

# ДИНАМИКА КОНЦЕНТРАЦИИ ГАЗОБРАЗНЫХ РАДИОНУКЛИДОВ $^{14}\text{CO}_2$ И $^{14}\text{CH}_4$ , ВЫДЕЛЯЮЩИХСЯ НАД МЕСТОМ ЗАХОРОНЕНИЯ ЭКСПЛУАТАЦИОННЫХ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ НА АТОМНЫХ ЭЛЕКТРОСТАНЦИЯХ

Гарелина С.А.<sup>1</sup>, Григорян Г.Б.<sup>2</sup>, Захарян Р.А.<sup>1,3</sup>, Седракян А.М.<sup>4</sup>

<sup>1</sup> ФГБВОУ ВО «Академия гражданской защиты МЧС России»

141435, Московская обл., г. Химки, мкр. Новогорск, ул. Соколовская, стр. 1А

<sup>2</sup> Международный университет «Евразия»

Армения, 0014 Ереван, пр. Азатутюн, 24/2

<sup>3</sup> ФГБУ ВНИИ ГОЧС (ФЦ)

121352, Москва, ул. Давыдовская, 7

<sup>4</sup> Национальный политехнический университет

Армения, 0009, Ереван, ул. Терян, 105



Приповерхностные хранилища эксплуатационных радиоактивных отходов на атомных электростанциях содержат отходы низкого и среднего уровня активности, которые состоят, в основном, из органических материалов, в том числе достаточно большого количества целлюлозы. В такого рода хранилищах могут образовываться значительные количества газов, таких как  $^{14}\text{CO}_2$  и  $^{14}\text{CH}_4$ , в результате микробного разложения целлюлозы и коррозии металла. Высвобожденные радиоактивные газы могут выделяться из хранилища путем газодиффузии через заполненное воздухом поровое пространство отходов, материал засыпки и крышку затвора.

Представлено обсуждение микробной и химической деградации целлюлозы. Для газовыделения предполагается, что полное превращение целлюлозных отходов в газы под действием микробов в принципе допустимо. С учетом двух основных механизмов газообразования (коррозия железа и микробная деградация целлюлозы) получены аналитические выражения для расчета атмосферной концентрации газообразного радионуклида в зоне над местом захоронения отходов и общей дозы от вдыхания выделяющихся газов  $^{14}\text{CO}_2$  и  $^{14}\text{CH}_4$ .

На основании разработанной математической модели процесса выделения из хранилища газообразных радионуклидов и ее реализации с помощью программы AMBER выполнены расчеты годовой индивидуальной дозы от вдыхания  $^{14}\text{CO}_2$  и  $^{14}\text{CH}_4$ , кото-

рые будут выделяться из приповерхностного хранилища Армянской АЭС после ее закрытия в зоне этого хранилища.

Показано, что эксплуатационные неразделенные предварительно уплотненные твердые радиоактивные отходы АЭС, содержащие целлюлозу, железо и другие разлагающиеся и газообразующие материалы, могут быть утилизированы в безопасных условиях.

Таким образом, в работе была проведена оценка потенциального воздействия образования, накопления и миграции газа, содержащего радионуклиды, в результате микробной и химической деградации целлюлозы, входящей в состав радиоактивных отходов в приповерхностных хранилищах на атомных электростанциях на долгосрочную перспективу их хранения.

**Ключевые слова:** радиационная безопасность хранилищ на АЭС, безопасность АЭС, оценка радиационной безопасности АЭС, безопасность АЭС после закрытия, безопасность Армянской АЭС.

**Для цитирования:** Гарелина С.А., Григорян Г.Б., Захарян Р.А., Седракян А.М. Динамика концентрации газообразных радионуклидов  $^{14}\text{CO}_2$  и  $^{14}\text{CH}_4$ , выделяющихся над местом захоронения эксплуатационных радиоактивных отходов на атомных электростанциях. // Известия вузов. Ядерная энергетика. – 2024. – № 1. – С. 107 – 118. DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.1.09>

## ВВЕДЕНИЕ

Согласно национальному докладу РФ [1], среднегодовое образование твердых радиоактивных отходов (ТРО) в России составляет около 1,2 млн. м<sup>3</sup>, жидких – 1,9 млн. м<sup>3</sup>. При нормальной эксплуатации АЭС в год на каждый 1 ГВт образуется 200–400 м<sup>3</sup> ТРО, при этом основную долю (98%) общего объема этих отходов составляют низкоактивные отходы (НАО) [2]. На рисунке 1 представлены три потока эксплуатационных ТРО.

На основании ФЗ № 190-ФЗ [3] Росатом принял решение об обязательном захоронении практически всех радиоактивных отходов (РАО). Согласно [4, 5], в настоящее время в мире не существует научно-обоснованного безопасного и приемлемого способа захоронения РАО.

Захоронения НАО и среднеактивных отходов (САО) в подземной среде – наиболее распространенный метод многих стран. В России САО и НАО, относящиеся к третьему



Рис. 1. Эксплуатационные ТРО

и четвертому классам, подлежат захоронению в приповерхностных хранилищах, соответственно размещаемых на глубине до 100 м и на одном уровне с поверхностью земли [6]. Такие захоронения по сравнению с глубокими подземными сооружениями более просты в реализации и экономичны. Стоит отметить, что в настоящее время только шесть стран содержат смешанные (среднего и низкого уровней активности) отходы в геологических хранилищах [7 – 12].

Хорошо известно, что количество отходов из года в год увеличивается. На большинстве АЭС хранилища ТРО заполнены на 60 – 85% [13], что усугубляет проблему их радиационной безопасности.

Согласно [2], от 40 до 80% объема ТРО составляют органические материалы. РАО низкого и среднего уровня активности, как правило, состоят из ионообменных смол, фильтров, углеродистой стали, достаточного количества целлюлозного материала [14 – 15]. Сортировка таких отходов сложна, дорога и опасна. Целлюлоза определена наиболее значимым газообразующим компонентом органических отходов [16 – 18]. Коррозия металлов и микробная деградация органических отходов могут привести к выделению ряда газов (особенно газов, содержащих  $^{14}\text{C}$ ), в результате чего радионуклиды могут мигрировать через искусственные барьеры и легко попадать в окружающую среду.

