

УДК 621.311.25:519.6:532.546

Г. З. СЕРЕБРЯНЫЙ, М. Л. ЖЕМЖУРОВ, Г. М. ЖМУРА, Д. О. РУДОВИЧ

**ДВУМЕРНАЯ МОДЕЛЬ ДЛЯ ОБОСНОВАНИЯ БЕЗОПАСНОСТИ ПУНКТОВ
ЗАХОРОНЕНИЯ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ**

*Объединенный институт энергетических и ядерных исследований – Сосны НАН Беларуси,
Минск, Беларусь, e-mail: silver@sosny.bas-net.by*

Одномерные модели переноса загрязнения в грунте не всегда адекватно отражают реально происходящие процессы. Переход к двумерной или трехмерной моделям позволяет многократно повысить точность расчетов.

Ключевые слова: продольная дисперсия, поперечная дисперсия, моделирование, радиоактивные отходы.

G. Z. SEREBRYANYI, M. L. ZHEMZHUROV, G. M. ZHMURA, D. O. RUDOVICH

**TWO-DIMENSIONAL MODEL FOR SAFETY ANALYSIS OF POINTS OF BURIAL PLACE
OF RADIOACTIVE WASTES**

*The Joint Institute of Power and Nuclear Research – Sosny of the National Academy of Sciences of Belarus,
Minsk, Belarus, e-mail: silver@sosny.bas-net.by*

Single-dimensional models of contaminants migration in soil do not always adequately reflect the processes that occur in real life. Transition to two- or three- dimensional modeling would help enormously improving accuracy of calculations.

Keywords: longitudinal dispersion, transverse dispersion, modeling, radioactive wastes.

При оценках безопасности пунктов захоронения радиоактивных отходов часто полагают, что эффективная индивидуальная эквивалентная доза облучения поглощается индивидуумом лишь при потреблении загрязненной воды. В этом случае задача оценки безопасности пунктов захоронения сводится к прогнозированию состояния грунтовых вод в зоне влияния хранилищ на весь срок их потенциальной опасности. В качестве индикаторов безопасности используются концентрации и потоки радионуклидов в водных средах. В свою очередь задача поиска зоны влияния сводится к определению координат границы области, на которой величина концентрации радионуклидов в воде меньше или равна референтным уровням содержания радионуклидов в питьевой воде ($РУ^{вода}$).

Изучение процессов и параметров массопереноса в водоносных пластах базируется на закономерностях теории миграции подземных вод, которая дает физико-математическое описание различных механизмов сложных процессов гидродинамического и физико-химического характера. Миграция химических компонентов в водоносных пластах осуществляется в рамках конвективно-диффузионных процессов (с учетом механизма гравитационной дифференциации), на которые накладываются процессы физико-химических превращений в подземных водах и взаимодействий с вмещающими горными породами.

Для оперативного анализа процессов переноса радиоактивных водорастворимых соединений наряду с численными решениями необходимо также иметь аналитические решения, которые отражают характер, закономерности переноса и распределения их в почвах и грунтах.

Основанием для оценки безопасности и принятия тех или иных решений служит прогнозный расчет загрязнения окружающей среды вследствие возможного выноса радиоактивных веществ за пределы конструктивных границ хранилищ. При этом существенными моментами становятся точность и достоверность результатов, полученных с помощью расчетных моделей. Миграция радионуклидов в почвенном покрове определяется значительным количеством взаимо-

связанных физико-химических процессов, происходящих в системе газовая фаза – водный раствор – вмещающая порода. Вследствие сложности этих процессов для описания поведения радионуклидов целесообразно использовать методы математического моделирования. С их помощью возможно описать основные процессы, происходящие в системе, с учетом их нелинейного влияния друг на друга.

При проведении расчетных оценок безопасности хранения радиоактивных отходов в приповерхностных хранилищах обычно применяются модели, упрощенные за счет уменьшения размерности задачи для определения распространения радиоактивных веществ в геологических породах. Уменьшение размерности задачи, с одной стороны, позволяет привлечь достаточно удобные в применении аналитические решения для одномерной продольной конвективной диффузии, полученные в [1]. С другой стороны, такое упрощение является вынужденным из-за невозможности использования более сложных моделей при недостатке подробных сведений о гидрогеологическом строении исследуемой территории.

