

Препринти Інституту фізики конденсованих систем НАН України розповсюджуються серед наукових та інформаційних установ. Вони також доступні по електронній комп'ютерній мережі на WWW-сервері інституту за адресою <http://www.icmp.lviv.ua/>

The preprints of the Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine are distributed to scientific and informational institutions. They also are available by computer network from Institute's WWW server (<http://www.icmp.lviv.ua/>)

Ігор Михайлович Кріп
Тамара Віталіївна Шимчук
Петро Андрійович Глушак
Михайло Васильович Токарчук

ДО ПРОБЛЕМ МАТЕМАТИЧНОГО МОДЕЛЮВАННЯ МІГРАЦІЇ
РАДІОНУКЛІДІВ У ҐРУНТАХ ТА ҐРУНТОВИХ ВОДАХ

Роботу отримано 28 грудня 2006 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку семінаром відділу теорії нерівноважних процесів

Виготовлено при ІФКС НАН України
© Усі права застережені

Національна академія наук України



ІНСТИТУТ
ФІЗИКИ
КОНДЕНСОВАНИХ
СИСТЕМ

ICMP-06-29U

І.М. Кріп*, Т.В. Шимчук*, П.А. Глушак, М.В. Токарчук

ДО ПРОБЛЕМ МАТЕМАТИЧНОГО МОДЕЛЮВАННЯ
МІГРАЦІЇ РАДІОНУКЛІДІВ У ҐРУНТАХ
ТА ҐРУНТОВИХ ВОДАХ

*Національний університет "Львівська політехніка", вул. С.Бандери 12,
79013 Львів

ЛЬВІВ

УДК: 532; 533; 533.9:530.182; 536.75; 536-12.01.

PACS: 05.60.+w, 05.70.Ln, 05.20.Dd, 52.25.Dg, 52.25.Fi

До проблем математичного моделювання міграції радіонуклідів у ґрунтах та ґрунтових водах

І.М. Кріп, Т.В. Шимчук, П.А. Глушак, М.В. Токарчук

Анотація. Проведено моделювання міграції радіонуклідів в приповерхневому шарі ґрунту. За чисельними розрахунками рівнянь дифузії радіонуклідів в ґрунтах встановлено, що вертикальна міграція ^{90}Sr , ^{239}Pu проходить протягом 8-10 років в приповерхневому шарі ґрунту глибиною до 5 см. Вертикальна міграція ^{137}Cs є незначною, що пояснюється високою ефективністю сорбції цього радіонукліда фероціанідними сорбційними матеріалами.

On the problems of mathematical modelling of radionuclides migration in soils and soil waters

I.M. Krip, T.V. Shymchuk, P.A. Hlushak, M.V. Tokarchuk

Abstract. Numerical modeling of radionuclides migration in the near-surface layer of soil is performed. It is ascertained from numerical calculations of diffusion equations of radionuclides in soils, that the vertical migration of ^{90}Sr , ^{239}Pu occurs during 8-10 years in near-surface layer of the soil depth up to 5 cm. Vertical migration ^{137}Cs is insignificant, that explain on the high efficiency of the sorption of this radionuclide by ferrocyanide sorbtion materials.