В работе изучены образование и выброс радионуклида  $^{14}\text{C}$ , выделяемого в виде  $^{14}\text{CO}_2$  и  $^{14}\text{CH}_4$  из органических ядерных отходов путем их радиолитического, химического или микробного разложения [19]. Образующиеся радионуклиды могут выделяться из хранилища путем газодиффузии через заполненное воздухом поровое пространство отходов, материал засыпки и крышку затвора.

Таким образом, оценка безопасности приповерхностных хранилищ особенно после закрытия АЭС требует детального понимания процесса образования и транспортировки газа в системе захоронения.

## ТЕОРИЯ ВОПРОСА

Доказано, что наиболее важными механизмами являются, во-первых, коррозия (в частности, бескислородная коррозия) железа и его сплавов; во-вторых, микробная деградация (особенно анаэробная микробная деградация) целлюлозы. Ряд исследований показывает, что скорость образования газа при радиоллизе не так значительна по сравнению со скоростью, ожидаемой от бескислородной коррозии и анаэробной микробной деградации [20]. Образование газа зависит от условий внутри хранилища, в частности, от остаточного содержания воды в отходах во время размещения и притока воды из окружающего пласта. Ряд лабораторных исследований газообразования показал, что содержание воды в хранилище оказывает прямое влияние на скорость газообразования [21].

Таким образом, при анализе безопасности приповерхностных захоронений РАО средней и низкой активности необходимо учитывать следующие два основных механизма газообразования:

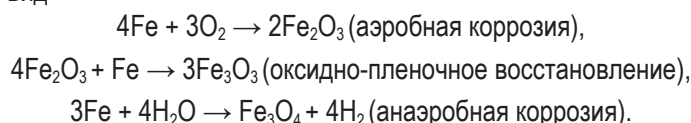
- коррозия металлов (железо);
- микробная деградация (целлюлоза, древесина, ткани, резина).

Как упоминалось ранее, коррозия металлов в хранилище может привести к образованию значительного количества газа. Количество производимого газа сильно зависит от двух основных факторов:

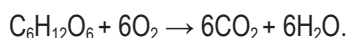
- количества воды, присутствующей в отходах во время размещения, и поступающей в хранилище после закрытия;

- количества присутствующих корродирующих металлов в отходах.

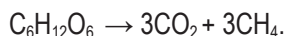
В хранилище могут возникать два механизма коррозии: кислородная коррозия и бескислородная коррозия. Кислородная коррозия коррозионно-активных металлов будет потреблять изначально присутствующий в хранилище кислород, а после его истощения будет преобладать бескислородная коррозия этих материалов. Это приведет к образованию водорода и потреблению воды [20]. Химические реакции процесса коррозии металлов железа имеют вид



Ожидается, что основным источником образования микробиологического газа в САО и НАО будет разложение целлюлозных материалов, таких как бумага, древесина и ткани. Микробная деградация может происходить как в аэробных, так и в анаэробных условиях. Общая реакция аэробной деградации целлюлозы выглядит следующим образом:



После истощения кислорода в хранилище начнется анаэробная микробиологическая деградация. С точки зрения газо- и водосодержания хранилища анаэробная микробная деградация будет гораздо интенсивнее аэробной, так как нитрат- и сульфат-ионов и углекислого газа будет намного больше, чем кислорода [20]. В предположении влажных условий анаэробная микробная деградация определяется следующей реакцией:



Математическое моделирование процесса выделения из хранилища газообразных радионуклидов путем газодиффузии выполнено на основании следующих допущений:

- газообразные радионуклиды полностью и немедленно выбрасываются в поровое пространство и теряются только в результате радиоактивного распада;
- потери в результате радиоактивного распада будут медленными по сравнению с изменениями концентрации в крышке затвора;
- концентрация газа на границе крышка-воздух близка к нулю, что позволяет максимизировать градиент концентрации и плотность потока;
- на границе воздух-крышка концентрация равна концентрации отработанного порового газа.

Математическое моделирование выполнено на основании системы уравнений: уравнение одномерной диффузии с затуханием

$$\frac{\partial C_g(z,t)}{\partial t} = D_e \frac{\partial^2 C_g(z,t)}{\partial z^2} - \lambda C_g(z,t), \quad (1)$$

граничные условия

$$C_g(0, t) = C_g(0, 0)e^{-\lambda t}, \quad (2)$$

$$C_g(d, 0) = 0, \quad (3)$$

где  $C_g(z, t)$  – концентрация радионуклида в поровом газе радионуклида ( $\text{Бк}/\text{м}^3$ );  $D_e$  – эффективный коэффициент газовой диффузии радионуклида в пористой среде ( $\text{м}^2/\text{год}$ );  $\lambda$  – скорость распада радионуклида ( $1/\text{год}$ );  $C_g(0, 0)$  – начальная концентрация порового газа в отходах радионуклида ( $\text{Бк}/\text{м}^3$ );  $C_g(d, 0)$  – концентрация порового газа на границе крышка-воздух ( $z = d$ ) ( $\text{Бк}/\text{м}^3$ );  $t$  – время, прошедшее с момента закрытия АЭС (год).

Частное решение системы уравнений (1)–(3) (для устойчивого состояния) с вышеуказанными граничными условиями имеет вид

$$C_g(z,t) = C_g(0,0)e^{-\lambda t} \frac{\sinh\left((d-z)\sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right)}{\sinh\left(d\sqrt{\frac{\lambda}{D_e}}\right)}. \quad (4)$$

При условии стационарного перемешивания в зоне над хранилищем концентрация газообразного радионуклида определяется по формуле

$$C_{atm}(t) = \frac{J(d,t)\sqrt{S}}{HU}, \quad (5)$$

где  $J(d, t)$  – плотность потока газа (Бк/(м<sup>2</sup>с));  $S$  – площадь хранилища (м<sup>2</sup>);  $C_{atm}(t)$  – атмосферная концентрация газообразного радионуклида в момент времени  $t$  (Бк/м<sup>3</sup>);  $H$  – высота зоны смешения (м);  $U$  – среднегодовая абсолютная скорость ветра (м/с).

