

# 核素迁移软件 (MNS) 在核素近场 扩散模拟中的应用

李 遥, 李睿豪, 周 舵, 陈 曦, 徐毓炜, 王 波

中国原子能科学研究院放射化学研究所, 北京 102413

**摘要:** 预测关键核素在高放废物深地质处置相关介质中的吸附和扩散行为是处置库安全评价的核心之一。中国原子能科学研究院处置化学团队开发了一款核素迁移软件(MNS), 该软件通过内嵌 GID 软件实现三维体系模型建立, 依据已有的核素迁移扩散数据代入扩散方程, 根据边界条件, 求解得到关键核素在二维或三维体系中的浓度分布。该软件的计算原理是基于水的迁移方程和放射性核素的吸附方程; 主要计算过程包括前处理和后处理过程。其中, 前处理过程主要有空间模型构建和赋值, 后处理过程主要包括获得任意位置或时间的关键核素浓度分布以及核素浓度和水流速空间分布等。同时, 通过输入相同的初始数据, 对比了该软件与成熟软件 COMSOL 和解析解的计算结果, 初步验证了该软件的可靠性。此外, 借鉴韩国和瑞典等国较为成熟的处置库设计体系建立了真实尺寸的处置库近场模型, 依靠已有的吸附和扩散数据, 使用该软件模拟预测了<sup>79</sup>Se、<sup>99</sup>Tc 和<sup>129</sup>I 在百万年尺度上的扩散过程, 初步评估了大气条件下高庙子膨润土和北山花岗岩对这三种关键核素的阻滞能力。模拟结果表明: 膨润土能在数万年内有效阻滞<sup>79</sup>Se、<sup>99</sup>Tc 和<sup>129</sup>I 的扩散, 而完整的花岗岩能够在数十万年内有效阻滞<sup>79</sup>Se、<sup>99</sup>Tc 和<sup>129</sup>I 的扩散, 其中, 膨润土和花岗岩对<sup>79</sup>Se 的阻滞效果最好。

**关键词:** 高放废物处置; 核素扩散; 预测

中图分类号: TL942.1; TP311.1

文献标志码: A

文章编号: 0253-9950(2025)02-0175-06

doi: 10.7538/hhx.2025.47.02.0175

## Application of Radionuclides Migration Software(MNS) in Radionuclides Diffusion Modeling

LI Yao, LI Rui-hao, ZHOU Duo, CHEN Xi, XU Yu-wei, WANG Bo

Department of Radiochemistry, China Institute of Atomic Energy, Beijing 102413, China

**Abstract:** The prediction of adsorption, diffusion and migration behavior of critical radionuclides in the related media of deep ground disposal of high level radioactive waste(HLW) is one of the cores for the safety evaluation of the HLW disposal repository. The availability of tools for modeling radionuclide diffusion in China remains limited. To satisfy the need of the prediction of radionuclides in long time and large scale, the disposal chemistry team at China Institute of Atomic Energy developed a radionuclide migration software, MNS, which could implement 2D or 3D system modeling by GID software and provide the concentration distribution of radionuclides in desired time and space point. In this research, the basic information of MNS software is introduced, including the calculation mechanism and calculation

