

ANÁLISIS DEL TRANSPORTE Y DIFUSIÓN DE RADIONUCLEÍDOS EN FORMACIONES ROCOSAS PROFUNDAS

Fernando Quintana, Luis Guarracino, Arturo M. Bevilacqua

Centro Atómico Bariloche.
Comisión Nacional de Energía Atómica
Av. Bustillo km 9.5, 8400 Bariloche, Argentina
e-mail: temadi@cab.cnea.gov.ar

Key words: Medios porosos, Elementos Finitos, Transporte, Difusión.

Resumen

La predicción del transporte y difusión de radionucleídos en formaciones geológicas profundas es de gran importancia en el estudio de los efectos locales del emplazamiento de un repositorio de residuos radiactivos de alta actividad. La complejidad de los fenómenos involucrados impone restricciones al uso de técnicas analíticas por lo que el empleo de modelos computacionales resulta indispensable. En este sentido, el objetivo de este trabajo es simular la migración de radionucleídos provenientes de un repositorio de alta actividad en un macizo rocoso. Dado que los isótopos tienen propiedades físico-químicas diferentes, sufren procesos tales como combinación química, absorción y desintegración que afectan en forma sensible la migración de los mismos.

El recinto de estudio presenta las zonas saturada y no saturada, por lo que para describir el flujo de agua deberá resolverse la ecuación de Richards junto con un modelo constitutivo adecuado para el medio poroso que se intenta simular. Para aproximar la ecuación de Richards se utiliza el método de elementos finitos con aproximación de Galerkin. Las no linealidades de la ecuación se tratan mediante un algoritmo de Picard. El campo de velocidades resultante es utilizado para resolver el problema de transporte de radionucleídos.

La migración de una sustancia soluble en agua se simula mediante la ecuación de advección-difusión-reacción. Para su aproximación se utiliza el algoritmo de tipo estabilizado *Sub Grid Scale*. Las posibles no linealidades provenientes de la dependencia de los coeficientes con la concentración son tratadas mediante un esquema iterativo de tipo Picard.

En ambos casos la aproximación temporal de las ecuaciones se realiza mediante un esquema Crank-Nicholson con extrapolación de Richardson. Los sistemas de ecuaciones algebraicas resultantes se resuelven empleando un método iterativo (gradientes conjugados cuadrados) con preconditionamiento de tipo LU incompleto.

1 INTRODUCCIÓN

El objetivo de la inmovilización de los residuos radiactivos es mantenerlos aislados durante un período de tiempo tal que hayan decaído lo suficiente como para que su impacto ambiental sea mínimo. Con tal finalidad se estudian configuraciones típicas llamadas repositorios para la disposición final de los residuos en formaciones geológicas que aseguren que los mismos estarán confinados el tiempo suficiente, teniendo en cuenta criterios de seguridad radiológica recomendados por Organismo Internacional de Protección Radiológica (ICRP).

El objetivo de los mismos es asegurar un riesgo individual bajo adoptando un límite de dosis razonablemente pequeño, reducir el impacto radiológico global todo lo que sea posible y asegurar una dosis colectiva total del mismo orden que el de otras etapas del ciclo combustible. El riesgo individual bajo se logra mediante barreras de ingeniería mientras que el confinamiento geológico reduce el impacto global.

En la Argentina las formaciones geológicas adecuadas que han sido objeto de estudio son rocas cristalinas de tipo granítico a una profundidad igual o mayor que 500 m situadas en zonas de bajo riesgo sísmico⁹.

En este trabajo se presenta un análisis numérico con el objeto de valorar la incidencia de las variables más significativas en el problema de transporte y difusión de radionucleídos en medios porosos.

Se resuelve el flujo de agua en un dominio bidimensional utilizando datos reales y luego se utiliza el campo de velocidades para resolver un problema de advección-difusión-reacción. Para el término difusivo es preciso tener en cuenta la difusión molecular del radionucleído en agua y la dispersión del mismo en el medio poroso. Para el término de reacción es necesario especificar el decaimiento que depende del radionucleído en estudio.

