УДК 631.438

Ю.М. Осадчий, профессор, д-р техн. наук,
В.С. Занииздра, заведующая кабинетом кафедры
Академия военно-морских сил им. П. С. Нахимова,
ул. Дыбенко, 1а, г. Севастополь, Украина, 99001
E-mail:kareliya_5@mail.ru

АППРОКСИМАЦИЯ ЗАВИСИМОСТЕЙ КОНЦЕНТРАЦИИ РАДИОНУКЛИДА ОТ ГЛУБИНЫ В СЛОЕ ХРАНИЛИЩА ТВЕРДЫХ ОТХОДОВ

Выполнен анализ результатов измерений концентраций радионуклидов в зависимости от глубины, выбрана модель, отражающая свойства этой функции. Дано решение уравнения диффузии с использованием выбранной модели.

Ключевые слова: *концентрация, радионуклид, диффузия, аппроксимация.*

Введение

Хранилища твердых отходов являются многослойными. В котловане на поверхности подстилающего слоя располагается насыпной слой радиоактивных отходов (РАО), который при консервации хранилища покрывается защитным слоем. Подстилающий слой может иметь естественное происхождение или представляет собой уплотненный слой глины. Естественный подстилающий слой может располагаться на глиняном слое или скальной породе [1]. В насыпном слое отходов и нижележащих слоях происходят пространственно-временные процессы молекулярного и конвективного переносов радионуклидов (РН) [2].

Зависимость концентрации радиоактивных веществ от линейной координаты нелинейна и может иметь максимум, при этом точка максимума со временем меняет свое пространственное положение [3, 4]. Вследствие этого, концентрация в нижележащем слое увеличивается при приближении точки максимума к границе слоев. Если подстилающий слой является водоносным или опирается на него, который имеет выход на дне проточного или непроточного водоема, то концентрация РН в воде в течение некоторого промежутка времени изменяется.

Постановка цели и задач научного исследования

Целью статьи является аппроксимация зависимостей концентрации РН от глубины в слое хранилища отходов уранового производства «Днепровское» и решение задачи диффузии загрязняющих веществ. Для достижения данной цели были поставлены следующие задачи: рассмотрение структуры и содержания радионуклидов хвостохранилища «Днепровское», анализ результатов экспериментов, проводимых с целью определения уровня радиоактивности. *Объект исследования* – зависимости концентрации РН от глубины в слое отходов уранового производства «Днепровское». *Предмет исследования* – мониторинг аппроксимирующих моделей для получения зависимостей концентрации РН от глубины в насыпном радиоактивном слое.

Результаты исследования аппроксимирующих моделей

Для решения задачи пространственно-временных изменений концентрации РН в слоях, используют математическую модель в виде системы уравнений диффузии [5]. Для решения этой задачи необходимо задать начальные и граничные условия. Временная зависимость концентрации на нижней поверхности насыпного слоя является граничным условием для верхней поверхности подстилающего слоя.

Для аналитического решения уравнения диффузии в насыпном радиоактивном слое необходимо иметь начальное условие: аналитически-определенную функциональную зависимость концентрации от линейной координаты, которая может быть получена в результате аппроксимации таблично определенной зависимости концентрации от линейной координаты, полученной в результате измерений на реальном хранилище.

В таблице 1 приведены зависимости концентрации ^{226}Ra и ^{234m}Pa, измеренные на хранилище отходов уранового производства «Днепровское» [6]. Вертикальный разрез хранилища в окрестностях скважины, в которой производились измерения, представлен в следующем виде: верхний покрывающий слой имеет толщину 9 м, насыпной слой – 8,5 м. Далее следует естественный подстилающий слой, находящийся на слое глины. Концентрация ^{226}Ra максимальна внутри насыпного слоя на глубине 14,5 м. Концентрация ^{234m}Pa достигла границы насыпного и подстилающих слоев и находится на глубине 17,5 м.