收稿日期: 2023-11-28; 修订日期: 2024-04-17

基金项目: 中国原子能科学研究院放射化学研究所青年基金项目

process, the calculation mechanism is based mainly on the basic equation of water migration, radionuclides adsorption and diffusion. The workflow consists of pre-processing and post-processing stages. Pre-processing involves the construction of spatial models and parameter assignment, such as porosity, mineral density, radionuclide diffusion and migration parameters, and water flow velocity. The post-processing mainly consists of the obtain of the concentration of radionuclides and the distribution of water flow in any desired space point or time. Meanwhile, the results calculated by analytical software, COMSOL and MNS by inputting the same diffusion and adsorption data of critical radionuclides in the same space model were compared. The calculation results are almost the same, verifying preliminarily that this software is reliable. Besides, based on the developed repository design(mainly depend on the mature design of Sweden and Korea) and existing adsorption and diffusion data, the software is used to model the diffusion processes of  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  and  $^{129}\text{I}$  in Gaomiaozi bentonite(the first choice of the buffer materials in deep ground disposal of HLW) and Beishan granite(Beishan is the first selection area for the disposal repository of HLW in China, also the place where the Beishan Underground Research Laboratory is constructed) under the atmospheric conditions on the scale of millions of years. The space model is the ture size of the repository design based on the results, the inhibition property of Gaomiaozi bentonite and Beishan granite to those radionuclides is preliminarily evaluated. The modeling results indicate that bentonite could hinder the diffusion of  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  and  $^{129}\text{I}$  in ten thousands of years and the dense Beishan granite can effectively block the diffusion of  $^{79}\text{Se}$ ,  $^{99}\text{Tc}$  and  $^{129}\text{I}$  in hundreds of thousands of years, both Gaomiaozi bentonite and the dense Beishan granite can hinder the diffusion of  $^{79}\text{Se}$  better.

**Key words:** HLW disposal; radionuclides diffusion; prediction

深地质处置是国际公认的处置高放废物的方法<sup>[1]</sup>,在该方法中,高放废物将被放置在距离地表500~1 000 m的岩石中,并设计多重屏障体系将其隔绝。多重屏障体系包括天然屏障和工程屏障<sup>[2-3]</sup>,其中,工程屏障由玻璃固化体、储存罐/金属外包壳、缓冲回填材料等组成,这些材料能够起到阻滞关键核素扩散和迁移的作用。我国已选择甘肃北山地区作为处置库的首选预选区,并开始建设北山地下实验室,北山地区的主要岩石类型为花岗岩,高庙子膨润土是我国处置库首选缓冲回填材料<sup>[4]</sup>,因此需要获得关键核素在北山花岗岩和高庙子膨润土中的吸附和扩散参数,为安全评价提供基础数据。

由于高放废物的放射性水平需要10 000~1 000 000 a才能衰变到天然铀水平<sup>[5]</sup>,因此需要模拟预测高放废物中的关键核素在长时间尺度上的扩散,为处置库长时间安全评价提供重要支撑<sup>[4]</sup>。国际上已有一些商用软件如GoldSim和COMSOL等来模拟关键核素在处置库场址中的扩散和迁移,并在关键核素扩散迁移方面有所应用<sup>[6-7]</sup>,但国内涉及关键核素迁移的模拟软件较少。为模拟近场环境中关键核素的迁移,中国原

子能科学研究所处置化学团队开发了近场迁移软件MNS(软件著作权登记号2021SR1995121<sup>[8]</sup>),该软件通过GID软件构建近场体系的二维或三维空间模型,结合已经获得的关键核素在相关介质中的吸附和扩散数据,模拟预测关键核素在处置库近场的迁移行为。

$^{79}\text{Se}$ 半衰期为 $2.95 \times 10^5$  a<sup>[9]</sup>,在北山地下水中的主要种态为 $\text{HSeO}_3$ 和 $\text{SeO}_3^{2-}$ <sup>[10]</sup>;  $^{99}\text{Tc}$ 半衰期为 $2.1 \times 10^5$  a,在北山地下水中的主要种态为 $\text{TcO}_4^-$ <sup>[11]</sup>;  $^{129}\text{I}$ 半衰期为 $1.57 \times 10^7$  a<sup>[12]</sup>,在北山地下水中的主要种态为 $\text{I}^-$ <sup>[13]</sup>。由于这三种关键核素具有较高的迁移扩散能力和较长的半衰期,是深地质处置中需要考虑的关键核素,本工作拟主要模拟这三种关键核素在北山花岗岩和高庙子膨润土中的扩散情况,以初步评估北山花岗岩和高庙子膨润土对这几种关键核素的阻滞能力。

## 1 MNS 软件

MNS软件包括前处理和后处理过程。在前处理过程主要是设立相关模型以及代入相关参数,求解得到一定时间后关键核素在设定场景的空间分布。在后处理过程中,对所建立空间模型