Коэффициенты диффузии в воздухе следует преобразовать в эффективный коэффициент диффузии для использования в пористой среде. Эффективный коэффициент диффузии в пористой среде можно оценить как

$$D_e = D_\alpha \frac{\theta_\alpha^{10/3}}{\theta}, \quad (6)$$

где  $D_e$  – эффективный коэффициент газовой диффузии радионуклида в пористой среде (м<sup>2</sup>/год);  $D_\alpha$  – коэффициент газодиффузии радионуклида в воздухе (м<sup>2</sup>/год);  $\theta_\alpha$  – пористость пористой среды, заполненной воздухом;  $\theta$  – общая пористость пористой среды.

## ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Газы <sup>14</sup>CH<sub>4</sub> и <sup>14</sup>CO<sub>2</sub> представляют наибольший интерес для оценки радиологической безопасности после закрытия АЭС. Поскольку учитываются только газообразные радиоактивные продукты, в зоне хранилища общая доза дается, в основном, при вдыхании следующим образом [22]:

$$D_{inh} = C_{air} T_{out} B_{air} D C_{inh}, \quad (7)$$

где  $C_{air}$  – загрязнение воздуха (Бк/м<sup>3</sup>);  $T_{out}$  – время нахождения человека в радиоактивной газовой среде (ч/год);  $B_{air}$  – средняя частота дыхания человека (м<sup>3</sup>/ч);  $D C_{inh}$  – коэффициент дозы для ингаляции (Зв/Бк).

Расчеты дозы облучения в зоне хранилища для сценария эволюции хранилища Армянской АЭС выполнены на основании данных, заимствованных из [22–23]. Радиоактивные отходы состоят из стальных пластин, бумаги и тканей. Их масса составляет 4800 кг, загрязнение <sup>14</sup>C около  $2,5 \times 10^6$  Бк на упаковку отходов. Вещественный состав радиоактивных отходов приведен в табл. 1.

Расчеты выполнены с использованием компьютерной программы AMBER, позволяющей определять дозы облучения. При этом вся геосфера места нахождения хранилища разделяется на отдельные геоучастки, между которыми происходит перемещение радионуклидов диффузионным или потоковым образом. Особенность применения AMBER состоит в том, что можно выполнять статистические расчеты. Это становится важным при вводе физических параметров геоучастков, которые задаются не конкретными значениями этих параметров, а определенными интервалами значений.

Таблица 1

**Вещественный состав радиоактивных отходов**

Тип материала	Процентное содержание, (%)
Пластик	10
Ткани	10
Металлы (90% Fe)	70
Бумага	10

