МОДЕЛИРОВАНИЕ ДИФФУЗИИ РАДИОНУКЛИДОВ ИЗ ПРИПОВЕРХНОСТНЫХ ХРАНИЛИЩ ЖИДКИХ РАО

Р.Б. Шарафутдинов, О.Н. Ушанова, В.И. Корж (НТЦ ЯРБ)

На территории предприятий ядерного топливного цикла сооружены и эксплуатируются приповерхностные хранилища жидких радиоактивных отходов (РАО), имеющие в качестве инженерного барьера подстилающий глиняный экран.

При создании барьеров, как правило, применяются уплотненные глины, имеющие, как показано в работах [1, 2], коэффициент фильтрации не более 1,0E-05 м/сут и начальный градиент фильтрации 20 - 50 и более, на несколько порядков превышающий реально действующие градиенты напора в барьере хранилища (рис.1). Скорость фильтрации V настолько мала, что мера отношения конвективного переноса к диффузионному (число Пекле) имеет значение, намного меньшее единицы, hV/D << 1 (h – толщина барьера, D – коэффициент молекулярной диффузии). В таких барьерах основным механизмом переноса радионуклидов является молекулярная диффузия.

Для долговременной оценки безопасности хранилищ жидких РАО предлагается математическая модель диффузии радионуклидов через инженерный глиняный барьер.

1. Описание модели

Диффузия радионуклидов из хранилищ жидких РАО возможна как через донную часть барьера, так и через его боковые части. Поскольку площадь основания рассматриваемого хранилища на несколько порядков превышает площадь его боковых поверхностей, диффузией через боковые части можно пренебречь.

Предположим, что инженерный барьер является одномерной ограниченной областью 0 < x < h, на одной границе которой (при x = 0) отсутствует поток радионуклидов, а на другой (при x = h) концентрация радионуклида равна нулю.



Рис.1. Вертикальный разрез хранилища жидких РАО: *V* – скорость фильтрации через барьер; *G* = *H/h* – градиент напора в барьере; *J* – плотность диффузионного потока на выходе из барьера

Миграция радионуклидов в жидкой фазе пористой среды барьера происходит за счет молекулярной диффузии, описываемой дифференциальным уравнением с частными производными (уравнением диффузии):

$$\left(n_{0} + K_{d}\rho\right)\frac{\partial}{\partial t}C(t,x) = D\frac{\partial^{2}}{\partial x^{2}}C(t,x)$$
(1)

с граничными условиями:

$$\frac{\partial}{\partial x}C(t,x)=0$$
 при $x=0;$ (2a)

$$C(t,x) = 0$$
 при $x = h$ (2б)

и начальным условием:

$$C(t,x) = \frac{E}{ab(n_0 + K_d \rho)} \delta(x) \quad \text{при } t = 0,$$
(3)

где *t* – время, год;

х – координата вертикальной оси барьера, м;

h – толщина барьера, м;

C(*t*, *x*) – концентрация радионуклида в жидкой фазе пористой среды, Бк/м³;

Е – исходная активность области источника, Бк;

а-длина основания хранилища, м;

b – ширина основания хранилища, м;

 $\delta(x)$ – дельта-функция;

*n*₀ – активная пористость;

K_d – коэффициент распределения радионуклида между твердой и жидкой фазами среды (коэффициент межфазного распределения), м³/кг;

 ρ – объемная плотность пористой среды, кг/м 3 (масса сухого образца, деленная на объем образца);

D – водный коэффициент молекулярной диффузии (чистый коэффициент диффузии или фильтрационный коэффициент диффузии), м²/год;

λ – постоянная распада радионуклида, 1/год:

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{T}$$

T – период полураспада, год.

Вывод уравнения массопереноса сорбируемых мигрантов описан в литературе, например, в учебнике [3]. Уравнение диффузии (1) представляет собой частный случай более общего уравнения конвективной диффузии.

Предложенная модель консервативна по следующим причинам.

