpelis tarp bentonito kamščio ir kasimo sutrikdytosios zonos; 5 – bentonito kamštis; 6 – kasimo sutrikdytoji zona; 7 – transportavimo tunelio užpildas

Analizuojamu atveju skystąją fazę (β_1) laikomas požeminis vanduo (κ_1), su jame ištirpusiomis H_2 dujomis (κ_2), o dujinę fazę (β_2) – vandens garai (κ_3) ir H_2 dujos (κ_4). Fluidų pernaša aprašoma masės tvermės dėsniumi, kuris TOUGH2 atveju yra:

$$\frac{\partial M^\kappa}{\partial t} = -\text{div}(F_{\text{konv}}^\kappa + F_{\text{dif}}^\kappa) + q_\kappa; \quad (2)$$

čia M^κ – komponento κ masė, F_{konv}^κ ir F_{dif}^κ – konvekcinių ir difuzinio srauto tankiai, q_κ – komponento κ susidarymo greitis.

Komponento κ (fazėje β) konvekcinių srauto tankis F_{adv}^κ (2) charakterizuojamas:

$$F_{\text{konv}}^\kappa = \sum_{\beta} X_{\beta}^{\kappa} F_{\beta}; \quad (3)$$

čia F_{β}^{κ} – komponento κ masės dalis fazėje β , o faziniai srautai dėl konvekcinių pernašos F_{β} aprašomi Darsi dėsniumi:

$$F_{\beta} = -k_{\beta} \frac{k_{s,\beta} \rho_{\beta}}{\mu_{\beta}} (\nabla P_{\beta} + \rho_{\beta} g), \quad (4)$$

čia k_{β} – absoliutus skvarbos koeficientas uolienoje, $k_{s,\beta}$ – santykinis skvarbos koeficientas uolienoje, μ_{β} – fluידo dinaminės klampos koeficientas, ρ_{β} – fluידo tankis, g – laisvojo kritimo pagreitis, ∇P_{β} – fluידo slėgio gradientas.

Skystos fazės slėgis P_{β_1} apskaičiuojamas kaip aritmetinė dujinės fazės slėgio P_{β_2} ir (neigiamo) kapiliarinio slėgio P_{kap} suma:

$$P_{\beta_1} = P_{\beta_2} + P_{\text{kap}}. \quad (5)$$

Santykinis uolienos skvarbos koeficientas $k_{s,\beta}$ (4) ir kapiliarinis slėgis P_{kap} (5) priklauso ne tik nuo fizinės medžiagų sudėties, bet ir nuo šios medžiagos prisotinimo vandeniu S_{sk} . Šios dvifazio srauto charakteristikos yra svarbios nagrinėjant fluidų pernašą porėtoje aplinkoje, todėl šiuo metu vykdoma daug tyrimų siekiant gauti šias priklausomybes visame medžiagų prisotinimo vandeniu diapazone. Programiniame pakete TOUGH2 pateikiama keletas eksperimentiškai nustatytų charakteristikų, tačiau, modeliuojant dujų sklaidą, plačiausiai taikomos Van Genuchteno (kapiliariniam slėgiui P_{kap}) ir Van Genuchteno – Mualemo (santykiniam uolienų skvarbos koeficientui $k_{s,\beta}$) [17, 18, 19] priklausomybės.

Pagal Fiko dėsnį, difuzinio srauto dydis proporcingas difuzijos komponentų koncentracijų gradientui ir bendru atveju priklauso nuo difuzijos komponentų, fluידo ir porėtos aplinkos savybių. Komponento κ (fazėje β) difuzinio srauto tankis F_{dif}^κ charakterizuojamas:

$$F_{\beta}^{\kappa} = -\phi \tau_0 \sum_{\beta} \tau_{\beta}(S_{\beta}) \rho_{\beta} d_{\beta}^{\kappa} \nabla X_{\beta}^{\kappa}; \quad (6)$$

čia ϕ – medžiagos poringumo rodiklis, $\tau_0 \tau_{\beta}(S_{\beta})$ – porų vingiuotumo parametras (angl. *Tortuosity*), priklausantis nuo medžiagos faktoriaus τ_0 ir prisotinimo vandeniu faktoriaus $\tau_{\beta}(S_{\beta})$, ρ_{β} – fluידo tankis, X_{β}^{κ} – komponento κ masės dalis fazėje β , d_{β}^{κ} – komponento κ molekulinės difuzijos koeficientas fazėje β .

Remiantis Henrio dėsniumi, H_2 dujų tirpumo riba vandenyje $C_{H_2O}^{H_2}$ tiesiškai priklauso nuo parcialinio dujų slėgio $P(H_2)$:

$$C_{H_2O}^{H_2} = k_H(H_2) \cdot P(H_2); \quad (7)$$

čia $k_H(H_2)$ – Henrio konstanta vandeniliui.

