DOI: 10.25283/2587-9707-2024-1-95-104 УДК 621.039

МОДЕЛЬ ДЛЯ ОЦЕНКИ ОБЪЕМА РАССОЛА, ПОСТУПАЮЩЕГО В ХРАНИЛИЩЕ С РАО В ГАЛИТАХ С УЧЕТОМ ИХ МИКРОСТРУКТУРЫ

О. О. Корчагина, Л. В. Матвеев

Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Москва

Статья поступила в редакцию 28 декабря 2023 г.

Предложена модель для оценки объема рассола, поступающего в ПЗРО с тепловыделяющими РАО за счет миграции жидких включений в галитах. В модели учитывается поликристаллическая структура природной каменной соли и соответствующие ей два механизма перемещения рассола: обусловленного термомиграцией внутризеренных включений и за счет переноса рассола по межзеренным каналам. Проведенный анализ показывает, что учет микроструктуры галита играет решающую роль при определении количества поступающего рассола, которое может составлять десятые доли от объема хранилища.

Ключевые слова: *захоронение РАО, галиты, внутрикристаллические и межкристаллические включения, термомиграция, межзеренные каналы, радиоактивные отходы.*

Введение

Известно, что залежи галитов (каменной соли) рассматриваются в качестве вмещающих пород для пунктов глубинного захоронения высокоактивных отходов (ВАО) атомных электростанций [1], [2]. Преимуществами данных сред являются их высокая теплопроводность, необходимая для отвода тепла от радиоактивных отходов (РАО) со значительным остаточным тепловыделением; пластичность, способствующая залечиванию трещин и разрывов; низкое значение проницаемости, что препятствует переносу флюида (а вместе с ним и примесей) на большие расстояния. Однако, несмотря на отсутствие движения грунтовых вод на макромасштабах, в соляных породах всегда присутствуют мелкие включения с характерными размерами 10—100 мкм, содержащие рассол. Они возникают в процессе формирования соляных формаций и находятся в стабильном неподвижном состоянии при условии, что отсутствуют внешние возмущения. При захоронении РАО их остаточное тепловыделение приводит к установлению в окружающих близлежащих областях неоднородного распределения температуры. При этом ее градиент играет роль возмущения, которое приведет к движению упомянутых включений. Именно, в силу роста растворимости соли в воде с температурой, ее концентрация в рассоле внутри включения становится неоднородной: вблизи более горячей стенки она выше, чем вблизи холодной. Вследствие данного перепада на масштабах 10—100 мкм возникают потоки массы, которые приводят к растворению горячей стенки и кристаллизации соли на холодной, и в результате включение движется в направлении более высокой температуры. Если при таком движении оно достигнет поверхности полости с РАО, в которую попадет переносимый включением рассол, то он вызовет коррозию металлических контейнеров с отходами [1]. При

достаточно больших объемах рассола это может привести к потере их герметичности и, как следствие, выходу радионуклидов в окружающую среду. В связи с этим для минимизации рисков при захоронении возникает необходимость в оценке количества рассола, которое может попасть в полость с РАО.

Несмотря на то, что миграция включений с рассолом исследуется достаточно давно, на наш взгляд, проблема оценки поступающих объемов окончательно не решена. В частности, как указано в [2], при оценках потоков не учитывалась микроструктура соляных формаций, а именно, что природные галиты являются поликристаллами и что наряду с изолированными включениями внутри отдельных зерен природные галиты могут содержать связанные системы включений на их границах, образующие каналы. Рассмотрению этого фактора посвящена данная статья.

В настоящей работе описаны виды включений в галите; сформулирована модель миграции отдельных включений с рассолом в поле градиента температуры; проведены оценки его распределения вокруг ПГЗРО в галите, обусловленного остаточным тепловыделением РАО, и допустимого радиуса ПГЗРО, удовлетворяющего требованиям Ростехнадзора [4] при заданной мощности тепловыделения; сформулирована модель, описывающая поступление рассола в область захоронения; представлены результаты расчетов для оценки его объема, выходящего в полость хранилища, без учета микроструктуры галита и с учетом каналов, создаваемых неподвижными включениями на межкристаллитных границах. В заключении приведено обсуждение результатов работы и сформулированы выводы.

Виды включений в галите

Согласно данным [2], в природной каменной соли присутствуют два типа жидких включений: внутрикристаллические и межкристаллические. Первые представлены замкнутыми микрополостями округлой или кубической формы («отрицательные кристаллы») объемом 10^{-5}—10^{-7} мм^3 (рис .1). Указанный во введении механизм движения включений относится именно к этому типу.