- Граничное условие (2б) предполагает, что вышедший из барьера поток радионуклидов (Бк/год) смешивается с потоком воды в насыщенном водоносном слое с большим расходом воды, вследствие чего концентрация радионуклидов на выходе из барьера оказывается намного меньше, чем на его входе. Это приводит к возрастанию градиента концентрации радионуклидов в барьере и, следовательно, к увеличению диффузионного потока радионуклидов, поступающих в водоносный горизонт.
- Начальное условие (3) предполагает, что в нулевой момент времени вся накопленная в области источника радионуклидов активность (Бк) распределяется в бесконечно тонком входном слое барьера, что приводит к резкому возрастанию градиента концентрации и, следовательно, к увеличению диффузионного потока радионуклидов как в барьере, так и на выходе из него.

Решением уравнения (1) со смешанной краевой задачей, определяемой формулами (2), и начальным условием (3), является функция:

$$C(t,x) = \frac{E}{ab(n_0 + K_d\rho)} \exp(-\lambda t) W(t,x).$$
(4)

В формуле (4) распад радионуклида учтен сомножителем $exp(-\lambda t)$, а функция W(t, x) вычисляется по формулам, приведенным в справочнике [4].

Плотность диффузионного потока (Бк/м²год) на выходе из барьера (x = h) определяется законом Фика:

$$J(t) = -D \frac{\partial}{\partial x} C(t, x)$$
 при $x = h$

2. Исходные данные

Для моделирования диффузии радионуклидов из приповерхностных хранилищ жидких РАО взяты исходные параметры хранилища.

Параметры барьера:

Толщина <i>h</i>),6 м
Активная пористость n ₀		D,1
Объемная плотность		1,5E+03 кг/м ³
Водный коэффициент молекул	лярной диффузии <i>D</i>	1,8E-02 м ² /год
Размеры основания:		
длина (большая сторона) а	200 м	
ширина b	100 м	
Характеристики радионуклидов	Pu-239	Cs-137
Период полураспада Т	2,41Е+04 лет	30 лет
Коэффициент межфазного распредел	ения	
в барьере <i>К</i> _d	0,25 м ³ /кг	0,5 м ³ /кг
Исходная активность Е	1,5Е+12 Бк	5,0Е+16 Бк
3. Результаты моделирования		

Распределение концентрации Pu-239 в жидкой фазе барьера (Бк/м³) по вертикальной оси x показано на рис. 2 для четырех значений моментов времени (от начала эксплуатации хранилища): 100, 200, 500 и 1000 лет. Радионуклид постепенно распространяется по барьеру, а градиент его концентрации при x = 0,6 м, определяющий диффузионный поток радионуклида на выходе из барьера, возрастает, достигая максимального значения приблизительно через 1000 лет, после чего уменьшается.



Координата вертикальной оси, м

Координата вертикальной оси х, м

Рис. 2. Распределение концентрации Pu-239 в жидкой фазе барьера, Бк/м³, по вертикальной оси *x* для значений моментов времени *t*: 100, 200, 500 и 1000 лет

Плотность диффузионного потока радионуклида на выходе из барьера (Бк/м²·год) в зависимости от времени приведена на рис. 3. Как видно из рис. 3, заметный выход из барьера начинается приблизительно через 300 лет. Максимальная плотность потока радионуклида достигается на 1200 году, после чего начинается плавный спад. Распределение концентрации Cs-137 в жидкой фазе барьера (Бк/м³) показано на

Распределение концентрации Cs-137 в жидкой фазе барьера (Бк/м³) показано на рис. 4 для шести значений моментов времени (от начала эксплуатации хранилища): 1, 3, 10, 30, 100 и 300 лет. Как видно из рис. 4, со временем радионуклид распространяется по барьеру, но не достигает выхода из него (x = 0,6) из-за большого значения коэффициента межфазного распределения и малого периода полураспада.