Таблица 1 – Концентрации C_{uR} ^{226}Ra и C_{uP} ^{234m}Pa в хранилище отходов уранового производства «Днепровское»

Глубина, x	0-12	12,5	13,5	14,5	15,5	16,5	17,5	18,5	19,5	20,5	21,5	22,5	24
C_{uR}, Бк/кг	22	7372	10920	26315	13748	7115	4549	6347	7090	3329	144	71	49
C_{uP}, Бк/кг	81	4876	5969	10190	13380	67565	80219	73441	7200	8094	4807	105	117

Основной задачей настоящей работы является построение модели зависимости концентрации РН от глубины и использование этой модели при решении уравнения диффузии. При этом также поставлены и решены задачи выбора классов аппроксимирующих моделей, отражающих существенные свойства результатов реальных измерений и количественных оценок качества моделей.

Получены и исследованы модели концентрации ^{226}Ra в зависимости от глубины, измеряемой от верхней поверхности покрывающего слоя. Модель отражает наличие максимума

$$C_{\max} = C(x_{\max}) \text{ в точке } x_m < l,$$

где l – глубина границы насыпного и подстилающего слоев.

Результаты моделирования показывают, что полином второй степени, соответствующий результатам измерений и полученный методом наименьших квадратов (МНК), дает неприемлемые погрешности. Полином третьей степени позволяет отобразить максимум и точку перегиба $x_n < x_m$, однако на значительном интервале $x < x_m$ определяет отрицательные значения концентрации, а поэтому не представляет интереса.

Многочлен четвертой степени

$$C(x) = a_0 + a_1 x + a_2 x^2 + a_3 x^3 + a_4 x^4 \tag{1}$$

отображает максимум и две точки перегиба левее и правее точки максимума. Для определения коэффициентов полинома (1) по МНК соответственно данным $C_{uR}(x)$ из таблицы 1 необходимо решить систему линейных уравнений, записанную в матричном виде следующим образом:

$$\begin{pmatrix} 7 & 96{,}7 & 1414 & 21407 & 330848 \\ 96{,}7 & 1414 & 21407 & 330848 & 5190313 \\ 1414 & 21407 & 330848 & 5190313 & 82388183 \\ 21407 & 330848 & 5190313 & 82388183 & 1320813617 \\ 330848 & 5190313 & 82388178 & 1320813617 & 2{,}1359\cdot 10^{10} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_0 \\ a_1 \\ a_2 \\ a_3 \\ a_4 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 70033 \\ 1032713 \\ 15343555 \\ 229692808 \\ 3464578400 \end{pmatrix}. \tag{2}$$

Элементы матриц системы (2) получены известным образом [7] из данных, приведенных в таблице 1. Результат решения системы (2) и корректировка в соответствии со значением максимальной концентрации позволил получить модель:

$$C_1(x) = 1{,}765(4{,}7365\cdot 10^4 - 1{,}4629\cdot 10^4 x + 1{,}2067\cdot 10^3 x^2 - 1{,}68x^4.$$

В качестве второй модели, также отражающей указанные свойства, рассмотрим функцию Гаусса:

$$C(x) = A\exp(-\alpha(x - x_m)^2). \tag{3}$$

Из условия $C(x_{\max}) = C_{\max}$ следует значение $A = C_{\max}$ = 26315 (см. таблицу 1).

Для определения коэффициента α, прологарифмируем выражение (3):

$$\ln C = \ln(26315) - \alpha(x - x_m)^2. \tag{4}$$

Введя обозначения: $y = \ln C$, $z = (x - x_m)^2$, составим линейное уравнение для нахождения значения α:

$$y = \ln(26315) - \alpha\, z. \tag{5}$$

Применим к (5) МНК:

$$\sum_{i=1}^{n} y_i = n\ \ln(26315) - \alpha \sum_{i=1}^{n} z_i, \tag{6}$$

где n – число измерений. Из (6) получим зависимость для вычисления значения α:

$$\alpha = \frac{n\ln(26315) - \sum_{i=1}^{n} y_i}{\sum_{i=1}^{n} z_i}. \qquad (7)$$