Межкристаллические жидкие включения представляют собой взаимосвязанную объемно-пространственную систему капилляров и микрополостей неправильной формы, прилегающую к границам раздела смежных кристаллов галита (рис. 2). В силу того, что зерногранична область обладает избыточной энергией, а нахождение включений на границе

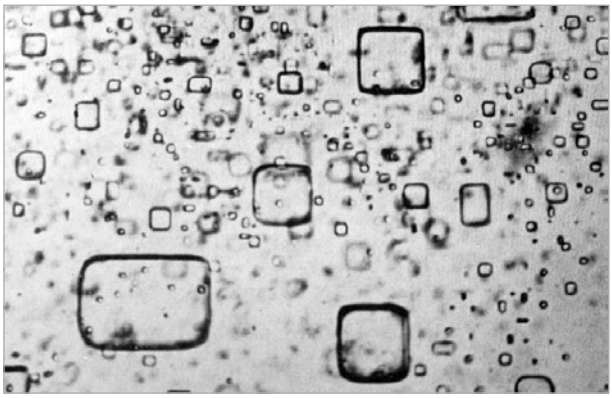

Рис. 1. Внутрикристаллические включения [5]

Рис. 2. Форма межкристаллических жидких включений [5]

за счет уменьшения ее площади снижает эту энергию, данные включения оказываются эффективно связанными с межкристаллитной областью, поэтому каналы сохраняют свою форму и расположение, даже при наличии градиентов температуры.

Также в работе [2] указано, что замкнутые внутрикристаллические жидкие включения, двигаясь к источнику тепла, могут «разгружаться» в более крупные межкристаллические включения-каналы.

Модель термомиграции жидких внутрикристаллических включений

При описании миграции отдельного включения будем следовать модели, представленной в [6]. В отношении массопереноса внутри включения считаем, что горячая и холодная поверхности являются плоскими, это позволяет рассчитывать поток в одномерном приближении. Распределения температуры и концентрации соли в растворе внутри включения схематически изображены на рис. 3. Индексы h относятся к горячей, а c — к холодной стенкам. C_{sh} и C_{sc} — концентрации, установившиеся в результате баланса процессов растворения с конечной скоростью

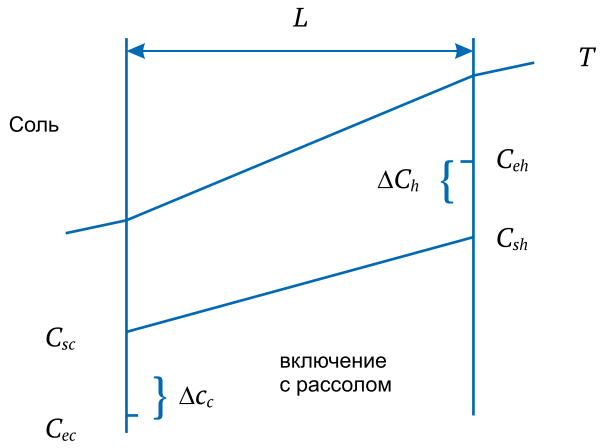

Рис. 3. Распределения температуры и концентрации соли внутри включения [3]

соли на горячей стенке и ее отводом в холодную область вследствие диффузии (аналогично для холодной стенки). C_{eh} и C_{ec} — термодинамически равновесные концентрации при температурах горячей и холодной стенок соответственно. Кроме того, в данной модели полагается, что для осуществления движения включения значение равновесной концентрации вблизи стенки должно отличаться на величину ΔC_h, что обусловлено микроскопическим механизмом растворения. А именно, в [6] определено, что для реализации процесса растворения на внутренней поверхности включения должна присутствовать «ступенька» (граница неполной кристаллографической плоскости), которая обеспечит возможность перехода молекул соли из твердой фазы в жидкую (раствор) с конечной скоростью. Для образования такой ступеньки необходимо некоторое недонасыщение раствора соли вблизи поверхности ΔC_h (рис. 3). Аналогичная поправка вводится для равновесной концентрации на холодной стенке ΔC_c. В итоге потоки на горячей и холодной стенках, которые при неизменной форме включения должны быть равны, описываются уравнениями граничной кинетики:

$$j_h = -k_h\left(C_{eh} - \Delta C_h - C_{sh}\right), \qquad (1)$$

$$j_c = -k_c\left(C_{sc} - C_{ec} - \Delta C_c\right). \qquad (2)$$

где k_h и k_c — кинетический коэффициент растворения и кристаллизации соответственно [3].

В объеме включения поток определяется процессами диффузии и термодиффузии, так что:

$$j_v = -D\left(\nabla C - \sigma C_l \nabla T\right) \approx -D\left(\frac{C_{sh} - C_{sc}}{L} - \sigma C_l \nabla T\right), \qquad (3)$$

где C_l — средняя концентрация соли по толщине включения L (учет изменения C_l по L приводит в (3) к следующему порядку малости).

Учитывая, что $j_h = j_v = j_c$, $\frac{C_{eh} - C_{ec}}{L} \approx \frac{dC_e}{dT}\nabla T$ и $C_s v = j$, где C_s — концентрация молекул соли в твердой фазе, из (1)—(3) окончательно получаем выражение для скорости включения:

$$v \approx \frac{C_l}{C_s}\frac{D}{1 + \frac{D}{kL}}\left[\left(\frac{dC_e}{C_l dT} - \sigma\right)\nabla T + \frac{\Delta C}{C_l L}\right], \qquad (4)$$

где $k = \frac{k_h k_c}{k_h + k_c}$, $\Delta C = \Delta C_h + \Delta C_c$.