Однако одномерные модели переноса загрязнения в грунте не всегда адекватно отражают реально происходящие процессы. Переход к двумерной или трехмерной моделям позволяет многократно повысить точность расчетов. Детальное представление о возможностях и особенностях переноса радионуклидов, полученное при многомерном моделировании, создает основу для применения нормативов при обосновании в конкретных условиях решений о продлении сроков эксплуатации хранилищ, придании им статуса могильника, необходимости перегрузки радиоактивных отходов и реабилитации территории.

Процесс поперечного перемешивания жидкостей изучен в меньшей степени, чем данный процесс с учетом продольной диффузии. Дисперсия в различных направлениях приводит к образованию сложных по своим очертаниям ареалов загрязнений в водоносных горизонтах.

Результаты экспериментальных исследований по определению коэффициентов дисперсии смесей, движущихся в пористой среде, показали их большие абсолютные значения по сравнению с величинами коэффициентов молекулярной диффузии. Установлена также линейная зависимость коэффициента дисперсии от скорости потока и размера частиц пористой среды [2–4]. Согласно этому заключению, продольная (A_L) и поперечная (A_T) дисперсности связаны с коэффициентами дисперсии следующим образом:

$$D_L = A_L V, \quad D_T = A_T V, \quad (1)$$

где V – скорость потока в продольном направлении.

Задача прогноза формирования ареалов загрязнений радионуклидами с учетом двумерной дисперсии может быть рассмотрена на основе конвективно-диффузионной модели [1], в соответствии с которой концентрация радиоактивной примеси описывается уравнением

$$nR \frac{\partial S}{\partial t} = nD_L \frac{\partial^2 S}{\partial z^2} - V \frac{\partial S}{\partial z} + nD_T \frac{\partial^2 S}{\partial x^2} - \lambda nRS, \quad (2)$$

где $S = C/C_0$ – безразмерная удельная активность; C – удельная активность радионуклида в жидкой фазе, Бк/л; C_0 – начальная удельная активность радионуклида в жидкой фазе, Бк/л; $R = 1 + \rho K_d/n$ – коэффициент ретроградации; K_d – коэффициент распределения водорастворимого соединения, см³/кг; D_L – коэффициент продольной дисперсии, м²/г; D_T – коэффициент поперечной дисперсии, м²/г; n – активная пористость скелета породы, м³/м³; t – время, г; z – продольная координата; x – поперечная координата; λ – постоянная распада радионуклида (1/г); ρ – плотность скелета породы, г/см³.

Для решения уравнения (2) введем в рассмотрение новую координату $Z = z + x\sqrt{D_T/D_L}$. С учетом этого уравнение (2) принимает следующий вид:

$$nR \frac{\partial S}{\partial t} = nD \frac{\partial^2 S}{\partial Z^2} - V \frac{\partial S}{\partial Z} - \lambda nRS, \quad (3)$$

где $D = D_L \left(1 + \frac{D_T}{D_L} \right)$.

Для решения уравнения (3) введем в рассмотрение критерии подобия массопереноса при миграции радионуклидов в пористой среде согласно [3]: $u = ZV/nD$, $\tau = tV^2/Rn^2D$, $\beta = \lambda Rn^2D/V^2$.

В рамках принятых предположений уравнение транспорта загрязнителя приведено к безразмерному виду:

$$\frac{\partial S}{\partial \tau} + \frac{\partial S}{\partial u} = \frac{\partial^2 S}{\partial u^2} - \beta S \quad (4)$$

с начальными условиями $S(0, \tau) = \exp(\beta\tau)$.

Аналитическое решение получено с помощью преобразования Лапласа [3] и имеет вид

$$S = \frac{1}{2} \exp(-\beta\tau) \left[\operatorname{erfc}\left(\frac{u-\tau}{2\sqrt{\tau}}\right) + \operatorname{erfc}\left(\frac{u+\tau}{2\sqrt{\tau}}\right) \exp(u) \right], \quad (5)$$

где $\operatorname{erfc}(Y) = 1 - \operatorname{erf}(Y)$ – остаточная функция ошибок.