Подається в Проблеми Чорнобиля

Submitted to Problems of Chornobyl

1. Вступ

Проблемам розробки моделі міграції радіонуклідів у ґрунтах і ґрунтових водах присвячена значна кількість наукових робіт виконаних як до Чорнобильської аварії [1–7], так і після неї [8–28]. Важливим реальним полігоном досліджень процесів міграції радіонуклідів та апробацій моделей їх прогнозування є об'єкт "Укриття" з промисловим майданчиком навколо нього. Математичне моделювання міграції радіонуклідів ^{90}Sr , ^{137}Cs із об'єкту в геологічне середовище було запропоновано в роботі [26] на основі сумісної моделі руху води та радіонуклідів в насиченому-ненасиченому пористому середовищі. Результати розрахунків не отримали належної верифікації внаслідок недостатньої кількості експериментальних досліджень за сверловинами на промайданчику. Моделювання міграції радіонуклідів ґрунтовими водами в районах розміщення пунктів тимчасової локалізації радіоактивних відходів (ПТЛРВ) проведено в роботах [8–12, 18–25, 27]. Особлива увага приділялась дослідженням процесів вертикальної міграції радіонуклідів у ґрунтах [9, 17–21, 25], оскільки експериментальні вимірювання в 30-кілометровій зоні показали [9], що відбувається вертикальна міграція радіонуклідів в ґрунті за рахунок молекулярної дифузії та конвективних потоків води і близько 95% радіонуклідів зосереджено у верхніх 5 см ґрунту. Це означає, що основні процеси поширення радіонуклідів відбуваються в родючому шарі ґрунту, при чому включається ще один небезпечний шлях переносу їх через кореневу систему рослин. Активну міграцію радіонуклідів у ґрунтах викликає цілий ряд основних руйнівних сил, а саме: рух води по поверхні ґрунту, фільтрація атмосферних опадів в середину ґрунту, термоперенос води під дією градієнтів температури, дифузії вільних і адсорбованих іонів, перенос на колоїдних частинках та по кореневій системі рослин. Найбільшу загрозу з точки зору вивезення радіоактивного забруднення у водні масиви створює захоронення "Нафтобаза", що знаходиться поблизу ріки Прип'ять. При обстеженні ПТЛРВ "Нафтобаза" виявлено 14 постійно підтоплених траншей з об'ємом радіоактивних відходів 6.9 тис. м³. 25 траншей затоплюються під час повені. Загальний об'єм радіоактивних відходів у підтоплених траншеях ПТЛРВ складає 23 тис. м³.

Для моделювання міграції в ґрунтах із застосуванням системи "стіна в ґрунті" були проведені числові розрахунки рівнянь переносу для прогнозування вертикальної міграції радіонуклідів ^{90}Sr , ^{239}Pu та ^{137}Cs .

2. Математичне моделювання вертикальної міграції радіонуклідів ^{90}Sr , ^{239}Pu , ^{137}Cs в ґрунтах

При вивченні вертикальної міграції радіонуклідів чорнобильських випадів в ґрунті доцільно обмежитися чотирма формами переносу: радіонукліди, що знаходяться в матриці паливних частинок; радіонукліди, що знаходяться в ґрунтовому розчині у вигляді вільних іонів і у вигляді комплексних сполук із спільним ефективним коефіцієнтом дифузії; сорбована форма радіонуклідів. Вертикальний перенос паливних частинок можна апроксимувати квазидифузним процесом, а для опису рівноважного стану процесів сорбції і десорбції використати ізотерму Генрі [10]. Всі процеси можуть бути описані наступною системою диференціальних рівнянь:

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left[D(x,t) \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} \right] - v(x,t) \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} \\ &- [b(x,t) + g(x,t)] - \frac{b(x,t)C_1(x,t)}{K_d(x,t)} + a(x,t)C_4(x,t) - \lambda C_1(x,t), \\ \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left[D(x,t) \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} \right] \\ &- v(x,t) \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} + g(x,t)C_1(x,t) - \lambda C_2(x,t), \\ \frac{\partial C_3(x,t)}{\partial t} &= b(x,t) \left[C_1(x,t) - \frac{C_3(x,t)}{K_d(x,t)} \right] + \lambda C_3(x,t), \\ \frac{\partial C_4(x,t)}{\partial t} &= \frac{\partial}{\partial x} \left[D_4(x,t) \frac{\partial C_4(x,t)}{\partial x} \right] - [a(x,t) + \lambda] C_4(x,t), \end{aligned} \quad (1)$$

де $C_1(x,t)$ - концентрація радіонукліду в ґрунті у вигляді вільних іонів на глибині x в момент часу t ; $C_2(x,t)$ - концентрація радіонукліду в ґрунті у вигляді розчинних комплексних сполук на глибині x в момент часу t ; $C_3(x,t)$ - концентрація сорбованих форм радіонукліду в ґрунті на глибині x в момент часу t ; $C_4(x,t)$ - концентрація в ґрунті радіонукліду, що знаходиться в складі паливних частинок на глибині x в момент часу t ; $D(x,t)$ - ефективний коефіцієнт дифузії розчинних форм на глибині x в момент t ; $v(x,t)$ - ефективна швидкість конвективного переносу радіонукліду з ґрунтовою вологою на глибині x в момент t ; $D_4(x,t)$ - ефективний коефіцієнт дифузії паливних частинок на глибині x в момент t ; $b(x,t)$ - інтенсивність сорбції розчинних форм радіонукліду ґрунтом на глибині x в момент t ; $a(x,t)$ - інтенсивність деструкції паливних частинок на глибині x в

момент t ; λ - постійна розпаду.