Из (4) видно, что существует минимальный градиент температуры $\nabla T_{\min}$, зависящий от размера включения L, при превышении которого оно начинает движение:

$$\left|\nabla T\right|_{s,\min} = \frac{\left(\frac{\Delta C}{C_l}\right)}{L\left(\frac{dC_e}{C_l dT} - \sigma\right)}. \qquad (5)$$

Фактически этот параметр обеспечивает наличие наименьшего перепада температуры на размерах включения L и минимальный перепад концентрации $\Delta C \propto \nabla T_{s,\min} \cdot L$, необходимый для осуществления фазовых переходов (растворения и кристаллизации) на его стенках.

В поликристаллическом галите, если включение находится на границе зерна, то на него действует дополнительная сила торможения. Она обусловлена тем, что, занимая часть границы, включение уменьшает энергию системы, и для отрыва от границы над ним нужно совершить дополнительную работу. Согласно [6], это приводит к увеличению минимального градиента температуры для включений данного размера:

$$\left|\nabla T\right|_{s,\min} = \frac{\left(\frac{\Delta C}{C_l} + \frac{4\gamma \bar{V}_s}{LRT}\right)}{L\left(\frac{dC_e}{C_l dT} - \sigma\right)}. \qquad (6)$$

Здесь γ — избыточная энергия границ зерен, $\bar{V}_s$ — молярный объем, R — универсальная газовая постоянная. Оценки показывают, что, при актуальных значениях градиентов температур (см. ниже) и характерных размерах межкристаллитных включений [3], последние можно считать неподвижными, а, значит, структуру каналов — устойчивой.

Распределение температуры вокруг полости с РАО

Ключевым параметром, определяющим движение отдельных включений и, следовательно, интенсивность притока рассола в полость

с РАО, является распределение температуры вокруг ПГЗРО. Оно зависит от формы полости ПГЗРО, мощности энерговыделения РАО и их количества, содержащегося в полости (ее объеме). В данной статье для оценки эффекта мы исследуем изолированное хранилище, полностью заполненное тепловыделяющими РАО, для двух случаев: когда полость имеет сферическую и цилиндрическую форму, и найдем распределение температуры в окружающей среде для каждого из них.

Рассмотрим контейнер сферической формы радиуса R, заполненный РАО с плотностью мощности тепловыделения $q(t)$. Как будет показано далее, распределение температуры в областях, в которых находятся приходящие в движение пузырьки, устанавливается за относительно небольшие сроки по сравнению с характерным временем изменения $q(t)$, которое, в свою очередь, определяется скоростью распада содержащихся в хранилище радионуклидов. По этой причине для оценки распределения температуры будем решать квазистационарное сферически симметричное уравнение теплопроводности в двух областях: в полости с РАО (1), в которой имеется медленно меняющийся со временем источник тепла, и в окружающей формации (2), где источник отсутствует. На их границе должны выполняться условия непрерывности температуры и плотности потока тепла. Решение имеет вид:

$$T_1(r,t) \approx -\frac{q(t)r^2}{6\kappa_1} + \frac{q(t)R^2(\kappa_2 - 2\kappa_1)}{6\kappa_1\kappa_2} + T_\infty, \quad (7)$$

$$T_2(r,t) \approx \frac{q(t)R^3}{3\kappa_2 r} + T_\infty, \quad (8)$$

здесь T_1 — распределение температуры в полости с РАО, T_2 — распределение температуры в окружающей формации, κ_1 — средняя теплопроводность в хранилище, κ_2 — теплопроводность в галите, T_∞ — температура при $r=\infty$.

Из формулы (8) следует выражение для градиента температуры в соли:

$$\nabla T_2 = -\frac{q(t)R}{3\kappa_2}\left(\frac{R}{r}\right)^2. \quad (9)$$

Значения интенсивности тепловыделения $q(t)$ и размер полости захоронения R, от которых зависит данная величина, определяются конструкцией хранилища и нормативными требованиями. Для наших оценок воспользуемся тем, что, согласно требованиям Ростехнадзора [4], температура поверхности упаковки не должна превышать $T(R)=723$ К, а максимальная плотность мощности тепловыделения в источнике $q(0)=2$ кВт/м^3. Также будем считать, что $T_\infty=300$ К, тогда из (8) при $t=0$ и $r=R$ получаем оценку для максимально допустимого радиуса R:

$$R = \sqrt{\frac{3\kappa_2(T(R)-T_\infty)}{q(0)}} \approx 2 \text{ м}.$$

Для полости цилиндрической формы обозначим радиус цилиндра как R, а высоту — как H и примем $H>>R$. С учетом того, что нас интересуют области в окружающей среде, не слишком удаленные от поверхности полости захоронения, для описания поля температуры будем решать стационарные аксиально симметричные уравнения теплопроводности в тепловыделяющей полости и окружающей среде. Условия на границе областей те же, а в качестве внешнего требования к границе в области 2 для оценок положим $T(r=H)=T_\infty$. Для распределения температуры и градиента получаем (в области 2):

$$T_2(r) = \frac{q(t)R^2}{2\kappa_2}\ln\left(\frac{H}{r}\right) + T_\infty, \quad (10)$$

$$\nabla T_2 = -\frac{q(t)R}{2\kappa_2}\frac{R}{r}. \quad (11)$$

При тех же значениях $q(0)$, κ_2, T_∞ и приняв $\ln\left(\frac{H}{R}\right) \approx 3$, получаем для максимально возможного радиуса полости оценку $R \approx 1$ м.