Для заданного расстояния от источника загрязнения время достижения максимальной концентрации определяется из условия $\partial S / \partial \tau = 0$. Тогда с учетом (5) имеем

$$-\beta S + \frac{1}{2\sqrt{\pi}} \frac{u}{\tau^{3/2}} \exp(-\beta\tau) \exp\left[-\frac{(u-\tau)^2}{4\tau}\right] = 0. \quad (6)$$

Полученные решения при заданных параметрах позволяют определить расстояние от источника, где максимальная концентрация в водном растворе соответствует $RU^{\text{вода}}$ для данного радионуклида. Таким образом, задача сводится к решению трансцендентного уравнения (6) (значения S вычисляются по (5) относительно τ при расчетном β и различных u).

Рассмотренная модель предназначена для описания процессов, протекающих в окружающей среде. Для проведения расчетов необходимы сведения о значительном числе параметров, характеризующих эту среду. Информация о них часто ограничена, а сами параметры могут изменяться в широких пределах в зависимости от состояния природного объекта. Для данной модели такими параметрами являются ρ , n , V , K_d , A_p , A_T . Постоянная распада λ для радионуклида принимается фиксированной величиной.

Для долгоживущих радионуклидов, таких как ^{137}Cs , ^{90}Sr , ^{241}Pu и ^{241}Am , прогнозные оценки необходимо рассматривать в течение (порядка сотен и тысяч лет) промежутка времени, за который могут существенно меняться основные параметры модели. На основании экспериментальных данных проведен анализ корректного выбора необходимых параметров модели.

Природные факторы, связанные с передвижением почвенной влаги (фильтрационный поток, капиллярный поток и термовлагоперенос) можно рассматривать как общие. Разница между видами потока заключается лишь в порождаемых его силах и направлении движения влаги. Не принимая во внимание причины, вызывающие движение влаги в почве, будем считать, что три вида потока почвенной влаги можно заменить средним суммарным, равнодействующим потоком. Его направление и величина зависят от времени года, суток, погодных условий и свойств почвы. Переменным во времени суммарным потоком оперировать неудобно вследствие многих причин и, прежде всего, в связи с большими трудностями его измерения. Поэтому при рассмотрении длительных промежутков времени (например, измеряемых годами) есть смысл считать поток в среднем постоянным в течение сезона, года или нескольких лет.

Результаты по плотности и пористости грунтов зоны аэрации получены на основании экспериментальных данных [6].

Значения коэффициента распределения водорастворимого соединения K_d для отдельно взятого радионуклида могут отличаться на несколько порядков. В большинстве работ, посвященных анализу безопасности пунктов хранения радиоактивных отходов, используется консервативный подход. Суть его заключается в том, что для выбранного радионуклида в зависимости от вида грунта проводится анализ имеющихся экспериментальных данных и выбирается наименьшее их значение. В настоящей работе величины коэффициента распределения водорастворимого соединения K_d приняты согласно [7]. $RU^{\text{вода}}$ для радионуклидов приняты согласно приложению 9 [8].

Необходимые параметры модели, используемые при проведении модельных расчетов, представлены в табл. 1.

Т а б л и ц а 1. Основные параметры модели для выбранных радионуклидов

Радионуклид	ρ , г/см ³	n	K_d , см ³ /г	λ , 1/г.	РУ ^{возд} , Бк/л
¹³⁷ Cs	1,75	0.348	45	0,0240	10
⁹⁰ Sr	1,75	0.348	2.3	0,0231	10
²⁴¹ Am	1,75	0.348	177	0,0016	1
²⁴¹ Pu	1,75	0.348	174	0,0481	10

Особый интерес представляет выбор методики расчета величины дисперсности A_L . В последнее время этому вопросу в мировой литературе посвящены многочисленные исследования. В 1992 г. в [9] представлены все имеющиеся к этому времени экспериментальные данные для значений A_L . Основным выводом этой работы авторы считают, что продольная дисперсность зависит от расстояния источника до точки наблюдения. В дальнейшем при использовании результатов [9] и новых экспериментальных данных в [10–13] применена эмпирическая зависимость продольной дисперсности от расстояния источника до точки наблюдения в виде $A_L = cL^m$. Однако только в [13] все экспериментальные данные подразделены для различных геологических пород. Для песчаных водоносных горизонтов зоны аэрации в [13] для величины A_L предложена зависимость $A_L = 0,2L^{0,44}$. На основании данных [9] в [12] получено, что в среднем по всем экспериментам $A_T = A_L/3$, а диапазон отношений лежит в пределах от $A_L/2$ до $A_L/10$.