2 DESCRIPCIÓN DEL PROBLEMA

El dominio en estudio es un recinto cuadrado de 1000 m de lado en el que se ha simulado la liberación de un radionucleído en una zona de 250 m de extensión situada a 500 m de profundidad. Interesa estudiar el transporte y difusión del mismo.

De acuerdo a trabajos previos⁵ donde se sientan las bases conceptuales de un repositorio, no todos los radionucleídos presentan interés en ser estudiados, ya que hay múltiples factores a tener en cuenta, como por ejemplo el período de semi-desintegración de cada uno, su actividad química, la mayor o menor fijación del mismo al medio ya sea por absorción, adsorción o combinación química. Resultan de interés aquellos que poseen un período de semi-desintegración mayores a 10^4 años y poca actividad con el medio circundante.

Dadas las dimensiones del problema, es claro que el mismo presenta múltiples escalas. En el presente trabajo se concentra el interés en la macroescala ya que resulta de interés estudiar el comportamiento de la barrera geológica.

El medio poroso es una roca de tipo granítica, cuya porosidad es muy pequeña. Sin embargo esta roca puede presentar micro fisuración y también grandes fracturas. En este trabajo y por el tipo de roca estudiada, interesa estudiar la influencia de una microfisuración sin orientación preferencial.

Dado que las velocidades del agua pueden resultar muy pequeñas, y que los valores de los parámetros utilizados para la difusión molecular en agua de un radionucleído como para la dispersión suelen presentar un rango amplio de variación, el modelo puede ser de advección dominante o de difusión dominante. Asimismo la velocidad del agua se ve notablemente afectada por la hipótesis que se haga en cuanto a la fisuración del granito.

En este trabajo se ha supuesto un flujo regional moderado con el objeto de estudiar los tiempos necesarios para que los procesos de transporte y difusión de un radionucleído permitan que el mismo llegue a los límites del recinto en estudio.

3 ECUACIONES DE GOBIERNO

El flujo de aguas en las zonas saturada y no saturada se calcula mediante la ecuación de Richards. La misma se obtiene combinando la ecuación de conservación de la masa de agua con la ley experimental de Buckingham-Darcy bajo las hipótesis de que el medio poroso es indeformable y la densidad del agua permanece constante. La expresión de la ecuación de Richards es²:

$$C(H) \frac{\partial H}{\partial t} - \nabla \cdot [K(H) \nabla H] = 0 \quad (1)$$

siendo H la altura hidráulica, $C(H) = \frac{\partial \theta}{\partial H}$ la variación del contenido de agua θ , y $K(H)$ la conductividad hidráulica. Para resolver esta ecuación se utilizaron expresiones de $C(H)$ y $K(H)$ calculadas a partir del modelo constitutivo presentado en la sección 4.

La migración de radionucleídos en el medio poroso se simula mediante la ecuación de Convección Difusión Reacción cuya expresión es²:

$$R \frac{\partial c}{\partial t} + \nabla \cdot (cV) + \nabla \cdot (-D \cdot \nabla c) + R\lambda c = f \quad (2)$$

siendo R el factor de retardo, c la concentración del radionucleído, V la velocidad del agua, f un término fuente/sumidero, λ el coeficiente de decaimiento, que se calcula como $\lambda = \frac{\ln 2}{\tau_{1/2}}$ donde $\tau_{1/2}$ es el período de semidesintegración, y D es el tensor de dispersión hidrodinámica cuya expresión es:

$$D = D_d I + D_\theta$$

donde D_d es el coeficiente de difusión molecular isotrópica, I el tensor unidad y D_θ el tensor de coeficientes de dispersión, cuya expresión en índices es¹¹:

$$D_{\theta_{ij}} = \alpha_T |V| \delta_{ij} + (\alpha_L - \alpha_T) \frac{V_i V_j}{|V|} \quad (3)$$

donde α_T y α_L son los coeficientes de dispersión transversal y longitudinal (respecto a la dirección del flujo medio), respectivamente, las cuales son distintos en general y V es la velocidad. El factor de retardo R se calcula⁶ como:

$$R = 1 + \frac{\rho K_d}{\theta} \tag{4}$$

donde ρ es la densidad de la roca y K_d es el coeficiente de absorción.