进行剖分,可以获得任意时间或任意空间的核素浓度分布,定性定量评价关键核素迁移扩散水平。

### 1.1 空间模型建立以及初始条件设置

软件内嵌 GID 软件作为三维空间软件由欧洲国际工程计算方法研究中心开发。该软件通过点、线、面和三维立体的层级结构构建二维和三维的空间结构模型,通过平移、扩展等操作构建不同结构之间的链接,并对所建立的空间结构进行网格化处理,构建有限网格体系,以便后续计算。

在前处理过程,主要是对研究的空间结构进行相关参数赋值。主要的赋值内容有相关介质的水力学参数(关键核素扩散系数、介质密度、介质含水率和关键核素弥散系数、水流量和水头等)、关键核素的源(源的类型有点、面和三维立体,释放过程有恒定浓度连续释放和脉冲形式单次释放)、关键核素在介质中的行为(吸附行为,包括线性吸附和非线性吸附)以及关键核素的衰变。所有的初始值在计算开始前需要被确认,在计算过程中这些值不会发生变化。

### 1.2 水流数学模型

水流数学模型如式(1)。

$$S \frac{\partial H}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( K_{xx} \frac{\partial H}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_{yy} \frac{\partial H}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( K_{zz} \frac{\partial H}{\partial z} \right) + Q \cdots \cdots \quad (1)$$

式中:  $S$  为贮水率;  $H$  为水头;  $K$  为渗透系数;  $Q$  为体积源汇;  $x$ 、 $y$ 、 $z$  为直角坐标系下坐标分量。

### 1.3 核素迁移数学模型

核素迁移数学模型如式(2)。

$$\frac{\partial}{\partial t} (\theta C + \rho F) = \nabla \cdot (D_h \nabla (\theta C)) - \nabla \cdot (v \theta C) - \lambda (\theta C + \rho F) + M \cdots \cdots \quad (2)$$

式中:  $C$ , 液相中核素浓度;  $F$ , 固相中核素浓度;  $\rho$ , 固相密度;  $\theta$ , 含水率;  $D_h$ , 水动力弥散系数;  $\lambda$ , 核素衰变常数;  $M$ , 核素源汇;  $t$ , 时间;  $\nabla$ , 梯度算子;  $v$ , 水流速率。依据划分的空间网格,设置合适的步数和步长,使用差分法获得上述方程的数值解<sup>[14-15]</sup>,进而得到关键核素在空间中的浓度分布。

### 1.4 结果分析

依托 GID 软件的后处理功能,可以给出核素在所建立的二维或三维空间的迁移扩散结果。通过对二维或三维空间剖分、选点或选线,可以得到关键核素在某点的浓度随时间变化的曲线

或在某条线上的浓度分布。此外,在处理弥散问题时,还可以得到水流速在空间中的分布。

### 1.5 软件有效性分析

该软件主要使用有限差分法获得扩散方程的数值解,为验证结果的可靠性,设置了简单二维体系关键核素的扩散,在相同扩散参数的情况下,分别使用 MNS 软件、商用软件 COMSOL 以及解析解<sup>[16]</sup>进行求解,核素的初始浓度为  $1000 \text{ mol/m}^3$ ,介质的密度为  $1700 \text{ kg/m}^3$ ,孔隙度 0.2,长 2 m,关键核素在介质中的有效扩散系数( $D_e$ )为  $5.6 \times 10^{-10} \text{ m}^2/\text{s}$ ,吸附分配系数为 0。核素在不同距离的浓度分布示于图 1。通过对比 MNS 软件求解结果、解析求解结果和成熟商用软件 COMSOL 的计算结果,发现三者结果基本一致,初步表明: MNS 软件的计算结果可靠。