Skaitinis modelis

Skaitinis uždavinio modelis buvo sudarytas pagal pateiktą uždavinio specifikaciją [7], kurioje pateikta uždavinio geometrija, vykstančių fizikinių procesų aprašas ir jų matematinės išraiškos, pradinės ir ribinės sąlygos bei analizei reikalingų parametrų vertės (žr. lentelę). Nagrinėjamas dvimatis simetrinis patalpinimo tunelio modelis cilindrinėje koordinatų sistemoje. Tinklelio kūrimui naudoti stačiakampiai elementai, todėl cilindriniai atliekyno komponentai pakeisti į atitinkamų matmenų stačiakampius komponentus. Modelio tinklulis sudarytas iš ~5 000 elementų ir sutankintas inžinerinėse medžiagose (bentonito kamštyje ir transportavimo tunelyje) bei KSZ, kadangi čia tikėtini intensyviausi pernašos procesai. 1 cm pločio inžineriniai tarpeliai reprezentuojami viena tinklulio elementų eile.

Pradinės ir ribinės sąlygos

Dujų sklaida modelyje vertinama izoterminėmis sąlygomis (20 °C temperatūra), t. y. korozija prasideda pasibaigus šilumos išsiskyrimui iš DAA konteinerių. Konservatyviai priimama, jog H₂ dujų generacija vyksta pastoviu greičiu pirmuosius 10 000 metų, o po to nutrūksta. Dujų susidarymo greitis $Q_d^{H_2} = 100$ mol/metus/patalpinimo tuneliui, o tai atitinka metinį ~4 μm storio sukoroduojantį plieno sluoksnį. Skaitiniame modelyje šis srautas injekuojamas į inžinerinį tarpelį tarp DAA konteinerių ir KSZ (žr. 2 pav.).

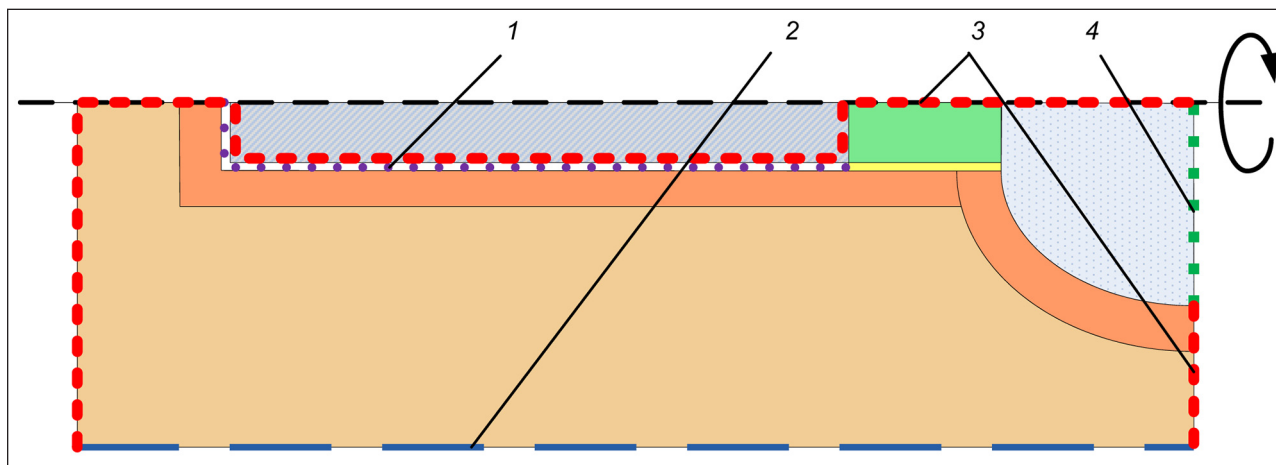
Kadangi DAA konteineriai nėra laidūs fluidams, todėl jiems taikyta 2-os eilės ribinė sąlyga, $Q_{sk} = 0$ ir $Q_d = 0$. 1-os eilės ribinė sąlyga ant išorinės radialinės modelio kraštinės ($P_{sk} = \text{const} = 5$ MPa) užtikrina požeminio vandens pašalinimą ar pritekėjimą į modeliuojamą sistemą. Transportavimo tunelio išorinėje riboje taikoma 3-ios eilės ribinė sąlyga ($Q_d = f(P_d, S_d, t)$), leidžianti dujų pašalinimą iš modeliuojamos sistemos.

Inžineriniai barjerai ir geologinė aplinka po atliekyno uždarymo bus nevienodai prisotintos vandeniu dėl jo eksploatacijos metu ventiliuojamų tunelių. Priimama, jog molingosios uolienos ir KSZ bus visiškai prisotintos vandeniu ($S_{sk} = 1$), inžineriniai barjerai (bentonito kamštis ir transportavimo tunelio užpildas) – nevisiškai ($S_{sk} = 0,7$), o inžineriniai tarpeliai – mažai prisotinti vandeniu ($S_{sk} = 0,05$). Iškart po atliekyno uždarymo nevisiškai vandeniu prisotintose medžiagose esantis oras skaitiniame modelyje traktuojamas kaip H₂ dujos.