4 MODELO CONSTITUTIVO

El modelo constitutivo adoptado para el granito es el siguiente:

$$\begin{aligned} K(H) &= K_s K_r(H) \\ \theta(H) &= (\theta_s - \theta_r) S_R(H) + \theta_r \end{aligned} \tag{5}$$

donde K_s es la conductividad hidráulica saturada, K_r es la función conductividad hidráulica relativa, θ_s y θ_r son respectivamente los contenidos saturado y residual de agua, y S_R la función saturación relativa.

Para describir las funciones $K_r(H)$ y $S_R(H)$ se emplearon las siguientes expresiones obtenidas a partir de muestras de granito en laboratorio¹⁰:

$$\begin{aligned} K_r(H) &= \sqrt{S_R(H-z)} \left[1 - (1 - S_R^2(H))^{0.5} \right] \\ S_R(H) &= \left[1 + (0.0466(H-z))^{1/0.3} \right]^{-0.7} \end{aligned} \tag{6}$$

Para incluir el efecto de las fracturas en los parámetros K_s y θ_s se utilizaron las siguientes expresiones⁸

$$\begin{aligned} K_s &= \frac{g \rho d^3}{12 \mu L} \\ \theta_s &= \frac{2d}{L} \end{aligned} \tag{7}$$

donde g es la gravedad, ρ la densidad del agua, d la apertura de las fracturas, μ la viscosidad del agua y L la separación media de las fracturas.

La tabla I muestra los valores K_s , θ_s y θ_r (estimado) para roca sana para roca con 5 diaclasas (fisuras) por metro de 5μ y de 10μ de apertura

Tipo de roca	K_s (m/año)	θ_s	θ_r
Roca sana	4.96×10^{-4}	1.34×10^{-5}	10^{-6}
5 diaclasas/m de apertura 5μ	2.45×10^{-2}	5.0×10^{-5}	10^{-6}
5 diaclasas/m de apertura 10μ	1.96×10^{-1}	10^{-4}	10^{-6}

Tabla I Valores de K_s , θ_s y θ_r para roca sana y roca fisurada

5 CONDICIONES DE CONTORNO

Las condiciones de contorno para el flujo de agua se establecieron de la siguiente forma. En el borde superior, coincidente con la superficie del terreno, se especificó un valor de infiltración de 10^{-5} m/año. En el borde inferior, se supuso un flujo de agua nulo. En los bordes laterales se impusieron condiciones de contorno tipo Dirichlet correspondientes al valor de la altura hidráulica determinada a partir de los valores de las profundidades de la tabla de agua típicos para repositorios de estas características^{5,8}. Los valores utilizados fueron $H=820\text{m}$ en el borde izquierdo y $H=800\text{m}$ en el borde derecho del dominio.

Para el transporte de radionucleídos se asumió una condición de borde tipo Dirichlet en la zona correspondiente al repositorio. En esta región la concentración se consideró igual a uno y representa una fuente que decae exponencialmente. En los bordes laterales, donde el flujo de agua es saliente, se considera que el flujo difusivo es nulo para permitir que el radionucleído atraviese dicha frontera. En el resto de los bordes se especificó un flujo total del mismo nulo.