Сумарна концентрація $C(x,t)$ всіх форм радіонукліду в шарі ґрунту описується співвідношенням:

$$C(x,t) = C_1(x,t) + C_2(x,t) + C_3(x,t) + C_4(x,t). \quad (2)$$

Початкові умови, що відповідають миттєвому випаданню радіонуклідів на поверхню землі (дуже малий проміжок часу в порівнянні з наступним періодом міграції), будуть мати вигляд:

$$C_1(x,0) = C_0(1 - Q_0)\delta(x - \varepsilon), \quad C_4(x,0) = C_0Q_0\delta(x - \varepsilon), \quad \varepsilon \rightarrow 0, \quad (3)$$

$$C_3(x,0),$$

де Q_0 - частка радіонукліда, що міститься в паливній компоненті в момент випадання; C_0 - валова поверхнева густина забруднення території радіонуклідом.

Оскільки радіоактивні випаді відбулися миттєво, то потік водорозчинної і паливної компонент із атмосфери в ґрунт при $t > 0$ буде рівний 0. Граничні умови мають наступний вигляд:

$$-D(0,t) \frac{\partial C_1(0,t)}{\partial x} + v(0,t)C_1(0,t) = 0,$$

$$-D(0,t) \frac{\partial C_2(0,t)}{\partial x} + v(0,t)C_2(0,t) = 0,$$

$$-D_4(0,t) \frac{\partial C_3(0,t)}{\partial x} = 0,$$

$$C_1(x,t) = C_2(x,t) = C_3(x,t) = C_4(x,t) = 0, \quad (4)$$

$$\frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} = \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} = \frac{\partial C_3(x,t)}{\partial x} = \frac{\partial C_4(x,t)}{\partial x}, \quad x \rightarrow \infty.$$

Таким чином, нами представлена модель вертикальної міграції радіонуклідів в ґрунті з врахуванням різних фізичних процесів переносу. У випадку випадання водорозчинних форм радіонуклідів в однорідному шарі ґрунту, якщо знехтувати процесами комплексоутворення і вважати процеси десорбції дуже малими, система має аналітичний розв'язок. Його можна записати у вигляді:

$$C(x, t) = C_0 \left\{ \frac{1}{\sqrt{\pi Dt}} \exp\left(-\frac{(x-vt)^2}{4Dt}\right) - \frac{v}{2D} \exp\left(\frac{vx}{D}\right) \times \right. \quad (5)$$

$$\left. \times \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{x+vt}{2\sqrt{Dt}}\right) \right] \right\} \exp[-(\lambda+b)t].$$

Для неоднорідного шару ґрунту при $D = v_D x$ і постійному водному режимі ($v = \text{const}$) для водорозчинних форм радіонуклідів без врахування процесів сорбції і комплексоутворень цей розв'язок приводить до відомого виразу Махонько [11]:

$$C(x, t) = \frac{C_0}{v_D t \Gamma\left(1 + \frac{v}{v_D}\right)} \left(\frac{x}{v_D t}\right)^{\frac{v}{v_D}} \exp\left(-\lambda t - \frac{x}{v_D t}\right).$$

Нами виконані числові розрахунки відносної концентрації радіонуклідів ^{90}Sr та ^{239}Pu в залежності від глибини ґрунту в часовому інтервалі від одного до восьми років. Отримані дані наведено на рис.1-4. При числових розрахунках використано дані для фізичних величин, наведені в таблиці:

Радіонуклід	$D, \text{cm}^2/\text{рік}$	$b, 1/\text{рік}$	$\lambda, 1/\text{рік}$
^{90}Sr	3.0	0.4	29
^{239}Pu	12.9	0.87	$2.44 \cdot 10^4$
^{137}Cs	11.4	24.0	30.0

Аналогічні розрахунки, що були проведені для відносної концентрації радіонукліда ^{137}Cs , показали дуже малу вертикальну міграцію в приповерхневому шарі ґрунту. Такий ефект пояснюється значно більшим коефіцієнтом сорбції $b = 24 \cdot \text{рік}^{-1}$.