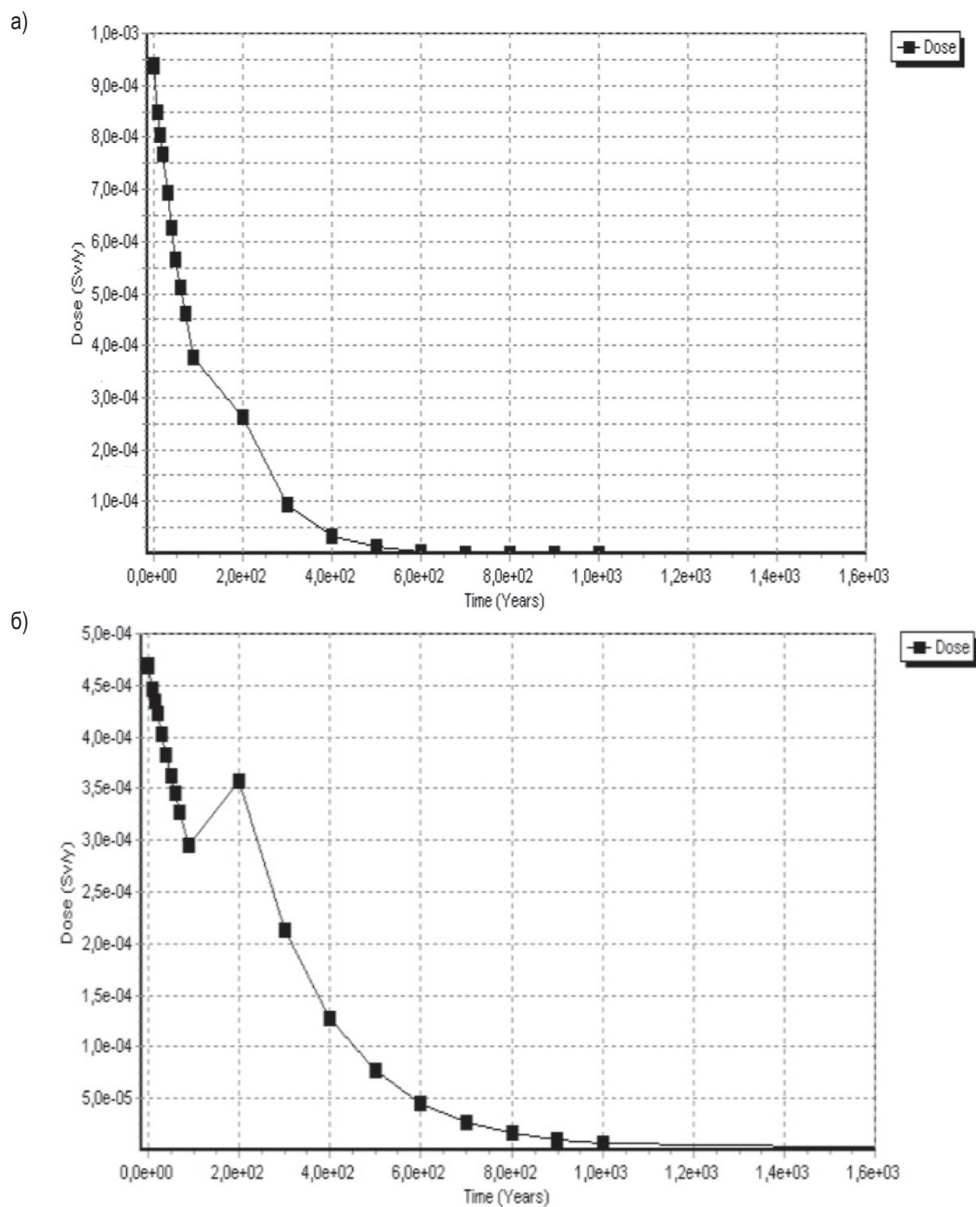


Рис. 2. Годовые индивидуальные дозы от вдыхания выделяющихся газов  $^{14}\text{CO}_2$  и  $^{14}\text{CH}_4$  из хранилища после закрытия Армянской АЭС в зоне хранилища: а) расчет выполнен для вещественного состава РАО, представленного в табл. 1; б) расчет выполнен для вещественного состава РАО, содержащего в два раза больше пластиковых и органических материалов

На рисунке 2а показаны годовые индивидуальные дозы от вдыхания выделяющихся газов  $^{14}\text{CO}_2$  и  $^{14}\text{CH}_4$  из хранилища после закрытия Армянской АЭС. Примерно через 200 лет, когда начинается интенсивная деградация неметаллической части радиоактивных отходов, которые максимально содержат радионуклид  $^{14}\text{C}$ , доза составляет  $2.5 \times 10^{-4}$  Зв/год. В дальнейшем доза уменьшается настолько, что она практически не может влиять на здоровье человека.

На рисунке 2б представлены результаты расчета годовых индивидуальных доз от вдыхания выделяющихся газов  $^{14}\text{CO}_2$  и  $^{14}\text{CH}_4$  из хранилища при увеличении в два раза содержания пластиковых и органических материалов в отходах, которые максимально содержат радионуклид  $^{14}\text{C}$ . Из рисунка 2б видно, что появляется ярко выраженный пик примерно через 200 лет, после чего доза поглощения уменьшается более медленно (см. рис. 2а).

Таким образом, высокое значение органической части радиоактивных отходов приводит к более медленному уменьшению дозы. Доза получает наименьшее значение через 1000 лет (см. рис. 2б), в том случае, когда это значение на рис. 2а получается через 600 лет.

Рекомендуемый Международной комиссией по радиологической защите предел дозы составляет около 1 мЗв/год, и тогда требования безопасности для приповерхностного хранилища РАО в зоне хранилища могут быть в норме критериев дозы или критериев риска или их сочетания.

В работе выполнена оценка образования опасных газов, содержащих радионуклиды, в результате биоразложения и коррозии металлов приповерхностного хранилища Армянской АЭС после ее закрытия. Расчетная максимальная годовая индивидуальная доза для члена критической группы составляет  $9,5 \times 10^{-4}$  Зв/год. Результаты оценки безопасности показали, что неразделенные предварительно уплотненные твердые отходы, содержащие целлюлозу, железо и другие разлагающиеся и газообразующие материалы, могут быть утилизированы в безопасных условиях.

## Литература

1. Четвертый национальный доклад Российской Федерации о выполнении обязательств, вытекающих из объединенной конвенции о безопасности обращения с отработавшим топливом и о безопасности обращения с радиоактивными отходами. – Москва, 2014. – 166 с. Электронный ресурс: <https://rosatom.ru/upload/iblock/6a1/6a10d74afc8b64b31f1c0dae05525ab8.pdf> (дата обращения: 07.04.2023).
2. Ключников А.А., Пазухин Э.М., Шигера Ю.М., Шигера В.Ю. Радиоактивные отходы АЭС и методы обращения с ними. – Изд-во: «Чернобыль», 2006. – 465 с.
3. Федеральный закон от 11.07.2011 № 190-ФЗ (ред. от 21.12.2021) «Об обращении с радиоактивными отходами и о внесении изменений в отдельные законодательные акты Российской Федерации». Электронный ресурс: <https://legalacts.ru/doc/federalnyi-zakon-ot-11072011-n-190-fz-ob/> (дата обращения: 07.04.2023).
4. Логинова С.С. Проблема радиоактивных отходов // Вопросы науки и образования. – 2017. – № 8 (9). Электронный ресурс: <https://cyberleninka.ru/article/n/problema-radioaktivnyh-othodov> (дата обращения: 07.04.2023).
5. Талевлин А., Бодров О., Серветник В., Альбум К., Матвеевкова Д., Лорентзен И. Обращение с радиоактивными отходами и отработавшим ядерным топливом в России: взгляд международной сети. Декомиссия. – Изд.: Сосновый Бор – Мурманск – Челябинск, 2017. – 26 с.
6. Постановление Правительства РФ «О критериях отнесения твердых, жидких и газообразных отходов к радиоактивным отходам, критериях отнесения радиоактивных отходов к особым радиоак-

тивным отходам и к удаляемым радиоактивным отходам и критериях классификации удаляемых радиоактивных отходов». Электронный ресурс: <https://base.garant.ru/70247038/> (дата обращения: 07.04.2023).

7. *Aikas T., Anttila P.* Repositories for low- and intermediate-level radioactive wastes in Finland. // *Reviews in Engineering Geology*. – 2008. – 19. – PP. 67–71. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/291979384\\_Repositories\\_for\\_low-\\_and\\_intermediate-level\\_radioactive\\_wastes\\_in\\_Finland](https://www.researchgate.net/publication/291979384_Repositories_for_low-_and_intermediate-level_radioactive_wastes_in_Finland) (дата обращения: 07.04.2023).

8. *Brewitz W., Droste J., Stier-Friedland G.* Geological features of the Morsleben repository and their relevance for long-term safety. // *Reviews in Engineering Geology*. – 2008. – 19. – PP. 53–66. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/299603305\\_Geological\\_features\\_of\\_the\\_Morsleben\\_repository\\_and\\_their\\_relevance\\_for\\_long-term\\_safety](https://www.researchgate.net/publication/299603305_Geological_features_of_the_Morsleben_repository_and_their_relevance_for_long-term_safety) (дата обращения: 07.04.2023).