Проведены расчеты максимальных концентраций и времени их достижения в зависимости от глубины зоны аэрации для радионуклидов ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²⁴¹Pu и ²⁴¹Am. Результаты расчетов представлены в табл. 2.

Т а б л и ц а 2. Максимальные концентрации и время их достижения в зависимости от глубины зоны аэрации для радионуклидов ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²⁴¹Pu и ²⁴¹Am

Глубина зоны аэрации, м	S_{max}				T_{max} , Г.			
	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²⁴¹ Am	²⁴¹ Pu	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	²⁴¹ Am	²⁴¹ Pu
1	5,4E-01	2,87E-03	1,10E-01	5,49E-10	22,2	167,9	1053,8	258,7
2	3,5E-01	3,89E-05	2,20E-02	1,07E-16	38,3	290,9	1836,3	443,8
3	2,3E-01	7,51E-07	4,97E-03	9,44E-23	53,4	402,3	2557,1	609,1
4	1,6E-01	1,79E-08	1,20E-03	2,04E-28	67,7	506,6	3241,3	762,6
5	1,1E-01	4,96E-10	3,03E-04	8,27E-34	81,7	606,0	3899,4	908,0
6	7,6E-02	1,54E-11	7,96E-05	5,43E-39	95,3	701,6	4537,4	1047,2
7	5,3E-02	5,24E-13	2,15E-05	5,25E-44	108,6	794,0	5159,0	1181,4
8	3,7E-02	1,93E-14	5,95E-06	7,00E-49	121,7	883,9	5766,7	1311,5
9	2,6E-02	7,58E-16	1,68E-06	1,23E-53	134,7	971,6	6362,5	1438,0
10	1,9E-02	3,16E-17	4,83E-07	2,74E-58	147,5	1057,3	6947,9	1561,6
11	1,3E-02	1,38E-18	1,41E-07	7,53E-63	160,1	1141,3	7523,8	1682,5
12	9,5E-03	6,35E-20	4,17E-08	2,50E-67	172,7	1223,8	8091,4	1801,0
13	6,8E-03	3,04E-21	1,25E-08	9,83E-72	185,1	1304,9	8651,3	1917,4
14	4,9E-03	1,51E-22	3,80E-09	4,51E-76	197,4	1384,8	9204,1	2031,9
15	3,5E-03	7,79E-24	1,17E-09	2,38E-80	209,6	1463,5	9750,4	2144,5
16	2,5E-03	4,15E-25	3,61E-10	1,43E-84	221,7	1541,2	10290,7	2255,6
17	1,8E-03	2,27E-26	1,13E-10	9,74E-89	233,8	1617,8	10825,4	2365,1
18	1,3E-03	1,28E-27	3,57E-11	7,40E-93	245,8	1693,6	11354,9	2473,3
19	9,6E-04	7,43E-29	1,14E-11	6,25E-97	257,7	1768,5	11879,3	2580,1
20	7,0E-04	4,42E-30	3,64E-12	5,82E-101	269,5	1842,5	12399,2	2685,8
21	5,1E-04	2,69E-31	1,18E-12	5,94E-105	281,3	1915,9	12914,5	2790,2
22	3,7E-04	1,67E-32	3,82E-13	6,62E-109	293,0	1988,5	13425,7	2893,6
23	2,7E-04	1,06E-33	1,25E-13	8,02E-113	304,7	2060,4	13933,0	2996,0
24	2,0E-04	6,87E-35	4,12E-14	1,05E-116	316,3	2131,7	14436,4	3097,4