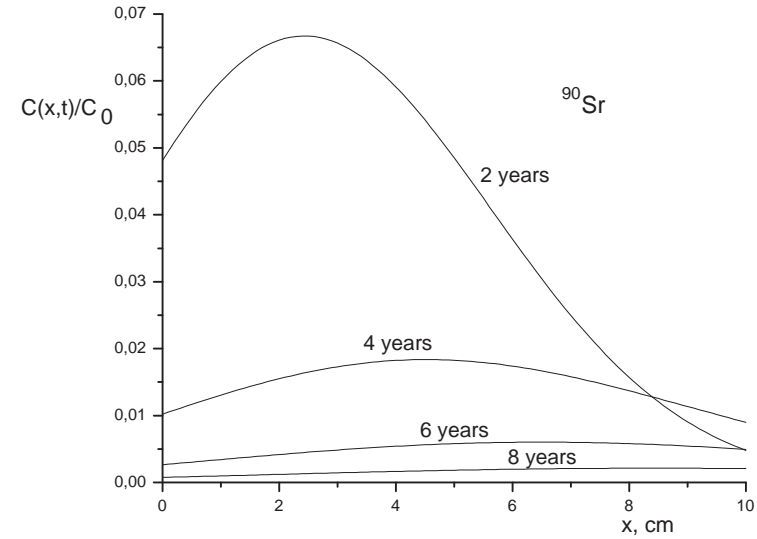


Рис. 1. Залежність відносної концентрації радіонукліда ^{90}Sr від глибини шару ґрунту.

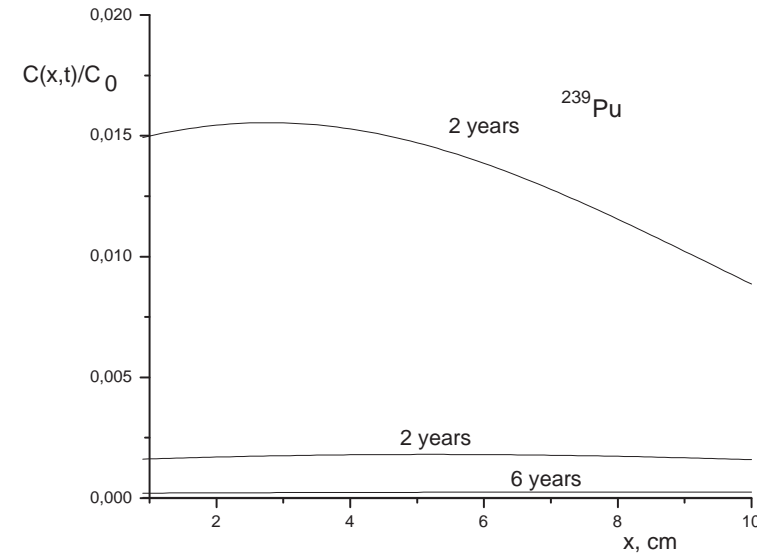


Рис. 2. Залежність відносної концентрації радіонукліда ^{239}Pu від глибини шару ґрунту.

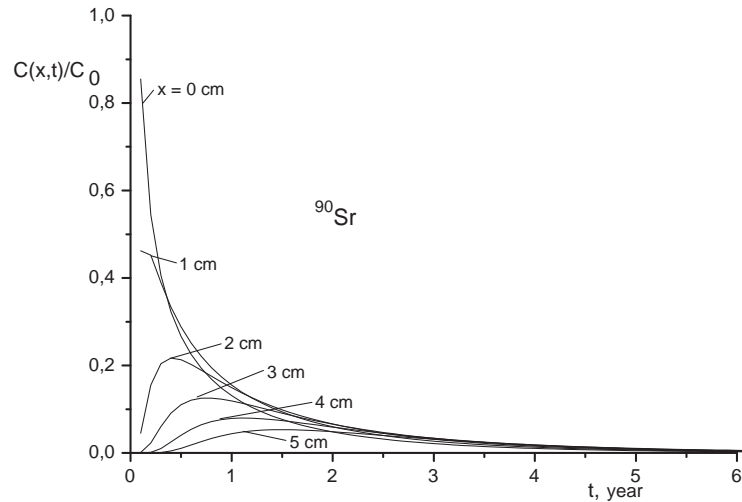


Рис. 3. Залежність відносної концентрації радіонукліда ^{90}Sr з часом на різній глибині шару ґрунту.