Отметим, что данные условия коррелируют с положениями, которые использовались в [2] для оценки ∇T при анализе возможности захоронения РАО в глубоких вертикальных скважинах в галитах.

Здесь следует сделать замечание: в силу того, что показатели теплопроводности в твердой фазе галита и в рассоле внутри включения существенно различаются, величина градиента температуры в формуле (4), соответствующая этому параметру внутри включения, также отличается от значений (9) и (11). Кроме того, надо учесть, что при движении в поле ∇T включение очень быстро (при смещении на расстояние порядка его размера) принимает форму сплюснутого эллипсоида [5], [6]. В этом случае, как представлено в работе [3], градиент внутри включения ∇T_i связан со средним значением данного показателя в среде ∇T_e уравнением:

$$\nabla T_i = \xi \nabla T_e. \quad (12)$$

Значение ξ зависит от формы включения и соотношения теплопроводностей снаружи и внутри него. Для включения в виде сплюснутого

эллипсоида с короткой полуосью a, сонаправленной с градиентом температуры, и длинной полуосью b, ξ определяется приближенной формулой [7]:

$$\xi \approx \frac{\kappa_2}{\kappa_2 \frac{\pi}{2}\frac{a}{b} + \kappa_3} \qquad (13)$$

Здесь наряду с теплопроводностью в галите κ_2 введена теплопроводность рассола во включении κ_3. Учитывая, что отношение длин полуосей лежит в диапазоне $b/a = 3 \div 10$, $\kappa_2 \approx 7$ Вт/м К, $\kappa_3 \approx 0{,}7$ Вт/м К, получаем, что значение ξ находится в интервале $2 \div 4$. В дальнейшем для оценок будем использовать значение $\xi \approx 4$.

Модель для оценки объема рассола, поступающего в область захоронения

Приток рассола в полость без учета микроструктуры галита

Если пренебречь наличием микроструктуры галита, то поступление рассола в полость с РАО будет определяться включениями, которые за данный период t под действием затухающего во времени градиента температуры дойдут до поверхности полости. Ввиду того, что он убывает с расстоянием, чем дальше изначально (при $t=0$) расположено включение, тем меньше будет его окончательное смещение. Следовательно, задача состоит в определении максимального начального положения включения R_0, стартуя из которого, оно за заданное время t_f дойдет до полости.

Смещение включения находится из решения уравнения:

$$\frac{\mathrm{d}r}{\mathrm{d}t} = v\left(r(t), t\right), \qquad (14)$$

где скорость определяется выражением (4), а градиент температуры — формулой (9) — для сферической и (11) — цилиндрической полостей с учетом связи (12). Начальное положение включения:

$$r\left(t=0\right) = R_0, \qquad (15)$$

конечное положение:

$$r(t_f) = R\,. \qquad (16)$$

Время t_f, вообще говоря, характеризуется постановкой задачи (например, требованием определенного уровня распада содержащихся радионуклидов). Для оценок при этом будем считать $t_f = \infty$, хотя в действительности движение всех включений прекращается раньше, когда интенсивность тепловыделения падает до значений, при которых скорость (4) на поверхности хранилища становится равной нулю.

С этой целью удобно провести решение в обезразмеренном виде. Для этого подставим в формулу для скорости (4) выражения для градиентов температуры (9), (11) с учетом связи (12). Вводя новые переменные:

$$x = \frac{r}{R},\ \tau = \frac{t}{\tau_0}, \qquad (17)$$

получим для сферического хранилища:

$$\frac{\mathrm{d}x}{\mathrm{d}\tau} = 1 - \frac{\xi\tau_0 \tilde{q}(\tau)}{Q_3}\frac{1}{x^2}, \qquad (18)$$

где

$$\tau_0 = \left(\frac{C_l}{C_s}\frac{\Delta C}{C_l}\tilde{D}\frac{1}{LR}\right)^{-1}, \qquad (19)$$

$$Q_3 = \left[\frac{C_l}{C_s}\tilde{D}\left(\frac{\mathrm{d}C_l}{C_l\,\mathrm{d}t} - \sigma\right)\frac{1}{\kappa_2}\right]^{-1}, \qquad (20)$$

$$x\left(\tau = 0\right) = x_0\,. \qquad (21)$$

Задача состоит в определении максимального значения x_{0m}, при котором:

$$x_f = 1, \qquad (22)$$

где x_f — конечное положение включения после его остановки.