4. Чувствительность модели к изменениям параметров

Приведенные выше результаты получены на основе предложенной авторами статьи математической модели для наихудшего сочетания значений ее параметров. В расчетах использованы:



Время t, год

Рис. 3. Плотность диффузионного потока радионуклида Pu-239 на выходе из барьера, Бк/м² год

- максимальное значение водного коэффициента молекулярной диффузии;
- минимальное значение коэффициента межфазного распределения [м³/кг] для каждого радионуклида;
- минимальное значение толщины барьера.

Практический интерес представляет оценка влияния уменьшения максимальных и увеличения минимальных значений указанных выше параметров на выход радионуклида Pu-239.

Чувствительность модели к изменениям значений этих параметров иллюстрируется рис. 5, 6 и 7.

При уменьшении водного коэффициента молекулярной диффузии от 1,8E-02 до 1,0E-02 м²/год максимум выхода радионуклида уменьшается в 2 раза, а соответствующий ему момент времени увеличивается от 1200 до 2500 лет.





№ 1, 2008 г.

Координата вертикальной оси х, м



Рис. 4. Распределение концентрации Cs-137 в жидкой фазе барьера, Бк/м³, по вертикальной оси *х* для значений моментов времени *t*: 1, 3, 10, 30, 100 и 300 лет

Рис. 5. Плотность диффузионного потока радионуклида Pu-239 на выходе из барьера, Бк/м²·год, для значений водного коэффициента молекулярной диффузии *D*: 1,8E-02; 1,0E-02 и 5,0E-03 м²/год



23

Ядерная и радиационная безопасность

Nº 1, 2008 г.



из барьера, Бк/м²·год, для значений коэффициента межфазного распределения *К*_d: 0,25; 0,5 и 1,0 м³/кг

Рис. 7. Плотность диффузионного потока радионуклида Pu-239 на выходе из барьера, Бк/м² год, для значений толщины барьера *h*: 0,6; 1,0 и 1,5 м

При увеличении коэффициента межфазного распределения от 0,25 до 0,5 м³/кг максимум выхода радионуклида уменьшается в 2 раза, а соответствующий ему момент времени возрастает от 1200 до 2500 лет.

При увеличении толщины барьера от 0,6 до 1,0 м максимум выхода радионуклида уменьшается в 3 раза, а соответствующий ему момент времени увеличивается от 1200 до 3500 лет.

Модель чувствительна к изменению параметров – водного коэффициента молекулярной диффузии, коэффициента межфазного распределения и толщины барьера.

5. Выводы

Предложена и реализована математическая модель диффузии радионуклида через инженерный глиняный барьер приповерхностного хранилища жидких РАО, позволяющая определять выход радионуклидов из барьера в водоносный горизонт.

Модель чувствительна к изменениям значений параметров – водного коэффициента молекулярной диффузии, коэффициента распределения радионуклида между твердой и жидкой фазами барьера и толщины барьера.

В хранилищах жидких РАО основание, как правило, расположено выше свободной поверхности подземных вод водоносного горизонта, в ненасыщенной зоне. Поскольку барьеры с высокими изолирующими свойствами предотвращают инфильтрационный поток воды, радионуклиды в ненасыщенной зоне будут распространяться на всю ее толщи-

ну за счет диффузии. Таким образом, к моменту достижения насыщенного водоносного горизонта они будут распределены в области, толщина которой больше толщины барьера. В связи с этим максимум выхода радионуклида в водоносный горизонт будет ниже значения, рассчитанного по предложенной модели, а значение соответствующего ему момента времени – намного больше (см. рис. 7).

Литература

1. Бэр Я., Заславски Д., Ирмей С. Физико-математические основы фильтрации воды. М.: Мир, 1971.

2. Гольдберг В.М. Проницаемость и фильтрация в глинах. М.: Недра, 1986.

3. Шестаков В.М. Гидрогеодинамика: Учебник. М.: Изд-во МГУ, 1995.

4. Полянин А.Д. Справочник по линейным уравнениям математической физики. М.: Физ.-мат. лит.: Наука/Интерпериодика, 2001.