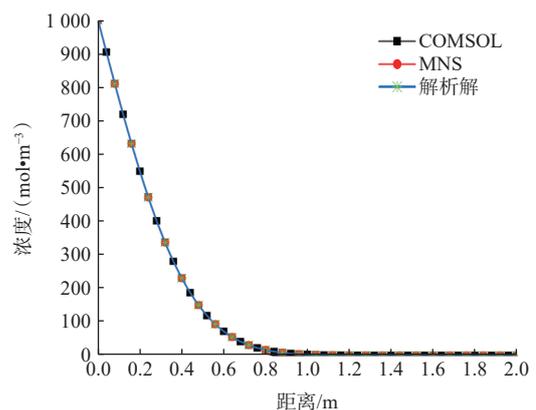


图 1 不同方法得到的核素的空间分布

Fig. 1 Spatial distribution of nuclides obtained by different methods

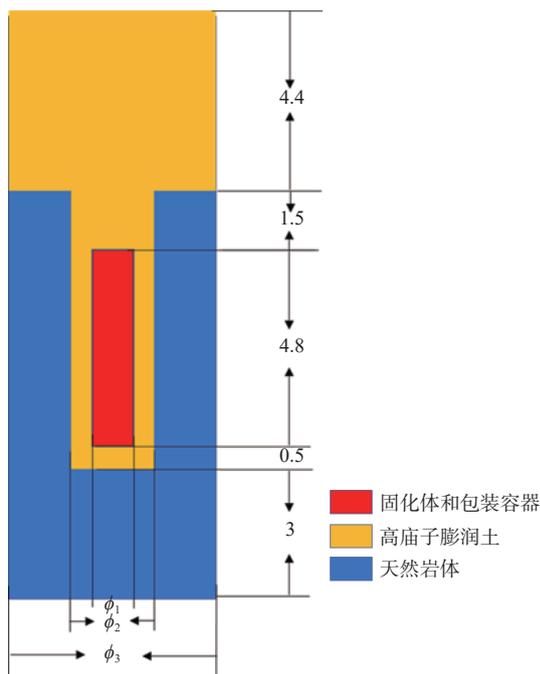
## 2 模拟 Se、Tc、I 在近场条件下的扩散

$^{79}\text{Se}$ 、 $^{129}\text{I}$  和  $^{99}\text{Tc}$  是高放废物深地质处置条件下重点关注的关键核素,目前已经有大量关于这三种关键核素在高庙子膨润土和北山花岗岩中的吸附和迁移数据的报道。依靠这些数据,结合 MNS 核素迁移软件,模拟关键核素在处置条件下的迁移过程,初步评估相关介质对关键核素的阻滞能力。

### 2.1 模型建立

由于国内还未确定深地质处置相关介质的空间信息,主要借鉴瑞典(KBS-3)和韩国(KRS)已有高放废物深地质处置设计进行计算<sup>[17-18]</sup>。所建立的三维结构为圆柱形,其剖面图示于图 2。内部

为一个直径 1 m、高 4.8 m 的废物固化体和金属外包壳, 由于国内几乎没有关键核素在固化体中的释出信息和在金属外包壳中的有效扩散系数信息, 将关键核素在此部分的扩散忽略, 仅考虑关键核素在膨润土和花岗岩中的扩散。金属外包壳外面为膨润土层, 直径 2 m, 上部高 1.5 m, 下部高 0.5 m。最上部为 4.4 m 高、直径 5 m 的回填材料, 为了接近实际体系, 考虑外部存在高度 9.8 m、直径 5 m 的花岗岩层。整个体系不考虑水的流动带来的弥散过程, 仅考虑关键核素的扩散。



$\phi_1$  为固化体和包装容器直径,  $\phi_1=1$  m;  $\phi_2$  为膨润土块直径,  $\phi_2=2$  m;  $\phi_3$  为花岗岩块直径,  $\phi_3=5$  m

图2 计算所使用的近场三维空间图

Fig. 2 3D space diagram of near field used in calculation

所涉及的介质主要有高庙子膨润土和北山花岗岩, 主要需要的数据是其饱和含水率、密度以及关键核素在其中的吸附和扩散系数。对三种核素, 使用相同的介质饱和含水率和密度, 其中, 高庙子膨润土的含水率为 0.3, 密度为  $1600 \text{ kg/m}^3$ , 花岗岩含水率为 0.0084, 密度为  $2600 \text{ kg/m}^3$ <sup>[10]</sup>。有氧条件下,  $^{79}\text{Se}$ 、 $^{129}\text{I}$  和  $^{99}\text{Tc}$  在膨润土和花岗岩中的吸附分配系数和有效扩散系数列入表 1。由于三种阴离子吸附分配系数较低, 在拟合过程中通常极小, 甚至低于 0, 故均使用 0 来代替, 这种把阴离子的吸附分配系数取为 0 的操作在 POSIVA 公司的安全评估中也被采用。