6 APROXIMACIÓN NUMÉRICA

Es preciso destacar que el presente análisis tiene por objeto estudiar el transporte y difusión de los radionucleídos en granito. Es decir que el punto de partida es suponer que los mismos han logrado superar las barreras de ingeniería que representan el vidrio en el cual están embebidos, el blindaje de plomo y el contenedor de acero. Por lo tanto, el instante inicial $t = 0$ se considera cuando el radionucleído entra en contacto con la roca. Asimismo se supone que el agua es capaz de incorporar como soluto una determinada concentración del elemento en estudio, y esa cantidad, al tiempo $t = 0$ con la actividad del radionucleído al inicio de la simulación es la que en este estudio se designa como concentración unitaria.

Para resolver las ecuaciones del Apartado 3 se utilizan elementos finitos triangulares lineales y una malla no estructurada. El flujo de agua se obtiene utilizando el esquema clásico de Galerkin para la ecuación de Richards, mientras que el problema de transporte-difusión-reacción se utiliza el algoritmo estabilizado *Sub Grid Scale*. Este último código tiene asimismo la posibilidad de elegir el algoritmo SUPG (Streamline Upwind Pétrov Galerkin). Las no linealidades de las ecuaciones se tratan con un esquema iterativo de tipo Picard.

La discretización temporal de ambas ecuaciones se realiza mediante un esquema Crank-Nicholson con extrapolación de Richardson³, lo que permite una aproximación de la derivada temporal de orden $(\Delta t)^3$. Para la resolución de los sistemas algebraicos resultantes, los códigos permiten optar entre esquemas directos (eliminación de Gauss) ó iterativos tales como gradientes conjugados cuadrados con o sin preconditionamiento, Gauss Seidel ó GMRES.

7 EJEMPLOS

A continuación se presentan algunos ejemplos numéricos. En los mismos el recinto en estudio es un cuadrado de unos 1000m de lado. En la Figura 1 puede observarse la malla de

elementos finitos utilizada. La misma está formada por elementos triangulares lineales. Es de tipo no estructurada con tamaños variables y consta de 4828 elementos y 2490 nodos (Fig. 1).

Se ha modelado una galería horizontal de unos 250m situada sobre el borde izquierdo del dominio a 500m de profundidad. Sobre la misma se supondrá que se produce la liberación de

un radionucleído imponiendo una condición de borde tipo Dirichlet $c = e^{-\frac{t}{\tau_{1/2}}}$

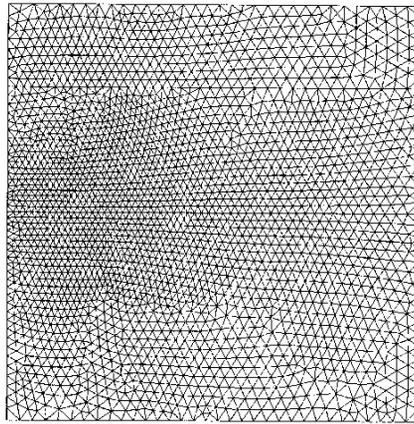


Figura 1: Malla de elementos finitos. 4828 elementos, 2490 nodos

Se ha supuesto un espesor de la zona no saturada de aproximadamente 200m. Entre los radioisótopos de período de semidesintegración de miles de años, los que a los fines de estudiar migración en un repositorio presentan interés son: ^{129}I , ^{237}Np , ^{99}Tc , ^{135}Cs , ^{93}Zr , y ^{59}Ni .

En este trabajo se estudian en particular ^{99}Tc y ^{237}Np debido a que los mismos presentan muy diferentes coeficientes de absorción Kd y pueden servir a los efectos de comparar la influencia del mismo. En la tabla II se indican K_D , $\tau_{1/2}$, D_d , y $\alpha_L = \alpha_T$ para el ^{99}Tc y el ^{237}Np . El valor utilizado para la densidad del granito es 2.67 gr/cm^3 .