9. *Olsson O., Hedman T., Sundman B., Svemar C.* Geological disposal of radioactive waste: experience from operating facilities in Sweden. // *Reviews in Engineering Geology*. – 2008. – 19. – PP. 73–80. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/299603617\\_Geological\\_disposal\\_of\\_radioactive\\_waste-Experience\\_from\\_operating\\_facilities\\_in\\_Sweden](https://www.researchgate.net/publication/299603617_Geological_disposal_of_radioactive_waste-Experience_from_operating_facilities_in_Sweden) (дата обращения: 07.04.2023).

10. *Powers D.W., Holt R.M.* Lessons from early site investigations at the Waste Isolation Pilot Plant. // *Reviews in Engineering Geology*. – 2008. – 19. – PP. 81–95. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/255277185\\_Geoscientific\\_data\\_collection\\_and\\_integration\\_for\\_the\\_Waste\\_Isolation\\_Pilot\\_Plant](https://www.researchgate.net/publication/255277185_Geoscientific_data_collection_and_integration_for_the_Waste_Isolation_Pilot_Plant) (дата обращения: 07.04.2023).

11. *Woller F.* Disposal of radioactive waste in rock caverns: current situation in the Czech Republic. // *Reviews in Engineering Geology*. – 2008. – 19. – PP. 15–23. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/299603616\\_Disposal\\_of\\_radioactive\\_waste\\_in\\_rock\\_caverns\\_Current\\_situation\\_in\\_the\\_Czech\\_Republic](https://www.researchgate.net/publication/299603616_Disposal_of_radioactive_waste_in_rock_caverns_Current_situation_in_the_Czech_Republic) (дата обращения: 07.04.2023).

12. *Choung S., Um W., Choi S., Francis A.J., Kim S., Park J.B.* Biogeochemical changes at early stage after the closure of radioactive waste geological repository in South Korea. // *Annals of Nuclear Energy*. – 2014. – 71. – PP. 6–10. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/261566356\\_Biogeochemical\\_changes\\_at\\_early\\_stage\\_after\\_the\\_closure\\_of\\_radioactive\\_waste\\_geological\\_repository\\_in\\_South\\_Korea](https://www.researchgate.net/publication/261566356_Biogeochemical_changes_at_early_stage_after_the_closure_of_radioactive_waste_geological_repository_in_South_Korea) (дата обращения: 07.04.2023).

13. *Скачек М.А.* Радиоактивные компоненты АЭС: обращение, переработка, локализация. – М.: МЭИ, 2014. – 552 с.

14. *Small J., Nykyri M., Helin M., Hovi U., Sarlin T., Itävaara M.* Experimental and modelling investigations of the biogeochemistry of gas production from low and intermediate level radioactive waste. // *Applied Geochemistry*. – 2008. – 23. – PP. 1383–1418. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/47613988\\_Experimental\\_and\\_modelling\\_investigations\\_of\\_the\\_biogeochemistry\\_of\\_gas\\_production\\_from\\_low\\_and\\_intermediate\\_level\\_radioactive\\_waste](https://www.researchgate.net/publication/47613988_Experimental_and_modelling_investigations_of_the_biogeochemistry_of_gas_production_from_low_and_intermediate_level_radioactive_waste) (дата обращения: 07.04.2023).

15. *Small J.S., Nykyri M., Vikman M., Itävaara M., Heikinheimo L.* The biogeochemistry of gas generation from low-level nuclear waste: modeling after 18 years study under in situ conditions. // *Applied Geochemistry*. – 2017. – 84. PP. 360–372. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/318737625\\_The\\_biogeochemistry\\_of\\_gas\\_generation\\_from\\_low-level\\_nuclear\\_waste\\_Modelling\\_after\\_18\\_years\\_study\\_under\\_in\\_situ\\_conditions](https://www.researchgate.net/publication/318737625_The_biogeochemistry_of_gas_generation_from_low-level_nuclear_waste_Modelling_after_18_years_study_under_in_situ_conditions) (дата обращения: 07.04.2023).

16. *Humphreys P., McGarry R., Hoffmann A., Binks P.* DRINK: a biogeochemical source term model for low level radioactive waste disposal sites. // *FEMS Microbiology Reviews*. – 1997. – 20. – PP. 557–571. Электронный ресурс: <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/9340003/> (дата обращения: 07.04.2023).

17. *Wang Y., Francis A.J.* Evaluation of microbial activity for long-term performance assessments of deep geological nuclear waste repository. // *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*. – 2005. – 6. PP. 3–50. Электронный ресурс: [https://www.jstage.jst.go.jp/article/jnrs2000/6/1/6\\_1\\_43/\\_article](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jnrs2000/6/1/6_1_43/_article) (дата обращения: 07.04.2023).

18. *Baker A.J., Lever D.A., Rees J.H., Thorne M.C., Tweed C.J., Wirramaratna R.S.* Nirex97: an assessment of the post-closure performance of a deep waste repository at Sellafield. Volume 4: The Gas



Pathway. Nirex Science Report/97/012. – UK Nirex Ltd, Harwell, UK. – 1997. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/326191172\\_Nirex\\_97\\_An\\_Assessment\\_of\\_the\\_Post-closure\\_Performance\\_of\\_a\\_Deep\\_Waste\\_Repository\\_at\\_Sellafield\\_Volume\\_1\\_Hydrogeological\\_Conceptual\\_Model\\_Development\\_Conceptual\\_Basis\\_and\\_Data\\_Nirex\\_Science\\_report\\_S97](https://www.researchgate.net/publication/326191172_Nirex_97_An_Assessment_of_the_Post-closure_Performance_of_a_Deep_Waste_Repository_at_Sellafield_Volume_1_Hydrogeological_Conceptual_Model_Development_Conceptual_Basis_and_Data_Nirex_Science_report_S97) (дата обращения: 07.04.2023).