Для ее решения необходимо задать тепловыделение в РАО. Для проведения оценок мы воспользовались данными работы [8], которые удобно представить в виде: $q\left(t\right) = \sum_{i=1}^{4}\alpha_i \exp\left(-\frac{t}{\beta_i}\right)$, где $\{\alpha_1 = 60,\ \alpha_2 = 655,\ \alpha_3 = 502,\ \alpha_4 = 7{,}4\}$ (Вт/м^3), $\{\beta_1 = 3{,}76,\ \beta_2 = 26{,}04,\ \beta_3 = 63{,}75,\ \beta_4 = 1312\}$ (лет). Соответственно, выражение для $q(\tau)$ перепишется в виде:

$$q(\tau) = \sum_{i=1}^{4}\alpha_i \exp\left(-\gamma_i\tau\right), \qquad (23)$$

где $\gamma_i = \tau_0/(\beta_i \cdot \tau_1)$, и τ_1 — число секунд в году.

Также для расчета использовались следующие значения констант из работы [3]:

$$\frac{1}{C_l}\frac{\mathrm{d}C_l}{\mathrm{d}T} \approx 3{,}5 \cdot 10^{-3}\,K^{-1},\ \sigma = -0{,}002\ \mathrm{K}^{-1},\ \tilde{D} = \frac{D}{1 + \frac{D}{kL}} \approx$$

$$\approx D \approx 2 \cdot 10^{-5}\ \text{см}^2/\text{с},\ \frac{C_l}{C_s} \approx 2 \cdot 10^{-2},\ \frac{\Delta C}{C_l} = 2 \cdot 10^{-5}\,.$$

Важным параметром, определяющим поведение включений, является их характерный размер L. Изначально, до возникновения условий, приводящих к движению включений, их

габариты лежат в достаточно широком интервале от 10 до 100 мкм. Однако, как показано в работе [9], при движении ансамбля включений в поле градиента температуры, в силу зависимости их скорости от формы и калибра, а также процессов их слияния и распада, достаточно быстро формируется сравнительно узкое распределение по размерам, поэтому далее для оценок будем рассматривать приблизительно одинаковые включения — $L \approx 50$ мкм.

Уравнение (18) решалось явным методом Рунге—Кутты. На рис. 4, приведены результаты расчетов траектории включений для разных исходных точек x_0. Значение x_{0m} соответствует максимальному начальному положению включений, которые за все время движения достигнут области захоронения.

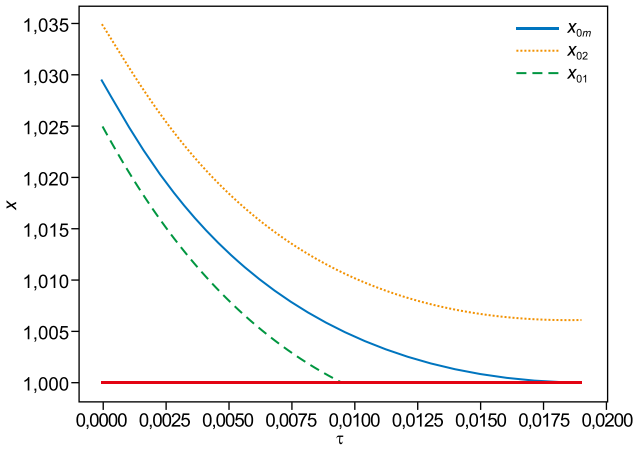

Рис. 4. Траектории включений с различными начальными положениями $x_{01} < x_{0m} < x_{02}$

Отметим, что процесс выхода рассола в полость захоронения завершится за конечное время $\tilde{\tau}$. При $\tau > \tilde{\tau}$ включения, не успевшие дойти до полости, остаются неподвижными, так как градиент температуры будет меньше порогового, определяемого формулой (5) с учетом (12).

В итоге для максимального начального положения включений, которые дадут вклад в приток рассола в сферическую полость, получено значение $x_{0m} \approx 1{,}03$. Доля количества рассола, поступившего в полость с РАО, относительно ее полного первоначального объема — $\aleph_S = \dfrac{\tilde{R}_0^3 - R^3}{R^3} \cdot \zeta$, где $\zeta \approx 0{,}02$ — объемная доля рассола, содержащегося в окружающем галите во включениях [10], а $\tilde{R}_0 = x_{0m} R$. Для данного случая:

$$\aleph_S = \left(\tilde{x}_0^3 - 1\right) \cdot \zeta \approx 1{,}8 \cdot 10^{-3}. \qquad (24)$$

Учитывая, что $\tilde{\tau} \approx 1{,}75 \cdot 10^{-2}$, $\tau_0 \approx 1{,}25 \cdot 10^{11}$ с, получаем для принятых значений параметров процесс завершится за время $t_f = \tilde{\tau}\ \tau_0 \approx 2 \cdot 10^9$ с ≈ 70 лет.