Radioisótopo	$K_D \text{ (cm}^3/\text{gr)}$	$\tau_{1/2} \text{ (años)}$	$D_d \text{ (m}^2/\text{año)}$	$\alpha_L = \alpha_T \text{ (m)}$
^{99}Tc	0	2.10×10^6	1.26×10^{-3}	0.001
^{237}Np	1	2.14×10^6	1.26×10^{-5}	0.001

Tabla II Valores de K_D , $\tau_{1/2}$, D_d , y α utilizados en los ejemplos

Los ejemplos para los cuales se presentan resultados son los siguientes:

Ejemplo 1: ^{99}Tc , $Kd=0$ Suponemos que la concentración de ^{99}Tc en el repositorio cae con una ley exponencial decreciente con período de semidesintegración: 2.1×10^6 años. En la Figura 2 se observa la concentración de ^{99}Tc al cabo de 1.2×10^7 años suponiendo que la roca está libre de fisuras.

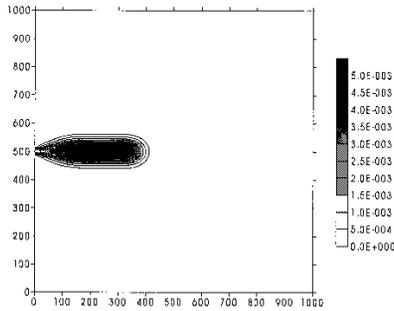


Figura 2: Concentración de ^{99}Tc en roca sana luego de 1.2×10^7 años de simulación.

En la Figura 3 se observa la concentración de ^{99}Tc al cabo de 1.2×10^6 años. Se supone que la roca tiene 5 diaclasas por metro de una apertura $d=5\mu$

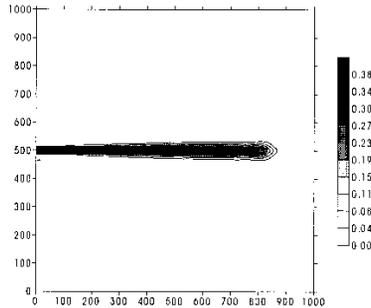


Figura 3: Concentración de ^{99}Tc en roca fracturada ($d=5\mu$) luego de 1.2×10^6 años de simulación.

En la Figura 4 se observa la concentración de ^{99}Tc al cabo de 1.2×10^5 años. En este caso se ha supuesto que la roca presenta 5 diaclasas por metro de una apertura $d=10\mu$

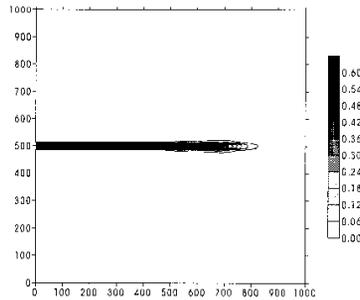


Figura 4: Concentración de ^{99}Tc en roca fracturada ($d=10\mu$) luego de $1.2 \cdot 10^5$ años de simulación.

De la comparación entre las figuras 2, 3 y 4 surge claramente que la fisuración de la roca juega un rol muy importante en la migración de un radionucleído con bajo coeficiente de absorción como el ^{99}Tc . Este hecho se observa comparando las figuras citadas, ya que la naturaleza del problema pasa de ser claramente difusivo a fuertemente advectivo a medida que se supone un medio con más fracturas.

Ejemplo 2: Se estudia el transporte y difusión de ^{237}Np . El coeficiente de absorción utilizado es $Kd=100$. Suponemos que la concentración de ^{237}Np en el repositorio cae con la ley exponencial decreciente del mismo (período de semidesintegración: 2.17×10^6 años). En la Figura 5 se observa la concentración de ^{237}Np al cabo de 10^7 años en roca libre de fisuras. La Figura 6 muestra la concentración del mismo al cabo de 10^7 años de evolución suponiendo que la roca presenta 5 diaclasas por metro de apertura promedio 10μ .