19. Askarieh M.M., Chambers A.V., Daniel F.B.D., FitzGerald P.L., Hotom G.J., Pilkington N.J., Rees J.H. The chemical and microbial degradation of cellulose in the near field of a repository for radioactive wastes // Waste Management. – 2000. – 20. PP. 93 – 106. Электронный ресурс: [https://www.researchgate.net/publication/222523777\\_The\\_chemical\\_and\\_microbial\\_degradation\\_of\\_cellulose\\_in\\_the\\_near\\_field\\_of\\_a\\_repository\\_for\\_radioactive\\_wastes](https://www.researchgate.net/publication/222523777_The_chemical_and_microbial_degradation_of_cellulose_in_the_near_field_of_a_repository_for_radioactive_wastes) (дата обращения: 07.04.2023).

20. Brush L.H., Storz J., Garner J.W. Development of a Gas-Generation Model for the Waste Isolation Pilot Plant. / Materials Research Society symposia proceedings. Materials Research Society. – 1993. – Vol. 333. – PP. 241 – 246. DOI: <https://doi.org/10.1557/PROC-333-241>

21. Kuruc J., Kvitto P. Assessment of Gas Production and Pressure Conditions of Fibre Reinforced Concrete Containers Under Disposal Due to Microbial Degradation and Radiolysis of Cellulose. The Mathematical Model // Acta Facultatis Ecologiae. – 2005. – Vol. 13. – Suppl. 1. – PP. 49 – 58.

22. International atomic energy agency. Derivation of Activity Limits for the Disposal of Radioactive Waste in Near Surface Disposal Facilities.– IAEA-TECDOC-1380, IAEA, Vienna, 2003. – 152 p. Электронный ресурс: <https://www.iaea.org/publications/6932/derivation-of-activity-limits-for-the-disposal-of-radioactive-waste-in-near-surface-disposal-facilities> (дата обращения: 07.04.2023).

23. Grigoryan G., Amirjanyan A., Gondakyan Y., Stepanyan A. Radioactive waste storage facility at the Armenian NPP-12462 // Environmental Science.– 2012. URL: <https://www.semanticscholar.org/paper/Radioactive-Waste-Storage-Facility-at-the-Armenian-Grigoryan-Amirjanyan/9560b346f934a60edd5d51191567d3e3e9614ac7> (дата обращения: 07.04.2023).

Поступила в редакцию 21.09.2023

## Авторы

Гарелина Светлана Александровна, к.т.н., доцент,

E-mail: [rolru@mail.ru](mailto:rolru@mail.ru)

Григорян Гагик Багдасарович, к.ф.-м.н.,

E-mail: [gagikgr23@yahoo.com](mailto:gagikgr23@yahoo.com)

Захарян Роберт Артушевич, к.т.н., доцент, старший научный сотрудник,

E-mail: [razleib@yandex.ru](mailto:razleib@yandex.ru),

Седракян Армен Мхитарович, к.ф.-м.н., доцент,

E-mail: [asedrakyan.phys@gmail.com](mailto:asedrakyan.phys@gmail.com)

UDC 504.054

## Dynamics of the Concentration of Gaseous Radionuclides $^{14}\text{CO}_2$ and $^{14}\text{CH}_4$ Released above the Burial Site of Operational Radioactive Waste at Nuclear Power Plants

Garelina S.A.<sup>1</sup>, Grigoryan G.B.<sup>2</sup>, Zaharyan R.A.<sup>1,3</sup>, Sedrakyan A.M.<sup>4</sup>

<sup>1</sup> Civil Defence Academy EMERCOM of Russia,

1A Sokolovskaya Str., microdistrict Novogorsk, 141435 Khimki, Moscow reg., Russia

<sup>2</sup> Eurasia International University,

24/2 Azatutyun Av., 0014 Yerevan, Armenia

<sup>3</sup> Institute for Civil Defence and Emergencies,

7 Davydkovskaya Str., 121352 Moscow, Russia

<sup>4</sup> National Polytechnic University,

105 Teryan Str., 0009 Yerevan, Armenia

### Abstract

Near-surface storage facilities for operational radioactive waste at Nuclear Power Plants (NPP) contain waste of low and intermediate level radioactivity, which consist mainly of organic materials, including a sufficiently large amount of cellulose. In such storage facilities, significant amounts of gases, such as  $^{14}\text{CO}_2$  and  $^{14}\text{CH}_4$ , can be formed as a result of microbial decomposition of cellulose and metal corrosion. The released radioactive gases can be released from the storage by gas diffusion through the air-filled pore space of the waste, the filling material and the shutter cover, leading to radiation exposure of residents living near the storage.

The article presents a discussion of microbial and chemical degradation of cellulose. For gas release, it is assumed that the complete transformation of cellulose waste into gases under the action of microbes is in principle permissible. Taking into account the two main mechanisms of gas formation (iron corrosion and microbial degradation of cellulose), analytical expressions were obtained for calculating the atmospheric concentration of gaseous radionuclide in the area above the waste disposal site and the total dose from inhalation of the released gases  $^{14}\text{CO}_2$  and  $^{14}\text{CH}_4$ .

Based on the developed mathematical model of the burial system and its implementation with the help of the AMBER program, calculations of the annual individual dose from inhalation of  $^{14}\text{CO}_2$  and  $^{14}\text{CH}_4$ , which will be released from the near-surface storage of the Armenian NPP after its closure, and an assessment of the safety of this storage by inhalation dose per person exposed to maximum exposure above ground, were performed.

It is shown that operational undivided pre-compacted solid radioactive waste of NPP containing cellulose, iron and other decomposing and gas-forming materials can be disposed of in safe conditions.

Thus, the paper assessed the potential impact of the formation, accumulation and migration of gas containing radionuclides as a result of microbial and chemical degradation of cellulose, which is part of radioactive waste in near-surface storage facilities at NPP on their long-term storage.

**Keywords:** radiation safety of nuclear power plant storage facilities, nuclear power plant safety, nuclear power plant radiation safety assessment, safety.

**For citation:** Garelina S.A., Grigoryan G.B., Zaharyan R.A., Sedrakyan A.M. Dynamics of the Concentration of Gaseous Radionuclides  $^{14}\text{CO}_2$  and  $^{14}\text{CH}_4$  Released above the Burial Site of Operational Radioactive Waste at Nuclear Power Plants. *Izvestiya vuzov. Yadernaya Energetika*. 2024, no. 1, pp. 107 – 118; DOI: <https://doi.org/10.26583/npe.2024.1.09> (in Russian).