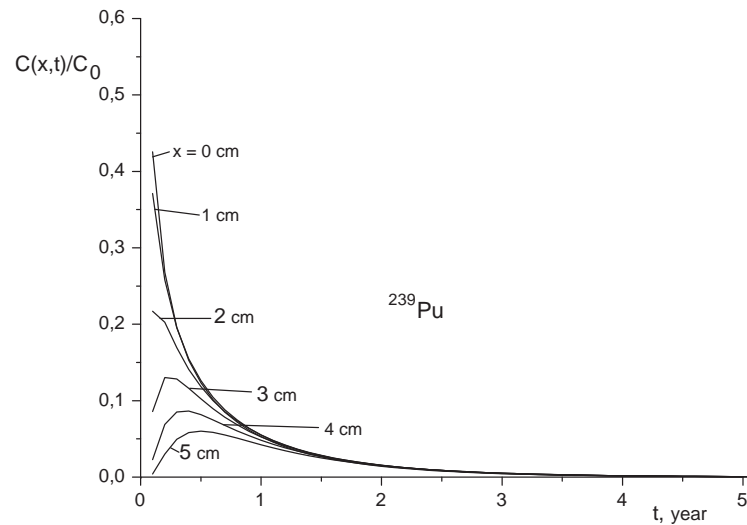


Рис. 4. Залежність відносної концентрації радіонукліда ^{239}Pu з часом на різній глибині шару ґрунту.

Література

1. Прохоров В.М. Миграция радиоактивных загрязнений в почвах. М.: Энергоиздат, 1981, 98 с.
2. Павлоцкая Ф.И. Миграция радиоактивных продуктов глобальных выпадений в почвах. М.: Атомиздат, 1974, 216 с.
3. Пегоев А.Н., Фридман Ш.Д. О вертикальных профилях цезия-137 в почвах. Почвоведение, 1978, No 8, с. 77-81.
4. Kinzelbach W. Ground water modeling. Amsterdam., Elsevier, 1986, 326 p.
5. Кириченко Л.В. Роль направленного переноса при проникновении в глубь почвы продуктов ядерных взрывов, поступающих на поверхность почвы из атмосферы. В кн.: Радиоактивность атмосферы, почвы и пресных вод. М.: Гидрометеиздат, 1970, с. 147-154.
6. Силантьев А.Н., Шкуратова И.Г. Изменение параметров миграции в почве. Атомн. енер., 1988, т.65, вып. 2, с. 137-141.
7. Заручевская Г.П., Носова Л.М., Седов В.М. Безопасность поверхностного захоронения радиоактивных отходов. Атомн. енер., 1991, т. 70, вып. 5.
8. Борзилов В.А., Седунов Ю.С., Новицкий М.И., и др. Физико-математическое моделирование процессов, определяющих смыв долгоживущих радионуклидов с водозаборов тридцатикилометровой зоны Чернобыльской АЭС. Метеорология и гидрология, 1989, № 1, с. 5-13.
9. Бондаренко Г.Н., Кононенко Л.В. Особенности вертикальной миграции радионуклидов топливных и конденсационных выпадений в почвах. Радиоизотопы в экологических исследов. - Киев, Наукова думка, 1992, с. 17-28.
10. Джепо С.П., Скальский А.С., Бугай Д.А. и др. Полигонные исследования миграции радионуклидов на участке пункта временной локализации радиоактивных отходов "Рыжий лес" ЧАЭС. Проблемы Чернобыльской зоны Відчуження, Київ, Наукова думка, 1995, вип. 2, с. 77-84.
11. Долин В.В., Бондаренко Г.Н., Соботович Э.В. Диффузионный механизм миграции цезия-137 и стронция-90 топливных выпадений ЧАЭС. Докл. АН УССР, 1990, № 12, с. 6-10.
12. Ольховик Ю.А., Коромысличенко Т.И., Гороцкая Л.И., Соботович Э.В. Оценка сорбционных свойств песчаных грунтов ближней зоны ЧАЭС. Докл. АН УССР, 1992, № 7, с. 167-171.
13. Бондаренко Г.Н., Долин В.В., Вальтер А.А., Тихонов С.К. Стро-