Глубина зоны азрации, м	S_{\max}				T_{\max} , г.			
	^{90}Sr	^{137}Cs	^{241}Am	^{241}Pu	^{90}Sr	^{137}Cs	^{241}Am	^{241}Pu
25	1,4E-04	4,54E-36	1,37E-14	1,48E-120	327,9	2202,4	14936,2	3197,9
26	1,1E-04	3,05E-37	4,56E-15	2,25E-124	339,4	2272,5	15432,5	3297,5
27	7,7E-05	2,09E-38	1,53E-15	3,64E-128	350,8	2342,0	15925,5	3396,3
28	5,6E-05	1,46E-39	5,15E-16	6,30E-132	362,2	2411,0	16415,3	3494,3
29	4,1E-05	1,03E-40	1,74E-16	1,16E-135	373,6	2479,5	16902,0	3591,5
30	3,0E-05	7,40E-42	5,93E-17	2,27E-139	384,9	2547,5	17385,8	3688,0
31	2,2E-05	5,4E-43	2,0E-17	4,7E-143	396,2	2615,0	17866,8	3783,5
32	1,6E-05	4,0E-44	7,0E-18	1,0E-146	407,5	2682,1	18345,1	3877,9
33	1,2E-05	3,0E-45	2,4E-18	2,4E-150	418,7	2748,7	18820,4	3974,7
34	8,9E-06	2,3E-46	8,3E-19	5,7E-154	429,8	2815,0	19293,3	4068,0

Если предположить, что начальная концентрация для всех радионуклидов $C_0 = 2 \cdot 10^5$ Бк/л, то безразмерная концентрация S_{\max} , равная $\text{PУ}^{\text{вода}}$, для ^{137}Cs составит $5,0 \cdot 10^{-5}$, ^{90}Sr – $5,0 \cdot 10^{-5}$, ^{241}Pu – $5,0 \cdot 10^{-5}$ и ^{241}Am – $5,0 \cdot 10^{-6}$. Как видно из табл. 2, величины S_{\max} достигаются для ^{90}Sr на расстоянии 28,4 м, для ^{241}Am на расстоянии 8 м, для ^{137}Cs порядка 1,5 м и для ^{241}Pu порядка 0,5 м. Таким образом, зона влияния определяется в основном координатами, на которых величина концентрации ^{90}Sr будет меньше или равна $\text{PУ}^{\text{вода}}$.

Представленные выше расчеты проведены при условии, что для определения A_L и A_T приняты зависимости $A_L = 0,2L^{0,44}$ и $A_T = A_L/3$.

В [12] показано, что диапазон экспериментальных значений A_T может изменяться от $A_T = 0$ до $A_T = A_L$.

Для ^{90}Sr проведены модельные расчеты для $\text{PУ}^{\text{вода}} S_{\max} = 5,0 \cdot 10^{-5}$ для $A_L = 0,2L^{0,44}$ и различных A_T в диапазоне от 0 до $A_T = A_L$. Результаты расчетов представлены в табл. 3.

Как следует из табл. 3, изменения значения A_T в диапазоне от $A_L/2$ до 0 незначительно влияют на величину расстояния достижения $\text{PУ}^{\text{вода}} S_{\max} = 5,0 \cdot 10^{-5}$ для ^{90}Sr , а также и на величину времени достижения этой концентрации.

Проведенный нами анализ экспериментальных данных [9–13] показал, что все экспериментальные данные по продольной дисперсности A_L находятся в диапазоне от $0,15L$ до $0,01L$. В этом диапазоне авторами [10–13] с использованием методов наименьших квадратов предложены за-

Т а б л и ц а 3. Расстояния достижения $\text{PУ}^{\text{вода}} S_{\max} = 5,0 \cdot 10^{-5}$ для ^{90}Sr в зависимости от величины поперечной дисперсности

Расчет A_T	Расстояние, м	T_{\max} , г.
1	29,9	342,9
$A_L/2$	28,6	362,1
$A_L/3$	28,4	366,8
$A_L/10$	28,2	369,7
0	28,2	370,3

Т а б л и ц а 4. Расстояния достижения $\text{PУ}^{\text{вода}} S_{\max} = 5,0 \cdot 10^{-5}$ для ^{90}Sr в зависимости от величины продольной дисперсности

Расчет A_L	Расстояние, м	T_{\max} , г.
$0,15L$	37,4	290,6
$0,1L$ [9]	33,4	311,7
$0,2L^{0,44}$ [13]	28,4	366,8
$0,01L^{0,88}$ [13]	27,5	405,6
$0,83[\text{Log}_{10}(L)]^{2,414}$ [11]	31,2	330,6
$L/27,5$ [12]	28,7	359,7
$L/100$	27,4	397,4

зависимости для оценочных значений A_L . При использовании этих зависимостей и диапазона наименьших и наибольших значений A_L при $A_T = A_L/3$ для ^{90}Sr проведены модельные расчеты для $\text{РУ}^{\text{вода}} S_{\text{max}} = 5,0 \cdot 10^{-5}$. Результаты представлены в табл.4.