Воспользовавшись зависимостью (7), получим искомое значение $\alpha = 0{,}1575$. Для обеспечения значения $C_2(17{,}5)$, близкого к измеренному, принято скорректированное значение $\alpha = 0{,}195$. Вторая модель имеет выражение:

$$C_2(x) = 26315\ \exp\left(-0{,}195(x-14{,}5)^2\right). \qquad (8)$$

Положительные свойства многочлена третьей степени – возможность отразить максимум и точку перегиба – могут быть использованы для создания композиционной модели:

$$C(x) = \begin{cases} a_{01} + a_{11}x + a_{21}x^2 + a_{31}x^3, x \le x_{\max}, \\ a_{02} + a_{12}x + a_{22}x^2 + a_{32}x^3, x \ge x_{\max}. \end{cases}$$

С помощью МНК соответственно данным таблицы 1 была получена композиционная модель

$$C_3(x) = \begin{cases} 2{,}03\cdot 10^3 + 601x - 310{,}84x^2 + 26.203x^3,\ x \in [6{,}5;13{,}5], \\ 1{,}044\cdot 10^7 + 2{,}004\cdot 10^6 x - 1{,}271\cdot 10^5 x^2 + 2{,}668\cdot 10^3 x^3,\ x \in [13{,}5;17{,}5]. \end{cases} \qquad (9)$$

Полиномиальная модель пятой степени не дает существенного повышения точности и, кроме того, на интервалах $x < x_{\max}$ и $x > x_{\max}$ определяет, подобно многочлену третьей степени, отрицательные расчетные значения.

Наименьшие значения суммы квадратов ошибок – разностей между измеренными и рассчитанными по моделям значениями – дает модель $C_2(x)$. Зависимость $C_{uR}(x)$ обладает существенной несимметрией относительно $x_{\max}$.. Это свойство отражает модель $C_1(x)$ и, ввиду четности функции Гаусса относительно $x_{\max}$, не отражается моделью $C_2(x)$. Модель $C_3(x)$ также отражает указанную несимметрию и может быть использована для продолжения исследования. Качество моделей будет охарактеризовано далее после их применения для решения уравнения диффузии.

Используем модели $C_j(x)$ для решения уравнения диффузии (j – номер модели):

$$\frac{\partial}{\partial t} C_j(t,x) = D\frac{\partial^2}{\partial x^2} C_j(t,x) \qquad (10)$$

с начальными условиями $C(0,x) = C_1(x)$ и $C(0,x) = C_2(x)$ и граничными условиями:

$$C(t,0) = 0,\ \left.\frac{\partial C(t,x)}{\partial x}\right|_{x=l} = -JC(t,x)_{x=l}, \qquad (11)$$

где $C_j(t,x)$ – концентрации РН в насыпном радиоактивном слое; D – коэффициент диффузии; J – плотность потока РН на выходе из насыпного слоя.

Модель, представленная зависимостями (10), (11), соответствует описанному выше расположению слоев и диффузии из насыпного слоя в подстилающий.

Для определения значения J из второго граничного условия запишем: $J = -\frac{1}{C}\cdot\left.\frac{\partial C}{\partial x}\right|_{x=l}$.

Приращения концентрации в окрестности $x = 17{,}5$ имеют значения: $\Delta_1 = 7115 - 4541 = 2574$, $\Delta_2 = 4541 - 6347 = -1806$. Сумму их примем в качестве вертикальной компоненты градиента концентрации $\left.\frac{\partial C}{\partial x}\right|_{x=l} = 2574 - 1806 = 768.$

Плотность потока РН на выходе из насыпного слоя $J = \frac{768}{4541} = 0{,}169.$

Итак, второе граничное условие имеет вид: $\left.\frac{\partial C(t,x)}{\partial x}\right|_{x=17{,}5} = -0{,}169C(t,x).$