### References

1. The fourth national report of the Russian Federation on the fulfillment of obligations arising from the Joint Convention on the Safety of Spent Fuel Management and on the Safety of radioactive waste management. – Moscow 2014. – 166 c. Available at: <https://rosatom.ru/upload/iblock/6a1/6a10d74afc8b64b31f1c0dae-05525ab8.pdf> (accessed date Apr. 07, 2023) (in Russian).
2. Klyuchnikov A.A., Pazuhin E.M., Shigera Yu.M., Shigera V.Yu. *Nuclear power plant radioactive waste and methods of handling them*. – Publishing house: «Chernobyl», 2006. – 465 p. (in Russian).
3. Federal Law No. 190-FZ of 11.07.2011 (as amended on 12/21/2021) «On Radioactive Waste Management and on Amendments to Certain Legislative Acts of the Russian Federation». Available at: <https://legalacts.ru/doc/federalnyi-zakon-ot-11072011-n-190-fz-ob/> (accessed date Apr. 07, 2023) (in Russian).
4. Loginova S.S. The problem of radioactive waste. *Voprosy nauki i obrazovaniya*. – 2017. – no. 8 (9). Available at: <https://cyberleninka.ru/article/n/problema-radioaktivnyh-otvodov> (accessed date Apr. 07, 2023) (in Russian).

5. Talevlin A., Bodrov O., Servetnik V., Al'bum K., Matveenkova D., Lorentzen I. *Radioactive waste and spent nuclear fuel management in Russia: a view of the international network. Decommission. Publ.:* Sosnovy Bor – Murmansk – Chelyabinsk, 2017. –26 p. (in Russian).
6. Decree of the Government of the Russian Federation “On the Criteria for Classifying Solid, Liquid and Gaseous Waste as Radioactive Waste, Criteria for Classifying Radioactive Waste as Special Radioactive Waste and as Radioactive Waste to be Disposed Of and Criteria for Classifying Radioactive Waste to be Disposed of”. Available at: <https://base.garant.ru/70247038/> (accessed date Apr. 07, 2023) (in Russian).
7. Aikas T., Anttila P. Repositories for low- and intermediate-level radioactive wastes in Finland. *Reviews in Engineering Geology*. 2008, no. 19, pp. 67–71. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/291979384\\_Repositories\\_for\\_low\\_and\\_intermediate-level\\_radioactive\\_wastes\\_in\\_Finland](https://www.researchgate.net/publication/291979384_Repositories_for_low_and_intermediate-level_radioactive_wastes_in_Finland) (accessed date Apr. 07, 2023).
8. Brewitz W., Droste J., Stier-Friedland G. Geological features of the Morsleben repository and their relevance for long-term safety. *Reviews in Engineering Geology*. 2008, no. 19, pp. 53–66. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/299603305\\_Geological\\_features\\_of\\_the\\_Morsleben\\_repository\\_and\\_their\\_relevance\\_for\\_long-term\\_safety](https://www.researchgate.net/publication/299603305_Geological_features_of_the_Morsleben_repository_and_their_relevance_for_long-term_safety) (accessed date Apr. 07, 2023).
9. Olsson O., Hedman T., Sundman B., Svemar C. Geological disposal of radioactive waste: experience from operating facilities in Sweden. *Reviews in Engineering Geology*. 2008, no. 19, pp. 73–80. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/299603617\\_Geological\\_disposal\\_of\\_radioactive\\_waste-Experience\\_from\\_operating\\_facilities\\_in\\_Sweden](https://www.researchgate.net/publication/299603617_Geological_disposal_of_radioactive_waste-Experience_from_operating_facilities_in_Sweden) (accessed date Apr. 07, 2023).
10. Powers D.W., Holt R.M. Lessons from early site investigations at the Waste Isolation Pilot Plant. *Reviews in Engineering Geology*. 2008, no. 19, pp. 81–95. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/255277185\\_Geoscientific\\_data\\_collection\\_and\\_integration\\_for\\_the\\_Waste\\_Isolation\\_Pilot\\_Plant](https://www.researchgate.net/publication/255277185_Geoscientific_data_collection_and_integration_for_the_Waste_Isolation_Pilot_Plant) (accessed date Apr. 07, 2023).
11. Woller F. Disposal of radioactive waste in rock caverns: current situation in the Czech Republic. *Reviews in Engineering Geology*. 2008, no. 19, pp. 15–23. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/299603616\\_Disposal\\_of\\_radioactive\\_waste\\_in\\_rock\\_caverns\\_Current\\_situation\\_in\\_the\\_Czech\\_Republic](https://www.researchgate.net/publication/299603616_Disposal_of_radioactive_waste_in_rock_caverns_Current_situation_in_the_Czech_Republic) (accessed date Apr. 07, 2023).
12. Choung S., Um W., Choi S., Francis A.J., Kim S., Park J.B. Biogeochemical changes at early stage after the closure of radioactive waste geological repository in South Korea. *Annals of Nuclear Energy*. 2014, no. 71, pp. 6–10. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/261566356\\_Biogeochemical\\_changes\\_at\\_early\\_stage\\_after\\_the\\_closure\\_of\\_radioactive\\_waste\\_geological\\_repository\\_in\\_South\\_Korea](https://www.researchgate.net/publication/261566356_Biogeochemical_changes_at_early_stage_after_the_closure_of_radioactive_waste_geological_repository_in_South_Korea) (accessed date Apr. 07, 2023).
13. Skachek M.A. *Radioactive components of nuclear power plants: handling, processing, localization*. Moscow. MEI Publ., 2014, 552 p.
14. Small J., Nykyri M., Helin M., Hovi U., Sarlin T., Itävaara M. Experimental and modelling investigations of the biogeochemistry of gas production from low and intermediate level radioactive waste. *Applied Geochemistry*. 2008, no. 23, pp. 1383–1418. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/47613988\\_Experimental\\_and\\_modelling\\_investigations\\_of\\_the\\_biogeochemistry\\_of\\_gas\\_production\\_from\\_low\\_and\\_intermediate\\_level\\_radioactive\\_waste](https://www.researchgate.net/publication/47613988_Experimental_and_modelling_investigations_of_the_biogeochemistry_of_gas_production_from_low_and_intermediate_level_radioactive_waste) (accessed date Apr. 07, 2023).
15. Small J.S., Nykyri M., Vikman M., Itävaara M., Heikinheimo L. The biogeochemistry of gas generation from low-level nuclear waste: modeling after 18 years study under in situ conditions. *Applied Geochemistry*. 2017, no. 84, pp. 360–372. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/318737625\\_The\\_biogeochemistry\\_of\\_gas\\_generation\\_from\\_low-level\\_nuclear\\_waste\\_Modelling\\_after\\_18\\_years\\_study\\_under\\_in\\_situ\\_conditions](https://www.researchgate.net/publication/318737625_The_biogeochemistry_of_gas_generation_from_low-level_nuclear_waste_Modelling_after_18_years_study_under_in_situ_conditions) (accessed date Apr. 07, 2023).
16. Humphreys P., McGarry R., Hoffmann A., Binks P. DRINK: a biogeochemical source term model for low level radioactive waste disposal sites. *FEMS Microbiology Reviews*. 1997, no. 20, pp. 557–571. Available at: <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/9340003/> (accessed date Apr. 07, 2023).
17. Wang Y., Francis A.J. Evaluation of microbial activity for long-term performance assessments of deep geological nuclear waste repository. *Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences*. 2005, no. 6,