Следует отметить, что все расчеты по вычислению S_{max} и T_{max} для решения трансцендентного уравнения (6) проведены с использованием пакета математических программ Maple.

Как следует из результатов модельных расчетов, с увеличением значения A_L растет расстояние, на котором достигается $\text{РУ}^{\text{вода}} S_{\text{max}}$, и уменьшается время установления данной концентрации.

Проведенные расчеты по двумерной модели указывают на то, что если в модели использовать наименьшие значения коэффициента распределения K_d и наибольшие экспериментальные значения продольной и поперечной дисперсностей, то это даст самую консервативную оценку защищенности грунтовых вод от их радиоактивного загрязнения.

Таким образом, рост размерности расчетной модели позволяет существенно повысить точность обоснования безопасности хранилищ, подтвердить возможность увеличения допустимого количества размещаемых в них радиоактивных отходов.

Список использованной литературы

1. *Серебряный, Г. З.* Аналитическая модель миграции радионуклидов в пористых средах / Г. З. Серебряный, М. Л. Жемжуров // Инженерн.-физ. журн. – 2003. – Т. 76, № 6. – С. 146–150.
2. *Николаевский, В. Н.* Конвективная диффузия в пористых средах / В. Н. Николаевский // ПММ. – 1959. – Т. XXIII. – С. 1042–1050.
3. *Лыков, А. В.* Тепломассоперенос / А. В. Лыков – М.: Энергия, 1978.
4. *Рошаль, А. А.* Методы определения миграционных параметров / А. А. Рошаль // Гидрогеология и инженерная геология. – М., 1980.
5. *Bats, C. F.* A proposal estimation of soil leaching and leaching constants for use in assessment models / C. F. Bats, R. D. Sharp // J. Environ. Qual. – 1983. Vol. 12, N 1. – P. 18–28.
6. *Гвоздев, А. А.* Создание системы наблюдения за миграцией радионуклидов из пунктов хранения радиоактивных отходов в подземные воды / А. А. Гвоздев [и др.] // Весці НАН Беларусі. Сер. фіз.-тэхн. навук. – 1995. – № 4. – С. 78–84.
7. *Sullivan, T.* Recommended values for the distribution coefficient (K_d) to be used in dose assessments for decommissioning the Zion Nuclear Power Plant. / T. Sullivan // Informal Report, BNL- 05442–2014-IR. – June 2014.
8. Санитарные нормы и правила «Требования к радиационной безопасности»; Гигиенический норматив «Критерии оценки радиационного воздействия». – Минск: Минздрав РБ, 2012.
9. *Gelhar, L. W.* A critical review of data on field– scale dispersion in aquifers / L. W. Gelhar, C. K. Welty, R. Rehfeldt // Water Resources Research. – 1992. – Vol. 28, N 7. – P. 1955–1974
10. *Neuman, S. P.* Universal Scaling of Hydraulic Conductivities and Dispersivities in Geologic Media / S. P. Neuman // Water Resources Research. – 1990. – Vol. 26, N 8. – P. 1749–1758.
11. *Xu, M.* Use of weighted least-squares method in evaluation of the relationship between dispersivity and field scale / M. Xu, Y. Eckstein // Ground Water. – 1995. – Vol. 33, N 6. – P. 905–908.
12. *Tauxe, J. D.* Porous Medium Advection–Dispersion Modeling in a Geographic Information System / J. D. Tauxe: Ph. D. diss. – University of Texas – Austin, 1994.
13. *Schulze-Makuch, D.* Longitudinal Dispersivity Data and Implications for Scaling Behavior / D. Schulze-Makuch // Ground Water. – 2005. – Vol. 43, N 3. – P. 443–456.

Поступила в редакцию 07.04.2016