- ение и состав твердофазных носителей активности в почвах зоны отчуждения ЧАЭС. Проблемы Чернобыльской зоны Відчуження, Київ, Наукова думка, 1995, вип. 2, с. 147-152.
14. Чернобыльская катастрофа. (под редакцией В.Г. Барьяхтара)- Київ, Наукова думка, 1995, 377 с.
 15. Агеев В.А., Выричек С.А. и др. Распределение трансурановых элементов в 30 - километровой зоне ЧАЭС. ДАН України, 1994, No 1, с. 60-66.
 16. Арутюнян Р.В., Большов А.А., Васильев С.К. и др. Статистические характеристики пространственного распределения загрязнения территорий радионуклидами вследствие аварии на Чернобыльской АЭС. Атом. енер., 1993, Т.75, вып. 6, с. 448-453.
 17. Коноплев А.В., Голубенков А.В. Моделирование вертикальной миграции радионуклидов в почве (по результатам ядерной аварии). Метеорология и гидрология, 1991, № 10, с. 62-69.
 18. Силантьев А.Н., Шкуратов И.Г., Бобовникова И.И. Вертикальная миграция в почве радионуклидов, выпавших в результате аварии на Чернобыльской АЭС. Атом. енер., 1989, Т.66, вып. 3, с. 194-197.
 19. Авраменко В.І., Кузьменко М.В., Сименюк І.В., Ситниченко А.І., Сташенко А.Й. Вертикальна міграція радіонуклідів у приповерхневих похованнях радіоактивних матеріалів. ДАН України, 1994, No 1, с. 57-60.
 20. Арутюнян Р.В., Большов А.А., Зенич Т.С., Решетин В.П. Математическое моделирование вертикальной миграции в почве $^{134,137}\text{Cs}$. Атом. енер., 1993, Т.74, вып. 3, с. 223-230.
 21. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А., Хомутинин Ю.В., Левчук С.Е. Вертикальный перенос радионуклидов выброса ЧАЭС в почвах. III. Математическое моделирование вертикального переноса радионуклидов в почвах. Радиохимия, 1996, т. 38, вып. 3, с. 278-284.
 22. Джепо С.П., Скальский А.С., Бугай Д.А., Кубко Ю.А., Марчук В.В. Гидрологический мониторинг и прогнозирование загрязнения подземных вод в зоне отчуждения ЧАЭС. Докл. АН Украины, 1994, № 1, с. 91-98.
 23. Иванов Ю.А., Кашпаров В.А. Мобильность радионуклидов выброса ЧАЭС в грунтах. ДАН України, 1994, № 1, с. 105-109.
 24. Бурак Я.Й., Чапля Є.Я. Вихідні положення математичної моделі гетерофазного переносу радіонуклідів у приповерхневих шарах землі. // ДАН України, 1993, № 10, с. 59-63.
 25. Бурак Я.Й., Чапля Є.Я., Чернуха О.Ю. Про вертикальну міграцію радіонуклідів у ґрунті. ДАН України, 1995, № 10, с. 34-37.

26. Kivva S.L. The mathematical modelling of radionuclide transport in the subsurface environment around the Chernobyl nuclear power plant. Cond. Matt. Phys., 1997, No 12, p. 121-131.
27. Zheleznyak M.J. The mathematical modeling of radionuclide transport by surface water flow from the vicinity of the Chernobyl nuclear power plant. Cond. Matt. Phys., 1997, No 12, p. 37-49.
28. Yukhnovskii I.R., Tokarchuk M.V., Omelyan I.P., Zhelem R.I. Statistical theory for diffusion radionuclides in ground and subterranean. Radiat. Phys. Chem., 2000. vol. 59, No 4, p. 361-375.
29. Снисаренко В.И., Мельников А.И. Определение напряжений и перемещений в теле противофильтрационной завесы, выполненной методом "стена в грунте". Проблемы Чернобыльской зоны Відчуження, Київ, Наукова думка, 1995, вип. 2, с. 138-144.
30. О.С. Захар'яш, П.А. Глушак, І.М. Кріп, Т.В. Шимчук, М.В. Токарчук. Реакційно-електродифузійні рівняння для опису процесів переносу розчинів електролітів радіоактивних елементів крізь пористі глинисті структури. Препринт Інституту фізики конденсованих систем, ICMP-04-17U, Львів, 2004, 19 с.
31. Zubarev D.N., Morozov V.G., Ropke G. Statistical Mechanics of Nonequilibrium Processes, vol.1. – Berlin, Akademie Verlag, 1997.