Kaip jau buvo minėta, skystos fazės slėgis P_{sk} yra aritmetinė dujinės fazės slėgio P_d ir (neigiamo) kapiliarinio slėgio P_{kap} suma. Priimama, kad visiškai vandeniu prisotintose medžiagose $P_{kap} = 0 \rightarrow P_{sk} = P_d = 5$ MPa (hidrostatinis slėgis). Iš dalies vandeniu prisotintose medžiagose laikoma, kad $P_d = 0,1$ MPa, P_{kap} nustatomas iš *Van Genuchten* priklausomybės esant konkrečiam S_{sk} , o P_{sk} randamas pagal (5) formulę.

Lentelė. Medžiagų charakteristikos [7]

Medžiaga Parametras	Tarpelis tarp KSZ ir DAA konteinerių	Tarpelis tarp KSZ ir bentonito	Bentonitas	Transportavimo tunelio užpildas	KSZ	Molingoji uoliena
Poringumo rodiklis φ (%)	100	30	35	40	15	15
Absoliutinis skvarbos koeficientas k (m ²)	$1 \cdot 10^{-12}$	$8 \cdot 10^{-18}$	$1 \cdot 10^{-20}$	$5 \cdot 10^{-17}$	$8 \cdot 10^{-18}$	$8 \cdot 10^{-21}$



2 pav. Analizėje priimtos ribinės sąlygos: 1 – H₂ dujų srauto patekimo į sistemą vieta; 2 – 1-os eilės ribinė sąlyga ($P_{sk} = \text{const}$); 3 – 2-os eilės ribinė sąlyga ($Q_{sk} = 0$ ir $Q_d = 0$); 4 – 3-ios eilės ribinė sąlyga ($Q_d = f(P_d, S_d, t)$)

REZULTATŲ ANALIZĖ

Analizė vykdoma 100 000 metų laikotarpiui po geologinio atliekyno uždarymo. Nors geometrinis modelis yra sąlyginai nesudėtingas (modeliuojama tik labai maža geologinio atliekyno dalis), tačiau dėl vykstančių fizikinių procesų šio uždavinio sprendimas tampa matematiškai sudėtingu ir reikalaujančiu didelių laiko ir kompiuterinės atminties resursų. Konvergencijos problemos matematinėse uždavinio schemose kyla dėl labai skirtingų geologinio atliekyno medžiagų savybių (absolutinio skvarbos koeficiento k , santykinio skvarbos koeficiento $k_{s,\beta}$ ir kapiliarinio slėgio P_{kap} priklausomybių nuo S_{sk} , slenkstinio dujų slėgio $P_{slenkst1}$, poringumo rodiklio ϕ). Skaičiavimus dar sunkina pasikartojantys faziniai virsmai – susiformuojanti / išnykstanti dujų / skystoji fazė.

Standartiškai programinis paketas PETRASIM leidžia analizuoti fluidų slėgio, prisotinimo skysčiu / dujomis kitimą bėgant laikui atskiruose tinkelio elementuose bei fluidų srautus tarp jų. Srautų pernašos analizei per pasirinktus paviršius papildomai sukurtas įrankis kompiuterine programa MATLAB. 3 pav. parodyti taškai, kuriuose nagrinėjama medžiagų prisotinimo dujomis S_d ir slėgių (P_d, P_{sk}) kitimas bėgant laikui.

Prisotinimo dujomis priklausomybės nuo laiko taškuose, kuriuose susiformuoja dujinė fazė, parodytos 3a pav. Jame taip pat pateikta ilgainiui kintanti ribinė sąlyga ant išorinės transportavimo tunelio ribos. Matyti, jog dujomis labiausiai prisotinami taškai $T2$ (inžineriniame tarpelyje tarp DAA konteinerio ir KSZ) ir $T3, T4$ (inžineriniame tarpelyje tarp bentonito kamščio ir KSZ). Prisotinimo dujomis kitimas taškuose $T3$ ir $T4$ yra labai panašus – po ~ 1 metų jie tampa visiškai užpildyti dujomis ($S_d = 1$) ir tai nesikeičia, kol vyksta dujų generacija. Generacijai pasibaigus, šis inžinerinis tarpelis visiškai prisotina vandeniu ($S_{sk} = 1$) per ~ 750 metų laikotarpį. Prisotinimo dujomis kitimas taške $T2$ kitoks – per pirmuosius ~ 10 metų šis inžinerinis tarpelis gerokai užpildomas vandeniu ($S_d = \sim 0,18$) dėl santykinai (palyginti su aplinkinėmis medžiagomis) didesnio k . Dalis dujų ištirsta šiame vandenyje ir difunduoja į geologinę aplinką, o dalis dujų dėl santykinai nedidelio slėgio išstumiamos į inžinerinį tarpelį prie bentonito kamščio. Toliau vykstant dujų generacijai, prisotinimas dujomis taške $T2$ beveik nekinta ~ 900 metų laikotarpiu. Vėliau generuojamų dujų slėgis didėja, o dujų tirpimas vandenyje šio augimo nekompensuoja, todėl vanduo pamažu išstumiamas iš inžinerinio tarpelio prie DAA konteinerio. Praėjus ~ 2300 metų po atliekyno uždarymo šis tarpelis tampa visiškai prisotintas dujomis ir toks išlieka iki baigiasi dujų generacija. Jai pasibaigus tarpelis visiškai prisotinamas vandeniu per ~ 700 metų.