pp. 3–50. Available at: [https://www.jstage.jst.go.jp/article/jnrs2000/6/1/6\\_1\\_43/\\_article](https://www.jstage.jst.go.jp/article/jnrs2000/6/1/6_1_43/_article) (accessed date Apr. 07, 2023).

18. Baker A.J., Lever D.A., Rees J.H., Thorne M.C., Tweed C.J., Wirramaratna R.S. *Nirex97: an assessment of the post-closure performance of a deep waste repository at Sellafield. Volume 4: The Gas Pathway*. Nirex Science Report/97/012. UK Nirex Ltd, Harwell, UK. –1997. Available at:

[https://www.researchgate.net/publication/326191172\\_Nirex\\_97\\_An\\_Assessment\\_of\\_the\\_Post-closure\\_Performance\\_of\\_a\\_Deep\\_Waste\\_Repository\\_at\\_Sellafield\\_Volume\\_1\\_Hydrogeological\\_Conceptual\\_Model\\_Development\\_Conceptual\\_Basis\\_and\\_Data\\_Nirex\\_Science\\_report\\_S97](https://www.researchgate.net/publication/326191172_Nirex_97_An_Assessment_of_the_Post-closure_Performance_of_a_Deep_Waste_Repository_at_Sellafield_Volume_1_Hydrogeological_Conceptual_Model_Development_Conceptual_Basis_and_Data_Nirex_Science_report_S97) (accessed date Apr. 07, 2023).

19. Askarieh M.M., Chambers A.V., Daniel F.B.D., FitzGerald P.L., Hotom G.J., Pilkington N.J., Rees J.H. The chemical and microbial degradation of cellulose in the near field of a repository for radioactive wastes. *Waste Management*. 2000, no. 20, pp. 93–106. Available at: [https://www.researchgate.net/publication/222523777\\_The\\_chemical\\_and\\_microbial\\_degradation\\_of\\_cellulose\\_in\\_the\\_near\\_field\\_of\\_a\\_repository\\_for\\_radioactive\\_wastes](https://www.researchgate.net/publication/222523777_The_chemical_and_microbial_degradation_of_cellulose_in_the_near_field_of_a_repository_for_radioactive_wastes) (accessed date Apr. 07, 2023).

20. Brush L.H., Storz J., Garner J. W. Development of a Gas-Generation Model for the Waste Isolation Pilot Plant. *Materials Research Society symposia proceedings. Materials Research Society*. 1993, vol. 333, pp. 241 – 246. DOI: <https://doi.org/10.1557/PROC-333-241>

21. Kuruc J., Kvitto P. Assessment of Gas Production and Pressure Conditions of Fibre Reinforced Concrete Containers Under Disposal Due to Microbial Degradation and Radiolysis of Cellulose. The Mathematical Model. *Acta Facultatis Ecologiae*. 2005, vol. 13, suppl. 1, pp. 49 – 58.

22. International atomic energy agency. *Derivation of Activity Limits for the Disposal of Radioactive Waste in Near Surface Disposal Facilities*. IAEA-TECDOC-1380, IAEA, Vienna. – 2003, 152 p. Available at:

<https://www.iaea.org/publications/6932/derivation-of-activity-limits-for-the-disposal-of-radioactive-waste-in-near-surface-disposal-facilities> (accessed date Apr. 07, 2023).

23. Grigoryan G., Amirjanyan A., Gondakyan Y., Stepanyan A. Radioactive waste storage facility at the Armenian NPP-12462. *Environmental Science*. 2012, Available at: <https://www.semanticscholar.org/paper/Radioactive-Waste-Storage-Facility-at-the-Armenian-Grigoryan-Amirjanyan/9560b346f934a60edd5d51191567d3e3e9614ac7> (accessed date Apr. 07, 2023).

### Authors

Svetlana A. Garelina, Ass. Professor, Cand. Sci. (Engineering),

E-mail: [rolru@mail.ru](mailto:rolru@mail.ru)

Gagik B. Grigoryan, Ass. Professor, Cand. Sci. (Phys.-Math.),

E-mail: [gagikgr23@yahoo.com](mailto:gagikgr23@yahoo.com)

Robert A. Zaharyan, Ass. Professor, Cand. Sci. (Engineering),

E-mail: [razleib@yandex.ru](mailto:razleib@yandex.ru)

Armen M. Sedrakyan, Ass. Professor, Cand. Sci. (Phys.-Math.),

E-mail: [asedrakyan.phys@gmail.com](mailto:asedrakyan.phys@gmail.com)