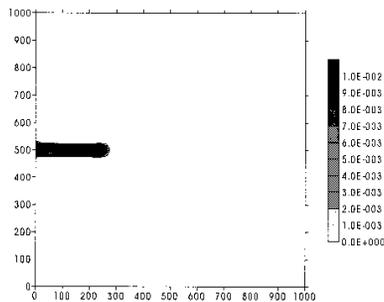


Figura 5: Concentración de ^{237}Np en roca sana luego de 10^7 años de simulación.

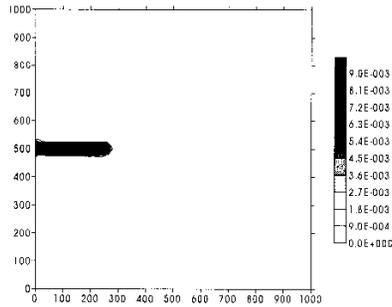


Figura 6: Concentración de ^{237}Np en roca fracturada ($d=10\mu$) luego de 10^7 años de simulación.

En el caso del ^{237}Np se observa comparando con el ^{99}Tc que el coeficiente de absorción tiene gran incidencia en la migración del mismo, ya que a pesar de haber simulado una roca con 5 diaclasas por metro de 10μ de apertura, la migración del radioisótopo es limitada

8 CONCLUSIONES

Del análisis de los ejemplos numéricos puede concluirse que en base a la herramienta desarrollada es posible estudiar la influencia de factores tales como la fisuración de la roca, el período de semidesintegración del radionucleído o el coeficiente de absorción del mismo.

A pesar que, dependiendo del coeficiente de difusión molecular en agua utilizado o de la fisuración supuesta, la relación entre término difusivo y término advectivo varía sustancialmente, el código se mostró robusto y confiable, obteniendo soluciones estables en todos los casos.

9 REFERENCIAS

- [1] Carsel, R. F.; Parrish, R. S. *Developing joint probability distributions of soil water characteristics*. Water Resour. Res., v. 24, p. 755-769, 1988.
- [2] Fetter, C. W. *Contaminant Hydrogeology*. Ed. Prentice-Hall, 1993.
- [3] Módena, R.; Vénere, M; Quintana, F. *Estudios de esquemas para la integración temporal en problemas transitorios de difusión-reacción*. Mec.Comp. (AMCA),v. 18, p.867-876, 1997.
- [4] Van Genuchten, M. T. *A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils*. Soil Sci. Soc. Am. J., v. 44, p. 892-898, 1980.
- [5] Palacios, E., Ferreri, J.C. *Marco conceptual para el desarrollo de los modelos de predicción de los efectos locales de un repositorio de residuos radiactivos de alta actividad*. Informe CNEA NT 48/85 REPO-15. Presentado en la XII AATN, 1984.
- [6] Robinson, B. Bussod, G. *Radionuclide transport in the unsaturated zone at Yucca Mountain: Numerical model and preliminary field observations*. Dynamics of fluids in fractured rock. Geophysical monograph 122. American Geophysical Union. 2000.

- [7] Juncosa, R. *Modelos de flujo multifásico no isoterma y de transporte reactivo multicomponente en medios porosos*. Enresa. Publicación técnica 01/2001 ISSN 1134-380X.
- [8] Ventura, M. *Caracterización conceptual del sistema de fracturas del medio rocoso de Sierra del Medio (Chubut)*. CNEA NT 27/89
- [9] Grandi, G. *Modelos computacionales de la hidrodinámica de medios porosos fracturados*. Tesis doctoral. Instituto Balseiro. Ing. Nuclear. 1988.
- [10] ENRESA, FLEBEX, *Full-scale engineered barriers experiment in crystalline host rock*, Publicación Técnica Nro. 09/97, pp. 189, España, 1997.
- [11] Módena, R *Simulación computacional de la dinámica de contaminantes en suelos* . Tesis Doctoral Ing. Nuclear. Instituto Balseiro. Universidad Nacional de Cuyo Junio de 1998