Аналогично для хранилища в форме цилиндра обезразмеренное уравнение движения включений принимает вид:

$$\frac{\mathrm{d}\, x}{\mathrm{d}\, \tau} = 1 - \frac{\xi \tau_0 q(\tau)}{Q_2} \frac{1}{x}, \qquad (25)$$

где $Q_2 = \dfrac{2}{3} Q_3$.

Максимальное значение начального положения пузырьков, которые дадут вклад в приток рассола в цилиндрическую полость, составляет $x_{0m} \approx 1{,}02$, относительная доля вышедшего в полость рассола:

$$\aleph_C \approx \left(\tilde{x}_0^2 - 1\right) \zeta \approx 8 \cdot 10^{-4}, \qquad (26)$$

а время, за которое завершится процесс, с учетом $\tilde{\tau} \approx 1{,}4 \cdot 10^{-2}$, $t_f = 1{,}7 \cdot 10^{-2}$ с ≈ 55 лет.

Приток рассола в полость с учетом микроструктуры галита

Наличие в природных галитах межкристаллических включений помимо внутрикристаллических может существенно поменять картину движения рассола. В связи с этим необходимо учесть, что по мере движения внутрикристаллических пузырьков в сторону более высоких температур, они с неизбежностью будут выходить на границы зерен и там останавливаться вследствие тормозящей силы со стороны границы, которая воспрепятствует разрушению каналов, сформированных пузырьками и изначально существующими на межкристаллических плоскостях. Как указано в [3], проницаемость галитов крайне низкая, что говорит о том, что до возникновения движения включений под действием градиента температуры система каналов, образованная зернограничными включениями, находится вблизи порога перколяции. Присоединение к каналам пузырьков, выходящих на границу, будет увеличивать количество рассола в системе зернограничных включений, долю площади границ зерен, занятую ими, и, следовательно, проницаемость этой части каналов. Возникающий излишек рассола на границе, обусловленный пришедшими пузырьками, по имеющимся каналам будет иметь возможность разгружаться в полость с РАО. По этой причине для консервативной оценки максимально возможного выхода рассола в полость захоронения РАО следует учесть, что его приток будет обусловлен не

только включениями, непосредственно поступающими в нее, но и теми, которые успеют выйти из внутризеренных областей на границы зерен.

Решение данной задачи определяется уравнениями (18) и (25). Отличие состоит в том, что для определения x_{0m} теперь будем считать, что конечное положение включений характеризуется не выражением (22), а условием:

$$x_f = x_0 - \delta, \qquad (27)$$

где $\delta = \frac{l}{R}$ и l — размер зерна. Аналогично тому, как это было сделано в предыдущем разделе, для определения величины области, из которой пузырьки дадут вклад в приток рассола в полость, нужно найти максимально возможное значение начального положения включения x_{0m}, при котором будет удовлетворяться условие (27).

На рис. 5 представлены результаты расчета траекторий включений при различных начальных положениях x_0 для случая хранилища сферической формы и определено положение максимально удаленных включений x_{0m}, которые успеют выйти на границу зерна до того, как остановятся.

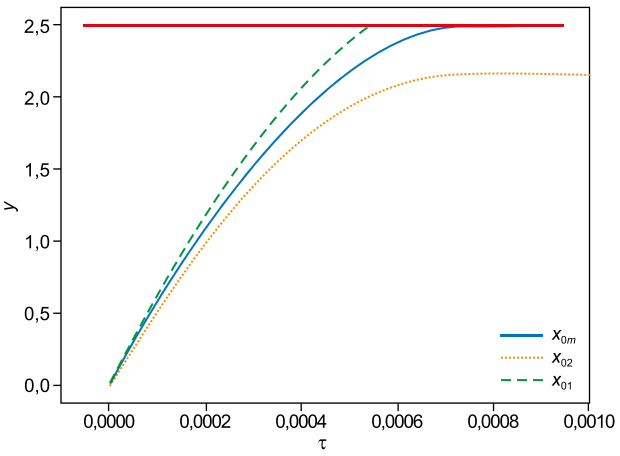

Рис. 5. Смещения включений относительного начального положения для сферического хранилища $y=x_0-x$ при различных x_0: $x_{01}<x_{0m}<x_{02}$

При выборе характерного размера зерна $l \approx 1$ см получены следующие значения: для сферического хранилища $x_{0m} \approx 2{,}3$, для цилиндрического — $x_{0m} \approx 4$. Соответственно, доли объема вышедшего в полость рассола составят: $\aleph_S \approx 0{,}22$ — в первом и $\aleph_C \approx 0{,}3$ — во втором случаях.

Время выхода включений на границу зерен в данной ситуации не позволяет оценить срок окончательного перемещения рассола в полость с РАО, так как для этого необходимо дополнительное его перемещение по зернограничным каналам. Учет этого фактора требует развития специальной модели.

Обсуждение и выводы

В работе представлена развитая модель для описания поступления рассола в пункт захоронения с тепловыделяющими РАО в соляных формациях, обусловленного движением жидких включений под действием градиента температуры. Полученные на ее основе оценки показывают, что учет внутренней структуры галита (наличие наряду с внутрикристаллическими включениями каналов, расположенных на межкристаллитных гранях) играет решающую роль при оценке количества рассола, которое попадет в хранилище, а само количество может составлять десятые доли объема хранилища.