表 1 关键核素的吸附和扩散数据

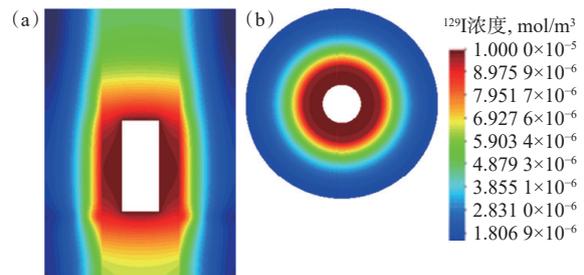
Table 1 Adsorption and diffusion data of critical nuclides

核素	膨润土		花岗岩	
	$K_d/(\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1})$	$D_d/(\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$	$K_d/(\text{m}^3 \cdot \text{kg}^{-1})$	$D_d/(\text{m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$
$^{79}\text{Se}$	0	$1.36 \times 10^{-12}$	0	$4.03 \times 10^{-13}$
$^{99}\text{Tc}$	0	$5.00 \times 10^{-11}$	0	$1.14 \times 10^{-12}$
$^{129}\text{I}$	0	$2.04 \times 10^{-11}$	0	$4.34 \times 10^{-13}$

注:  $^{79}\text{Se}$  数据来自文献[10];  $^{129}\text{I}$  数据来自文献[12, 19-20],  $^{99}\text{Tc}$  数据来自中国原子能科学研究院(测量方法参考前期工作<sup>[20]</sup>)和文献[21]

## 2.2 关键核素浓度分布

$^{129}\text{I}$  在三维体系中的剖面浓度分布示于图 3。由图 3 可知:  $^{129}\text{I}$  在轴向扩散速率较慢, 而在纵向的扩散较快, 这是由于  $^{129}\text{I}$  在膨润土中的有效扩散系数较大。与  $^{129}\text{I}$  类似,  $^{79}\text{Se}$  和  $^{99}\text{Tc}$  在膨润土中的有效扩散系数均比其在花岗岩中的大, 而其吸附分配系数较小, 因此, 其在轴向的扩散较快。



(a)——纵向浓度分布,  
(b)——轴向浓度分布

图3  $^{129}\text{I}$  在空间中的浓度分布

Fig. 3 Concentration distribution of  $^{129}\text{I}$  in space

采用这些核素在水平方向上的扩散进行定量研究。首先考虑在膨润土与花岗岩交界处核素的相对流出浓度 ( $C/C_0$ ,  $C$  为核素的浓度,  $C_0$  为核素的初始浓度) 随时间的变化, 结果示于图 4。由图 4 可知:  $^{79}\text{Se}$  的相对流出浓度最低,  $^{99}\text{Tc}$  和  $^{129}\text{I}$  的相对流出浓度较高, 在 1 万年后,  $^{79}\text{Se}$  的相对流出浓度为 0.2,  $^{129}\text{I}$  的相对流出浓度为 0.81,  $^{99}\text{Tc}$  的相对流出浓度为 0.83; 在十万年后,  $^{79}\text{Se}$  的相对流出浓度为 0.64,  $^{129}\text{I}$  的相对流出浓度为 0.95,  $^{99}\text{Tc}$  的相对流出浓度为 0.96。这种现象是和关键核素的吸附和扩散数据相关的。由表 1 可知,  $^{79}\text{Se}$  在膨润土中的有效扩散系数最小, 因此其相对流出浓度最低。 $^{99}\text{Tc}$  的有效扩散系数相比于  $^{129}\text{I}$  的有效扩散系数略大, 因此  $^{99}\text{Tc}$  的扩散较快, 但差异不大,