Решение рассматриваемой задачи методом разделения переменных известно [6]:

$$C(t,x)=\sum_{m=1}^{\infty}A_m\frac{p^2+\lambda_m^2}{p(p+1)+\lambda_m^2}\exp\left(\frac{-D\lambda_m^2t^2}{l^2}\right)\sin\left(\frac{k\lambda_m x}{l}\right), \quad (12)$$

$$A_m=\frac{2}{l}\int_{x_1}^{x_2}C_j(x)\sin\left(\frac{\lambda_m x}{l}\right)dx,$$

где $x_1=9$, $x_2=17{,}5$ – глубины верхней и нижней границ насыпного слоя; $l=x_2-x_1$, $p=J\,l$ – собственные числа; λ_m – корни уравнения $tg\lambda=-\frac{\lambda}{p}$.

Коэффициент k в выражении собственных функций в решении (12) позволяет обеспечить максимум расчетных значений в окрестности $x_m=14{,}5$.

Решение (12) реализовано с помощью персонального компьютера в пакете MathCAD.

Интерфейс программы:

l:= 8,5	t:= 54	D:=0,0121	I:=0,169	l:= x_2-x_1
P:=I*l	λ:=	k:=1;2…7	x_1:= 9	x_2:= 17,5

C(x):=

$$A:=\frac{2}{l}*\int_{x_1}^{x_2}C(x)*\sin\left(\frac{\lambda*x}{l}\right)dx$$

$$C_m(x):=A_m*\left(\frac{p^2+\lambda_2}{p*(p+1)+\lambda_2}\right)*\left(\frac{-D*\lambda^2*t^2}{l^2}\right)*\sin\left(\frac{k*\lambda*x}{l}\right)$$

Значения первых семи собственных чисел λ_m и амплитуд A_{m1} (для модели $C_1(x)$) и A_{m2} (для модели $C_2(x)$) приведены в таблице 2.

Таблица 2 – Собственные значения и амплитуды

Номер корня m	1	2	3	4	5	6	7
Корень λ_m	1,572	4,9858	8,1273	11,2688	14,4103	17,5519	20,6934
A_{m1}	18920	15540	3325	3208	742	1289	38
A_{m2}	10710	13390	8069	1514	71,6	152	109

Последовательно задавая значения λ_m и A_{m1}, вычислим соответствующие функции $C_m(x)$. Сложив их, получим приближенное решение уравнения диффузии $C(t,x)=\sum_{m=1}^{r}C_m(x)$, где r – выбранное число слагаемых.

Таким же образом определим приближенное решение для модели $C_2(x)$. В таблице 3 представлены: $C_{13}(x)$ – решение, соответствующее модели $C_1(x)$ и содержащее 3 слагаемых искомого решения (12); $C_{15}(x)$ – 5 слагаемых; $C_{17}(x)$ – 7 слагаемых; $C_{23}(x)$ – для модели $C_2(x)$, состоящее из 3 слагаемых; $C_{25}(x)$ – 5 слагаемых; $C_{27}(x)$ – 7 слагаемых.

Значение $\kappa=0{,}91$ обеспечило значения максимума при $x_m=14{,}5$ для модели $C_1(x)$, $\kappa=0{,}92$ – для модели $C_2(x)$.

Таблица 3 – Измеренные и расчетные значения концентраций загрязняющих веществ

x	12,5	13,5	14,5	15,5	16,5	17,5
C_{uR}	7372	10920	26315	17748	7115	4541
C_{13}	9880	12120	23620	18960	8910	4657
C_{15}	9610	12600	23180	19160	9145	4930
C_{17}	8960	11400	24890	18100	8220	4675
C_{23}	8186	11250	23980	17220	7910	2499
C_{25}	7694	12047	21640	15240	9185	3699
C_{27}	8048	16280	24780	17230	6997	4650

Исходя из значений таблицы 3, на рисунке 1 представлены гистограмма значений C_{uR} и кусочно-линейные графики C_{17} (верхняя ломаная) и C_{27} (нижняя ломаная).