При построении модели были использованы два предположения:

1) Движение жидких включений имеет место только для внутрикристаллических включений, в то время как межкристаллические остаются связанными с границами зерен и неподвижны. Это обосновывалось тем, что, находясь на межзеренных границах, они эффективно уменьшают площадь границы, которая обладает избыточной энергией, и для ухода с нее необходимо приложить дополнительную, весьма существенную, силу. Таким образом, межзеренные каналы сохраняются и служат путями для переноса рассола, поступающего к ним из объема зерен, в полость с РАО. При этом полагалось, что весь поступивший в систему каналов рассол за конечные времена попадает в хранилище, и система каналов возвращается к своему исходному состоянию. Поэтому полученные оценки определяют, по-видимому, максимально возможное количество рассола, и часть модели, касающаяся его переноса по межзеренным каналам, нуждается в дополнительном анализе.

2) Для процессов растворения и кристаллизации на передней и задней гранях включения необходимы определенные отличия концентрации от равновесного для данных температур значений (недосыщение на передней и пересыщение на задней стенках). Данные отклонения связывались с кинетикой фазовых переходов на поверхностях (растворением на передней и кристаллизацией на задней стенках) [11] и обосновывались наблюдаемым отсутствием движения включений небольшого размера, когда перепад концентраций между стенками, обусловленный градиентом температуры, был слишком мал [12]. Здесь следует отметить, что длительность экспериментов [5], [12], которые проводились для

описания движения включений, как правило, составляла несколько часов. Учитывая, что характерные времена флуктуационных процессов, описывающих образование зародышей новой фазы и в ряде случаев определяющих кинетику фазового перехода, могут быть достаточно велики, а общая длительность процесса стекания рассола в хранилище, как следует из расчетов, составляет десятки лет, данное положение также нуждается в дополнительном анализе.

Теперь остановимся на обосновании использования квазистационарного приближения при определении профиля температуры вокруг тепловыделяющего хранилища. Как следует из результатов работы, максимальная удаленность включений, которые дают вклад в приход рассола в полость с РАО, составляет не более 4—5 метров. Учитывая характерные значения температуропроводности $\chi \approx 10^{-2}$ см^2/с, получаем, что профиль температуры в интересующей нас области установится за срок порядка $\tau_d \approx (5\cdot 10^2)^2/10^{-2} = 2{,}5\cdot 10^7$ с, то есть меньше одного года. Учитывая, что характерные времена изменения мощности источника $q(t)$ порядка нескольких десятков лет, мы можем считать, что распределение температуры в данной области определяется стационарным уравнением теплопроводности.

Таким образом, развитая модель позволяет сделать заключение, что важными критериями, определяющими приход рассола в полость с тепловыделяющими РАО в соляных формациях, являются параметры галитов (доля объема, занимаемая содержащими рассол включениями, характерные размеры кристаллитов), характеристики остаточного тепловыделения (текущая мощность, скорость затухания тепловыделения), свойства хранилища (размеры, форма). В работе показано, что для типичных для галитов значений микроструктурных показателей, присущих остеклованным ВАО мощностей тепловыделения и максимально допустимой, исходя из требований Ростехнадзора, величины хранилища количество суммарно приходящего с РАО рассола может достигать десятых долей его объема.

Данные оценки необходимы для обоснования безопасного захоронения ВАО в соляных формациях.

Благодарность

Авторы приносят глубокую благодарность П .С .Кондратенко и А. Р. Аветисяну за постоянное внимание к работе и плодотворные обсуждения.

Литература

1 .*Никифоров А. С., Поляков А. С., Кащеев В. А. и др.* Миграция включений рассола в соляной среде хранилища радиоактивных отходов. Обзор. — М .: ЦНИИатоминформ, 1987. 55 с.

2 .*Савоненков В. Г., Шабалев С. И.* Геохимические исследования подземных ядерных взрывов в каменной соли как аналогов захоронения РАО в соляных формациях. — Санкт-Петербург : Издательский дом «Инфо Ол», 2014. 270 с.

3 .*Pigford T. H.* Migration of Brine Inclusions in Salt // Nuclear Technology. 1982. Vol. 56. No. 1. Pp .93—101.

4 . НП-093-14. Федеральные нормы и правила в области использования атомной энергии. Критерии приемлемости радиоактивных отходов для захоронения.

5 .*Anthony T. R., Cline H. E.* Thermal Migration of Luquid Droplets through Solids // Journal of Applied Physics. 1971. Vol. 42. No. 9. Pp. 3380—3387.

6 .*Аветисян А. Р., Корчагина О. О., Матвеев Л. В.* Модель термомиграции жидкого включения в монокристалле галитов в однородном поле градиента температуры // Радиоактивные отходы. 2022. № 2 (19). С. 100—104. DOI: 10 .25283/258 -9707-2022-2-100-104.