这可能是有效扩散系数的敏感性差异造成的。计算结果表明, 这些核素完全穿透完整的膨润土屏障需要 5~10 万年, 高庙子膨润土能够阻滞关键核素扩散。

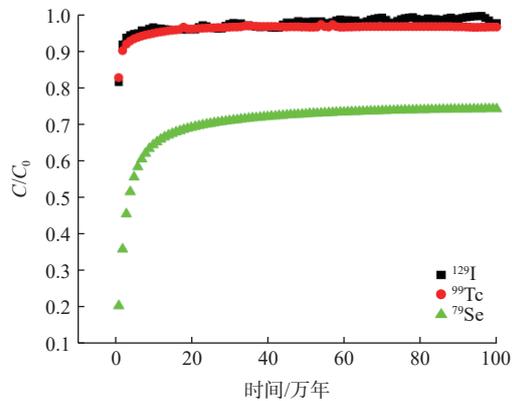


图4 水平方向上膨润土-花岗岩边界核素相对流出浓度随时间的变化

Fig. 4 Changes of relative concentration of nuclides at bentonite-granite boundary over time in horizontal direction

水平方向上关键核素在花岗岩外围(3 m厚花岗岩)的相对流出浓度示于图5。由图5可知: 在所探究的时间尺度内,  $^{99}\text{Tc}$  流出最快,  $^{129}\text{I}$  次之,  $^{79}\text{Se}$  最慢。流出快慢顺序和关键核素在花岗岩中的有效扩散系数成正相关。计算结果表明: 完整的花岗岩能够有效阻滞关键核素的扩散, 其中,  $^{79}\text{Se}$  的相对流出浓度达到其初始浓度的 1% 需要的时间为 7 万年; 在 1 百万年后,  $^{79}\text{Se}$  的相对流出浓度仅为约 25%。 $^{99}\text{Tc}$  的扩散速率较快, 其相对流出浓度在 40 万年左右达到稳定流出状态, 此时相对流

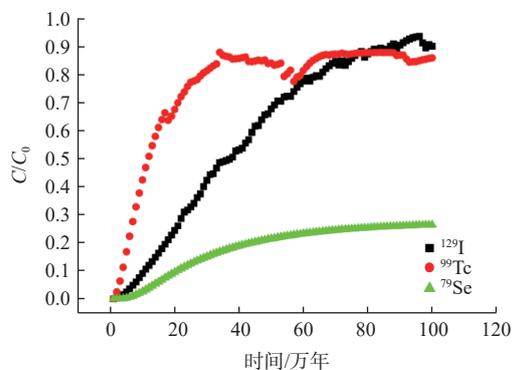


图5 水平方向上关键核素在花岗岩外围的相对流出浓度

Fig. 5 Changes of relative concentrations of critical radionuclides at granite boundaries over time in horizontal direction

出浓度约为 0.85。 $^{129}\text{I}$  的相对流出浓度在 90 万年左右达到稳定流出状态, 其相对流出浓度约为 0.90。因此, 完整的花岗岩能够有效阻滞关键核素的扩散。

### 3 结论

介绍了近场迁移扩散软件 MNS 并初步验证了其计算结果的可靠性, 此外, 初步评估了高庙子膨润土和北山花岗岩对  $^{79}\text{Se}$ 、 $^{129}\text{I}$ 、 $^{99}\text{Tc}$  的阻滞能力。MNS 软件的计算结果与解析解的结果以及商用软件 COMSOL 的计算结果基本相同, 表明其计算结果与目前市面上已存在软件所得结果较为一致, 具有一定的可信度。基于已有的文献数据, 使用 MNS 软件模拟预测了  $^{79}\text{Se}$ 、 $^{129}\text{I}$ 、 $^{99}\text{Tc}$  在处置库三维近场中的扩散, 发现膨润土对这三种关键核素有一定的阻滞能力, 膨润土边缘三种核素浓度达到稳定流出状态需要 5~10 万年。完整的花岗岩能够有效阻滞关键核素扩散, 关键核素达到稳定流出状态需要 40 年以上。

中国原子能科学研究院处置化学团队后续将进一步验证软件的可靠性, 并对软件进行升级改造, 增加多情景分析能力, 综合考虑多变环境(水的流动、介质的腐蚀、胶体的形成和氧化还原条件)下关键核素的行为, 更好地评估关键核素在我国高放废物处置库相关介质中的扩散过程, 为处置库安全评价提供有力支撑。