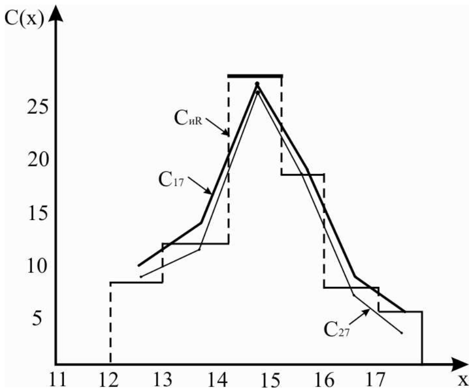

Рисунок 1 – Гистограмма значений C_{uR} и кусочно-линейные графики C_{17} и C_{27}

Оценка качества моделей

Практически используемые оценки качества моделей, полученные из экспериментальных данных, основаны на рассмотрении относительных процентных ошибок. Текущие значения ошибки, вычисленные как разности между измеренными значениями величины и ее значениями, вычисленными по модели, относят к текущему, среднему или к максимальному измеренному значению. Текущую относительную ошибку рассматривают в том случае, если на всем множестве значений аргумента значения функции мало изменяются. В исходных данных $C_{uR}(x)$ концентрация принимает значение от 22 до 26315, ввиду чего использование текущей относительной ошибки для оценки качества моделей нецелесообразно.

В качестве оценок качества полученных моделей примем отношения их стандартных отклонений – корней из остаточных дисперсий – к средним и максимальным измеренным значениям концентраций.

В таблице 4 представлены значения оценок качества:

– относительная средняя погрешность:

$$\delta_{c\ j}[\%] = \frac{\sum_{i=1}^{n}\left(C_{u\ ji} - C_{j\ Ri}\right)^2}{(n-1)C_{uc}} \cdot 100, \tag{13}$$

– погрешность по отношению к $C_{u\,\max}$:

$$\delta_{m\ j}[\%] = \frac{\sum_{i=1}^{n}\left(C_{n\ ji} - C_{j\ Ri}\right)^2}{(n-1)C_{u\max}} \cdot 100, \tag{14}$$

где i – номер реального измеренного значения концентрации; $C_{u\ ji}$ – измеренное значение концентрации; $C_{j\ Ri}$ – вычисленное по модели j значение концентрации; $C_{n\ c}$ – среднее арифметическое значение измеренных значений концентрации; $C_{n\,\max}$ – максимальное измеренное значение концентрации.

Поскольку определенный интеграл от $C_j(x)$ по глубинам от верхней границы насыпного слоя до его нижней границы характеризует накопленное в слое количество РН, рассмотрена также интегральная погрешность:

$$\delta_{m\ j}[\%] = \frac{I - \int_{x_1}^{x_2} C_j(x)dx}{I} \cdot 100,$$

где I – значение интеграла от C_u, вычисленное по формуле Симпсона. При расчетах использованы следующие значения: $n = 6$, $C_{n\,\max} = 26315$, $C_{u\,c} = 11669$, $I = 81330$.

Таблица 4 – Характеристики качества моделей

Номер модели j	1	2	3	4
δ_{cj}	22,34	19,48	24,11	18,41
δ_{mj}	9,89	7,49	10,67	14,65
δ_{nj}	24,66	22,37	27,6	19,6

Из таблицы 4 видно, что наилучшей является модель $C_1(x)$, далее следуют $C_2(x)$ и $C_3(x)$. При использовании в решении (12) более пяти гармоник точность практически повышается несущественно. Ввиду того, что насыпной и подстилающий слой имеют разные свойства, модель концентрации ^{234m}Pa является композиционной соответственно глубине поверхности раздела слоев $x_m = 17{,}5$.