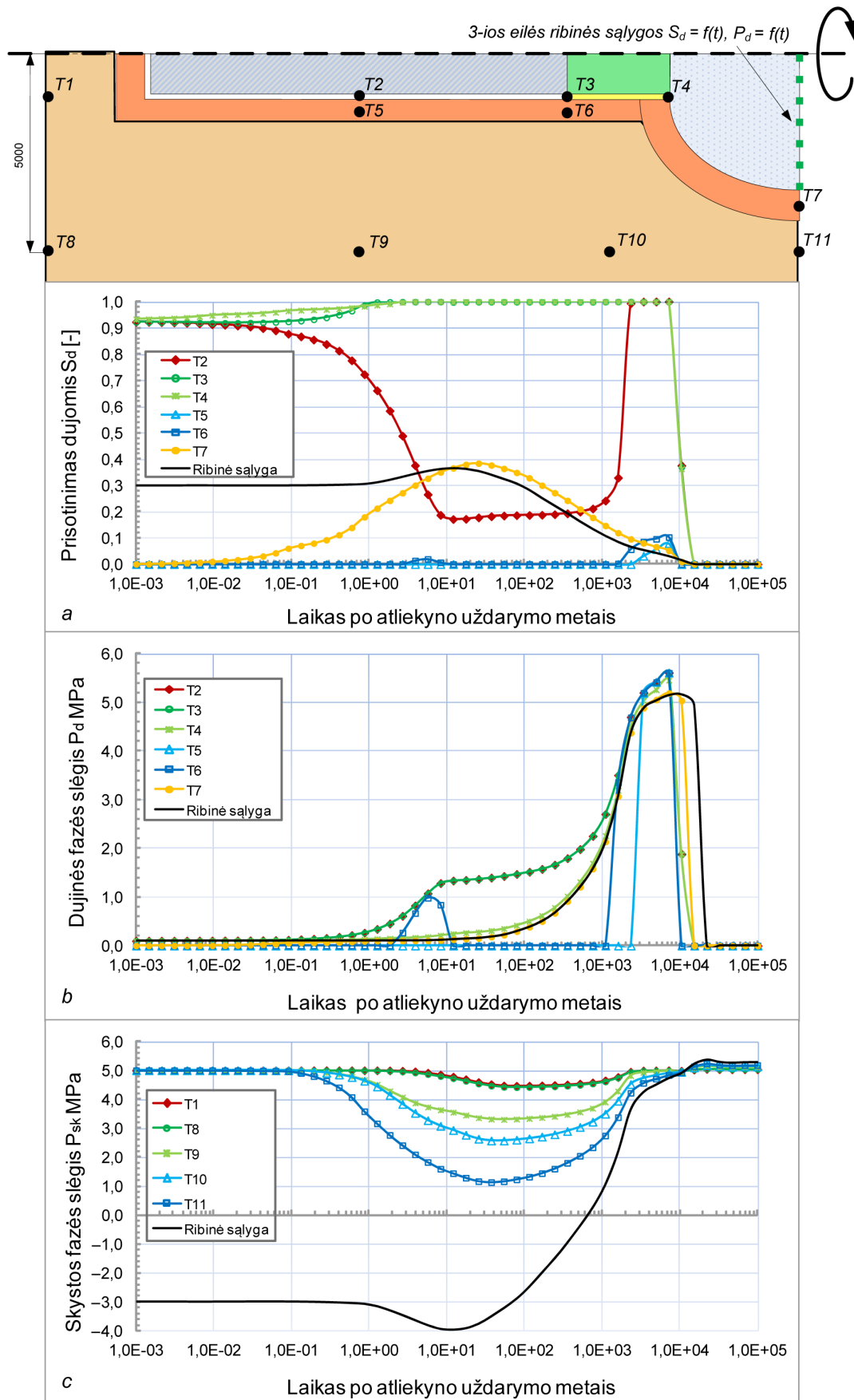
KSZ nuo pradžios yra visiškai prisotinta vandeniu, tačiau bėgant laikui tam tikrose vietose susiformuoja dujinė

fazė ir šioje srityje. Taške $T5$ (talpinimo tunelio KSZ) dujinė fazė atsiranda ~ 2700 – ~ 10200 metų laiko periodu po atliekyno uždarymo. Taške $T6$ (bentonito kamščio KSZ) dujinė fazė atsiranda laiko periodais ~ 3 – ~ 9 ir ~ 1500 – ~ 10200 metų po atliekyno uždarymo. Taške $T7$ (transportavimo tunelio KSZ) prisotinimo dujomis kitimas panašus į bėgant laikui kintančią ribinę sąlygą, taikytą išorinei transportavimo tunelio ribai, tai galima vertinti kaip šios ribinės sąlygos įtaką rezultatams. Dujinė fazė visiškai nesusiformuoja taškuose $T1, T8$ – $T11$ (molingose uolienose). Analizė parodė, kad joje pasklidusios dujos yra tik skystos fazės (ištirpusios H_2 dujos). Praėjus ~ 20000 metų po atliekyno uždarymo, tiriamoji sistema yra visiškai prisotinama vandeniu. Vėliausiai prisotinama transportavimo tunelio užpildo medžiaga.