### 参考文献:

- [1] 郝卿, 刘长良, 杜子冰. 核废料处理方法及管理策略研究[J]. 科技信息, 2012(32): 159-160.
- [2] Rempe N T. Permanent underground repositories for radioactive waste[J]. Prog Nucl Energy, 2007, 49(5): 365-374.
- [3] Chapman N, Hooper A. The disposal of radioactive wastes underground[J]. Proc Geol Assoc, 2012, 123(1): 46-63.
- [4] 王驹. 高放废物深地质处置: 回顾与展望[J]. 铀矿地质, 2009, 25(2): 71-77.
- [5] Oecd. Physics and safety of transmutation systems[J]. OECD Pap, 2006, 6(3): 1-120.
- [6] Pulkkanen V M, Nordman H. Modelling of near-field radionuclide transport phenomena in a KBS-3V type of repository for nuclear waste with goldsim code- and verification against previous methods[R]. Olkiluoto: Posiva Oy, 2010.
- [7] Liang S Y, Lin W S, Lin G F, et al. The effect of porosity change in bentonite caused by decay heat on radionuclide

- transport through buffer material[J]. *Appl Sci*, 2021, 11(17): 7933.
- [8] 中国原子能科学研究院. 基于等温线性吸附的核素迁移数值模拟软件: 中国, 2021SR1995121[P]. 2021-12-03.
- [9] Frechou C, Aguerre S, Degros J P, et al. Improvement of a radiochemical separation for selenium 79: applications to effluents and nuclear wastes[J]. *Talanta*, 2007, 72(3): 1166-1171.
- [10] 杨小雨. 关键核素硒-79 在花岗岩与膨润土中的扩散及矿物组分对其吸附的影响研究[D]. 北京: 北京大学, 2019.
- [11] Li C, Zheng Z, Liu X Y, et al. The diffusion of Tc-99 in Beishan granite-temperature effect[J]. *World J Nucl Sci Technol*, 2013, 3(1): 33-39.
- [12] Wu T, Li J, Dai W, et al. Effect of dry density on  $^{125}\text{I}$  diffusion in GMZ bentonite[J]. *Sci China Chem*, 2012, 55(9): 1760-1764.
- [13] Tian W, Li C, Liu X, et al. The effect of ionic strength on the diffusion of  $^{125}\text{I}$  in Gaomiaozi bentonite[J]. *J Radioanal Nucl Chem*, 2013, 295(2): 1423-1430.
- [14] 张玉军. 核废料地质处置近场热-水-应力-迁移耦合二维有限元分析[J]. *岩土工程学报*, 2007, 29(10): 1553-1557.
- [15] da Silveira C S, Alvim A C M, de Jesus Rivero Oliva J. Radionuclide transport in fractured rock: numerical assessment for high level waste repository[J]. *Sci Technol Nucl Install*, 2013, 2013: 827961.
- [16] Ogata A, Banks R, Udall S, et al. A solution of the differential equation of longitudinal dispersion in porous media[R]. Washington: United States government printing office, 1961.
- [17] Vieno T, Nordman H. Safety assessment of spent fuel disposal in Hiistholmen, Kivetty, Olkiluoto and Romuvaara[R]. Sweden: Posiva Oy, 1999.
- [18] Lee J O, Choi H, Kim G Y. Numerical simulation studies on predicting the peak temperature in the buffer of an HLW repository[J]. *Int J Heat Mass Transf*, 2017, 115: 192-204.
- [19] 陈涛. 碘-129 在北山花岗岩中的迁移研究及 CHEMSPEC 的应用[D]. 北京: 北京大学, 2010.
- [20] 宋志鑫, 包良进, 张言, 等. Tc-99 在混合回填材料中的扩散行为研究[J]. *中国科技纵横*, 2014(10): 280-281.
- [21] 黎春.  $^{99}\text{TcO}_4^-$  在北山花岗岩中的扩散和吸附行为研究[D]. 北京: 北京大学, 2012.