Удовлетворительным качеством обладает полученная по МНК модель:

$$C_4(x) = \begin{cases} 6{,}288 \cdot 10^7 - 1{,}186 \cdot 10^7 x + 7{,}426 x^2 - 1{,}542 \cdot 10^4 x^3, & x \le 17{,}5, \\ -1{,}426 \cdot 10^8 + 2{,}27 \cdot 10^7 x - 1{,}20 \cdot 10^6 x^2 + 2{,}11 \cdot 10^4 x^3, & x \ge 17{,}5. \end{cases} \quad (15)$$

Характеристики качества модели $C_4(x)$ также представлены в таблице 4. Погрешности модели $C_4(x)$ оценивались, исходя из измеренных и вычисленных по этой модели значений концентрации. Второе уравнение в системе (15) определяет начальное условие для насыпного слоя. Концентрации РН по границе защитного и насыпного слоев незначительны по сравнению с их максимальными и средними значениями. Если принять значение x_1, соответствующее значению $C(x)$, которым можно пренебречь, точность моделирования повышается.

Сомножитель со временами полураспадов РН в решение уравнения (12) не введен, поскольку он практически не влияет на результаты [3].

Представленные зависимости позволят решить задачи диффузии РН в насыпном слое хвостохранилища.

Выводы

Получены аппроксимирующие модели зависимостей концентрации РН от глубины в насыпном радиоактивном слое. Решено уравнение диффузии с использованием полученных моделей. Оценка качества моделирования пространственных распределений концентраций РН в насыпном слое хвостохранилища «Днепровское» позволяет сделать вывод об их удовлетворительной точности.

Перспективой дальнейших исследований является разработка модели пространственно-временных изменений концентрации загрязняющих веществ в подстилающем водоносном слое.

Библиографический список использованной литературы

1. Миронов В.П. Обращение с радиоактивными отходами: учебно-метод. пособие / В.П. Миронов, В.В. Журавков. — Минск: МГЭУ им. А.Д. Сахарова, 2009. — 172 с.

2. Лыков А.В. Тепломассообмен / А.В. Лыков. — М.: Энергия, 1978. — 479 с.

3. Моделирование долгосрочной миграции ^{137}Cs и ^{90}Sr в непроточном пресноводном водоеме / С.В. Фесенко, О.Г. Скотникова, А.М. Скрябин, Н.Г. Сафронова, И.А. Гончаренко.// Радиационная биология. Радиоэкология. — 2004. — Т. 44. — № 4. – С. 466–472.

4. Шарафутдинов Р.Б. Моделирование диффузии радионуклидов из приповерхностных хранилищ жидких РАО / Р.Б. Шарафутдинов, О.Н. Ушанов, В.И. Корж. // Ядерная и радиационная безопасность. — 2008. — № 1. — С. 18–25.

5. Фарлоу С. Уравнения с частными производными для научных работников и инженеров / С. Фарлоу. — М.: Мир, 1985. — 383 с.

6. Хрущов Д.П. Дослідження характеристик промислових відходів на хвостосховищі «Дніпровське» / Д.П. Хрущов. — К.: НАН України, 2008. — 101 с.

7. Костылев А.А. Статистическая обработка результатов экспериментов / А.А. Костылев. — Л.: Энергоатомиздат, 2001. — 305 с.

Поступила в редакцию 17.12.2013 г.

Осадчий Ю.М., Заніздра В.С. Апроксимація залежностей концентрації радіонукліда від глибини в шарі сховища твердих відходів

Виконан аналіз результатів вимірів концентрацій радіонуклідів залежно від глибини, обґрунтовано обрана модель, що адекватно відображає властивості цієї функції. Представлені результати розв'язку рівняння дифузії з використанням обраної моделі.

Ключові слова: концентрація, радіонуклід, дифузія, апроксимація.

Osadchii Y.M., Zanizdra V.S. Approximation of the dependencies to concentrations of radionuclide from depth in layer vault hard waste

The executed analysis of result measurements concentration radionuclide depending on depths, validly chose model, adequately reflecting characteristic to this functions. The presented results of the decision of the equation to diffusions with use to selected model.

Keywords: concentration, radionuclide, diffusion, approximation.