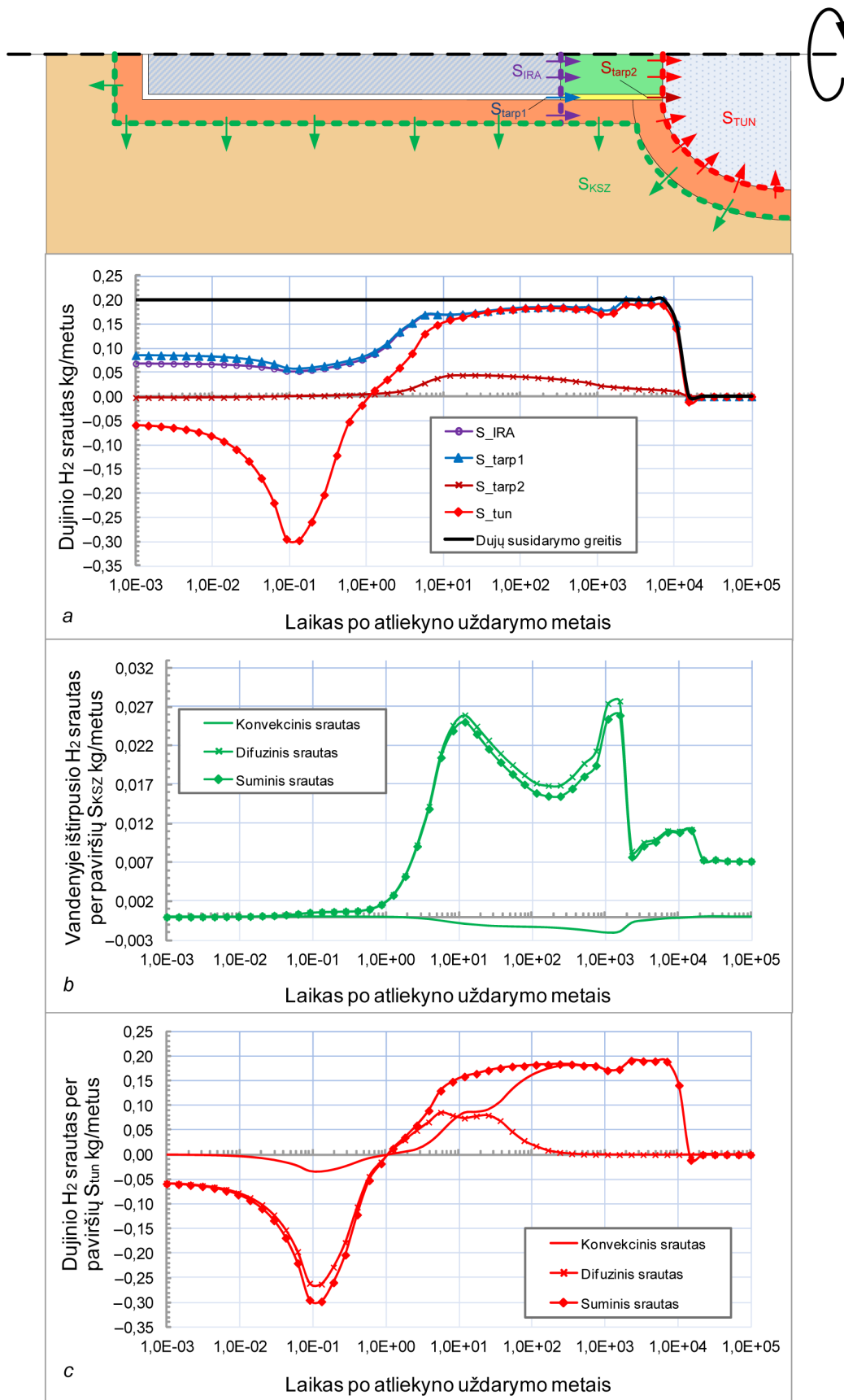
Analizuojant dujinės (H_2 dujų + vandens garų) ir skystos (vandens + vandenyje ištirpusio H_2) fazės slėgių kitimo tendencijas (žr. 3a ir 3b pav.) nustatyta, jog slėgiai abiem atvejais nėra akivaizdžiai didesni už 5 MPa (hidrostatinis slėgis po atliekyno uždarymo). Maksimalūs dujų slėgiai ($\sim 5,8$ MPa) pasiekiami inžineriniuose tarpeliuose ir KSZ (taškuose $T2, T3, T5, T6$). Šie slėgiai neviršija litostatinio slėgio sistemoje (~ 10 MPa), vadinasi, dėl dujų atsiradę viršslėgiai nebus pavojingi inžineriniams barjerams. Taip pat galima teigti, jog 1-asis ir 2-asis dujų pernašos mechanizmai (žr. skyrių „Dujų sklaidos mechanizmai“) yra pakankami apibūdinant dujų elgseną analizuojamu atveju, todėl galima taikyti tradicinį dvifazių srautų pernašos modeliavimui skirtą programinį paketą PETRASIM.

Toliau analizuojama dujinio (angl. *Gaseous Hydrogen*) ir vandenyje ištirpusio (angl. *Dissolved Hydrogen*) H_2 pernaša per pasirinktus paviršius (žr. 4 pav.). Srautai su „+“ ženklu rodo, kad jų tekėjimas vyksta rodyklės kryptimi. Analizuojant dujinio H_2 srauto pernašą (žr. 4a pav.) matyti, kad pradžioje nedidelė dėl korozijos atsirandančių dujų dalis išstumiamas per paviršius S_{tarp1} į tarpelį tarp bentonito kamščio ir KSZ. Dalis atsirandančių dujų ištirsta į inžinerinį tarpelį besiskverbiamame vandenyje ir skystoje fazėje difunduoja į molingąsias uolienas. Vėlesniu laikotarpiu dėl vykstančios dujų generacijos tarpelyje tarp DAA konteinerių ir KSZ slėgis didėja, o tuo pačiu dėl pasiektos tirpumo ribos stabilizuojasi ištirpusio H_2 difuzinė pernaša į KSZ (žr. 4b pav.). Tęsiantis dujų generacijai, šie procesai lemia didėjančią dujinio H_2 srautą per paviršius S_{tarp1} . Laiko periodu ~ 5 – ~ 2000 metų po atliekyno uždarymo per šį paviršius pernešama iki 90 % generuojamų dujų, o likusiu dujų generacijos laikotarpiu net iki 99 % generuojamų dujų. Dujų generacijai pasibaigus, šis srautas mažėja, o po ~ 750 metų išnyksta, kadangi inžineriniai tarpeliai tampa visiškai prisotinti vandeniu.

Kaip matyti 4a pav., paviršius S_{tarp2} yra sudėtinė paviršiaus S_{tarp} dalis, todėl ir srautai per šiuos paviršius yra tarpusavyje susiję. Uždarius atliekyną, dujinis H_2 išstumiamas



3 pav. Parametrų kitimo priklausomybės nuo laiko analizuojamuose taškuose: a – prisotinimo dujomis $S_d = f(t)$, b – dujinės fazės slėgio $P_d = f(t)$, c – skystos fazės slėgio $P_{sk} = f(t)$



4 pav. Srautų pernašos per analizuojamus paviršius kitimo priklausomybės nuo laiko: a – dujinio H₂ pernašos (konvekcinis + difuzinis srautas) per skirtingus paviršius palyginimas, b – konvekcinės ir difuzinės pernašos dujiniam H₂ per paviršių S_{KSZ} palyginimas, c – konvekcinės ir difuzinės pernašos vandenyje ištirpusiam H₂ per paviršių S_{tun} palyginimas

iš transportavimo tunelio link DAA patalpinimo tunelio per paviršių S_{tum} . Tai lemia santykinai mažesnių slėgių zona šalia DAA konteinerių bei transportavimo tunelio prisotinimas vandeniu iš geologinės aplinkos. Po ~1 metų dujinio srauto pernašos kryptis pasikeičia, nes žemo slėgio sritys užpildomos dujomis iš transportavimo tunelio ir dujomis atsirandančiomis dėl korozijos. Po ~20 metų srautas per paviršių S_{tum} savo dydžiu tampa artimas srautui per paviršių S_{tarp1} , o tuo pačiu ir dujų susidarymo greičiui. Taigi, labai didelė dalis susidarančių dujų patenka į inžinerinį tarpelį tarp bentonito ir KSZ per paviršių S_{tarp1} , tačiau tik nedidelė dalis šių dujų į transportavimo tunelį patenka per paviršių S_{tarp2} . Tai reiškia, jog šios dujos į transportavimo tunelį patenka per KSZ. Pasibaigus dujų generacijai, dujinis srautas per paviršių S_{tum} priklauso nuo ribinės uždavinio sąlygos transportavimo tunelio pakraštyje.

Apibendrinant galima pasakyti, jog iki 90 % susidarančio H_2 pernešamas konvekcinio srautu dujinėje fazėje, o pernaša difuzijos būdu šiek tiek akivaizdesnė tik pirmaisiais šimtmečiais po atliekyno uždarymo (žr. 4c pav.). Tačiau difuzinis pernašos mechanizmas yra dominuojantis vandenyje ištirpusiam H_2 , todėl jis paplinta gerokai plačiau (nei dujinis H_2) pasiekdamas ir molingąsias uolienas.

IŠVADOS

Ivykdžius skaitinį dujų sklaidos vertinimą viename DAA talpinimo tunelyje geologiniame atliekyno molingose uolienose buvo nustatyta, kad:

1. Difuzinės vandenyje ištirpusių dujų ir klampios-kapiliarinės dvifazio srauto pernašos mechanizmai yra pakankami apibūdinant dujų elgseną analizuojamu atveju, todėl galima taikyti tradicinį dvifazių srautų pernašos modeliavimui skirtą programinį paketą PETRASIM.

2. Maksimalūs slėgiai (~5,8 MPa), nustatyti inžineriniuose tarpeliuose ir kasimo sutrikdytoje zonoje, neviršija litostatinio (~10 MPa) slėgio sistemoje, todėl yra nepakankami, kad pažeistų mechaninį inžinerinių barjerų sistemos stabilumą.

3. Iki 90 % susidarančio dujinio vandenilio pernešama konvekcinio srautu nuo patalpinimo tunelio link transportavimo tunelio inžineriniais tarpeliais ir kasimo sutrikdytą zona, o ~10 % ištirpsta vandenyje ir difuzijos būdu pernešama į molingąsias uolienas.

Žymėjimai

k – absoliutinis skvarbos koeficientas m^2 ;

P_d – dujinės fazės slėgis MPa;

P_{kap} – kapiliarinis slėgis MPa;

P_{sk} – skystosios fazės slėgis MPa;

S_d – medžiagos prisotinimas dujomis;

S_{sk} – medžiagos prisotinimas vandeniu;

Q_d – dujinės fazės srautas kg/s;

Q_{sk} – skystosios fazės srautas kg/s;

ϕ – poringumo rodiklis %.

Santrumpos

DAA – didelio aktyvumo atliekos;

H_2 – vandenilio dujos;

KSZ – kasimo sutrikdyta zona.

Gauta 2012 04 02

Priimta 2012 06 25

Literatūra

1. Manai T. EVEGAS – European Validation Exercise of GAS Migration Model through Geological Media. *Final Report*. Luxembourg: European Commission, 1997. 49 p.
2. Ortiz L., Volckaert G., De Canniere P., Put M., Sen M. A., Horseman S. T., Harrington J. F., Impey M., Einchcomb S. MEGAS: Modelling and Experiments on GAS Migration in Repository Host Rocks. *Final Report*. Luxembourg: European Commission, 1997. 445 p.
3. Haijink B., Rodwell W. Project on the Effects of GAS in Underground Storage Facilities for Radioactive Waste (Pegasus Project). *Final Report*. Luxembourg: European Commission, 1998. 247 p.
4. Rodwell W., Norris S., Cool W., Cunado M., Johnson L., Mäntynen M., Mülle W., Sellin P., Snellman M., Talandier J., Vieno T., Vines S. A Thematic Network on Gas Issues in Safety Assessment of Deep Repositories for Radioactive Waste (GASNET). *Final Report*. Luxembourg: European Commission, 2003. 49 p.
5. Sneyers A. Understanding and Physical and Numerical Modelling of the Key Processes in the Near Field and their Coupling for Different Host Rocks and Repository Strategies (NF-PRO). *Final Report*. Luxembourg: European Commission, 2008. 217 p.
6. Dymitrovska M., Genty A., Lukin D., Navaro M., Weetjens E. PA Approach to Gas Migration. *PAMINA (Performance Assessment Methodologies in Application to Guide the Development of the Safety Case) Deliverable Report D3.2.1*. Luxembourg: European Commission, 2009. 74 p.
7. Wending J. Draft Report on Definition of Benchmark Studies on Repository-scale Numerical Simulations of Gas. *FORGE Deliverable Report D1.1*. Luxembourg: European Commission, 2009. 19 p.
8. Lemy F., Nys V., Yu L., Weetjens E., Koskinen K., Plas F., Wendling J., Caro F., Laucoin E., Dymitrovska M., Pellegrini D., Justinavicius D., Poskas P., Sellin P., Altorfer F., Johnson L., Norris S. Summary of Gas Generation and

- Migration. Current State-of-the-art. *FORGE (Fate Of Repository Gases) Milestone M15*. Luxembourg: European Commission, 2010. 183 p.
9. Johnson L. H. Gas Production and Transport in the Near Field of SF and HLW Repositories in Clay and Crystalline Rocks: Processes, Uncertainties and Performance Assessment Aspects. *NF-PRO Deliverable Report D5.1.6*. Luxembourg: European Commission, 2006.
 10. King F. Overview of a Carbon Steel Container Corrosion Model for a Deep Geological Repository in Sedimentary Rock. *NWMO Technical Report TR-2007-01*. Toronto, Canada: NWMO, 2007. 71 p.
 11. Rodwell W., Harris A., Horseman S., Lalieux P., Müller W., Ortiz L., Pruess K., Gas Migration and Two-Phase Flow through Engineered and Geological Barriers for a Deep Repository for Radioactive Waste. *Report*. Luxembourg: European Commission, 1999. 429 p.
 12. Justinavičius D., Poškas P. Termo-hidro-mechaninių procesų panaudoto branduolinio kuro giluminiame kapinyne modeliavimas. *Energetika*. 2011. T. 57. Nr. 3. P. 172–180.
 13. Dobkevičius M. *Hidrogeodinamika*. Vilnius: Enciklopedija, 2001.
 14. Mallants D., Jacques D. Performance Assessment for Deep Disposal of Low and Intermediate Level Short-lived Radioactive Waste in Boom Clay. *SCK•CEN Report R-3793*. Mol, Belgium: SCK•CEN, 2004.
 15. Effects of Post-disposal Gas Generation in a Repository for Low- and Intermediate-level Waste Sited in the Opalinus Clay of Northern Switzerland. *NAGRA Technical Report NTB-08-07*. Wettingen, Switzerland: NAGRA, 2008. 138 p.
 16. Pruess K., Oldenburg C., Moridis G. *TOUGH2 Users' Guide, Version 2.0*. Berkeley, California: Lawrence Berkeley National Laboratory, 1999. 198 p.
 17. Marshall P., Horsemann S., Gimmi T. Characterization of gas transport properties of the Opalinus clay, a potential host rock formation for radioactive waste disposal. *Oil & Gas Science and Technology*. 2005. Vol. 60. P. 121–139.
 18. Treille E., Wendling J., Plas F. Simulation of gas migration at the scale of a disposal cell in the context of high-level and long-lived radwaste disposal in a deep clay formation during the operational phase. *Proceedings of Tough Symposium 2009, September 14–16, 2009, Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California*.
 19. Enssle C. P., Croise J., Poller A., Mayer G., Wending J. Full scale 3D-modelling of the coupled gas migration and the heat dissipation in a planned repository for radioactive waste in the Callovo-Oxfordian clay. *Physics and Chemistry of the Earth*. 2012. Vol. 36. P. 1754–1769.

Darius Justinavičius, Povilas Poškas

GAS MIGRATION MODELING IN THE DISPOSAL CELL OF CONCEPTUAL GEOLOGICAL REPOSITORY FOR HIGH-LEVEL RADIOACTIVE WASTE

Summary

Spent nuclear fuel and other long-lived high-level radioactive waste are not allowed to be disposed of in near-surface repositories due to hazards to humans and the environment that result from intensive ionizing radiation emitted by radionuclides contained in this waste. At present, an international opinion prevails that this waste should be disposed of in repositories, situated in the depths of the earth (at a depth of 500–1 000 m), and its long-term safety shall be ensured by a multi-barrier protection system, composed of engineered and natural barriers complementing one another.

Due to corrosion of packages (containers) of radioactive steel waste and the elements of metal constructions, generated gas may cause potential hazard to long-term safety of the geological repository. Currently, experimental and numerical analyses are being performed in order to investigate behaviour of gas under the conditions of the geological repository (generation rate, possible and prevailing mechanisms of gas migration and numerical values of parameters, determining the migration in engineered and geological structures).

In the paper the potential sources of gas generation and the mechanisms of gas migration (after radioactive waste disposal into the geological repository) are reviewed. The task is formulated, gas migration assessment methodology is introduced, and the results of numerical gas migration modelling in single disposal cell for high-level radioactive waste in clay formation are presented. Modelling has been performed by the computer program PETRASIM (USA). The results have revealed that the major part of the generated gas is transferred toward the transportation tunnel by advection. Gas dissolution in the groundwater and diffusive transport into clay formation are second order processes.

Key words: gas transport, numerical modelling, high-level long-lived radioactive waste, geological repository, clay rock

Дарюс Юстинавичус, Повилас Пошкас

МОДЕЛИРОВАНИЕ МИГРАЦИИ ГАЗОВ В ТУННЕЛЕ КОНЦЕПТУАЛЬНОГО ГЕОЛОГИЧЕСКОГО МОГИЛЬНИКА ВЫСОКОАКТИВНЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

Резюме

Отработанное ядерное топливо и долгоживущие высокоактивные отходы нельзя размещать в могильниках, оборудованных на поверхности земли, из-за опасности для человека и окружа-

ющей среды вследствие действия интенсивного ионизирующего излучения радионуклидов, находящихся в данных отходах. В настоящее время преобладает международное мнение, что такие отходы должны помещаться в могильники, оборудованные в недрах земли (на глубине 500–1 000 м), а их долгосрочную безопасность должна обеспечить многобарьерная система защиты, состоящая из дополняющих друг друга инженерных и естественных барьеров.

Газ, образующийся вследствие коррозии стальных упаковок радиоактивных отходов (контейнеров) и элементов металлических конструкций, может представлять потенциальную опасность для долгосрочной безопасности геологического могильника. На данный момент проводятся экспериментальные и численные исследования с целью анализа поведения газа в условиях геологического могильника (скорость образования, возможные и преобладающие механизмы миграции, численные значения параметров, вызывающих миграцию в инженерных и геологических структурах).

В статье рассматриваются потенциальные источники образования газа и механизмы миграции данного газа при помещении радиоактивных отходов в геологический могильник. Формулируется задача, проводится ознакомление с методикой оценки диффузии газа и представляются результаты численного анализа миграции газа одного туннеля для размещения высокоактивных радиоактивных отходов в глинистой среде. Оценка выполнена при помощи компьютерной программы PETRASIM (США). Результаты показали, что большая часть газа, образовавшегося в туннеле для размещения, посредством конвекции переносится в направлении транспортного туннеля. Растворение газа в грунтовых водах и диффузия в глинистую среду являются менее важными процессами.

Ключевые слова: миграция газов, численное моделирование, долгоживущие высокоактивные радиоактивные отходы, геологический могильник, глинистые породы