7 .*Корчагина О. О.* Распределение температуры внутри жидкого включения в поле внешнего градиента температуры // Известия РАН. Энергетика (в печати).

8 . Богатов С. А., Блохин П. А., Уткин С. С., *Дорофеев А. Н., Киселёв А. И., Козлов П. В., Лукин С. А., Ремизов М. Б., Семёнов М. А.* Усредненные оценки удельной активности и тепловыделения остеклованных высокоактивных отходов, накопленных на ФГУП «ПО «МАЯК» // Вопросы радиационной безопасности. 2021. № 3. С. 3—12.

9 .*Аветисян А. Р., Корчагина О. О., Матвеев Л. В.* Кинетическая модель эволюции жидких включений в соляных породах при высоких градиентах температуры // Радиоактивные отходы. 2022. № 1 (18). С. 86—90. DOI: 10.25283/2587-9707-2022-1-86-90.

10 .*Коэн Б.* Захоронение радиоактивных отходов ядерных реакторов // Успехи физических наук. 1978. Т. 126. Вып. 1. С. 101—121.

11 .*Гегузин Я. Е., Кружанов В. С., Старухина Л. В.* О роли дислокаций в процессе движения ограненных жидких включений в монокристаллах // Физика твердого тела. 1985. Т. 27. № 8. С .2367—2370.

12 .*Гегузин Я. Е., Дзюба А. С., Кружанов В. С.* Исследование поведения жидких включений в кристалле в поле температурного градиента // Кристаллография. 1975. Т. 20. Вып. 2. С. 383—391.

Информация об авторах

Корчагина Олеся Олеговна, младший научный сотрудник, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: ok@ibrae .ac .r

Матвеев Леонид Владимирович, доктор физико-математических наук, директор, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: matweev@ibrae .ac .r

Библиографическое описание статьи

Корчагина О. О., Матвеев Л. В. Модель для оценки объема рассола, поступающего в хранилище с РАО в галитах с учетом их микроструктуры // Радиоактивные отходы. 2024. № 1 (26). С. 95—104. DOI: 10 .25283/258 -9707-2024-1-95-104.

MODEL ESTIMATING THE BRINE VOLUME INFLOWING A RW STORAGE FACILITY IN HALITES CONSIDERING THEIR MICROSTRUCTURE

Korchagina O. O., Matveev L. V.

Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences, Moscow, Russia

Article received on December 28, 2023

The paper proposes a model estimating the volume of brine infl w into a repository with heat generating radioactive waste prompted by liquid inclusion transport in halites. The model takes into account the polycrystalline structure of natural halites and two brin fl w mechanisms associated with it: 1) the one prompted by thermomigration of intragrain inclusions and 2) the one prompted by brine transfer along the intergranular channels. Movement of intragrain inclusions is explained by salt transport occurring inside the inclusions, which in turn is driven by additional salt dissolution at the hot wall of an inclusion and its condensation on the cold one. Strong coupling between the intergranular inclusions and the grain boundaries provides the intergranular channel stability. The paper describes in detail both mechanisms and provides the formulas for inclusion transport rate calculations. It estimates the brine infl w for spherical and cylindrical repositories based on parameters taken from relevant literature sources. The study shows that halite microstructure and its accounting are crucial for the calculated brine infl w that can amount to tenths of the repository volume.

Keywords: *disposal of radioactive waste, halites, intracrystalline and intercrystalline inclusions, thermomigration, intergranular channels, radioactive waste.*

Acknowledgements

The authors are deeply grateful to P.S .Kondratenko and A. R. Avetisyan for their constant attention to the study and the valuable discussions provided.

References

1 . Nikiforov A. S., Polyakov A. S., Kashcheev V .A. et al. *Migratsiya vklyucheniy rassola v solyanoy srede khranilishcha radioaktivnykh otkhodov* [Brine inclusion transport in the salt environment of a

radioactive waste repository]. Overview. Moscow, TsNIIatominform Publ., 1987. 55 p.
2 . Savonenkov V. G., Shabalev S. I. *Geokhimicheskiye issledovaniya podzemnykh yadernykh vzryvov v kamennoy soli kak analogov zakhoroneniya RAO v solyanykh formatsiyakh* [Geochemical studies of underground nuclear explosions in rock salt considered as analogues of RW disposal facilities in salt formations]. Saint-Petersburg, Publishing house Info Ol, 2014. 270 p.
3 . Pigford T. H. Migration of Brine Inclusions in Salt. *Nuclear Technology,* 1982, vol. 56, no. 1, pp. 93—101.
4 . NP-093-14. *Federal'nyye normy i pravila v oblasti ispol'zovaniya atomnoy energii. Kriterii priyemlemosti radioaktivnykh otkhodov dlya zakhoroneniya* [Federal Norms and Rules in the Field of Atomic Energy Use. Acceptance Criteria for Radioactive Waste Disposal].
5 . Anthony T. R., Cline H. E. Thermal Migration of Luquid Droplets through Solids. *Journal of Applied Physics,* 1971, vol. 42, no. 9, pp. 3380—3387.
6 . Avetisyan A. R., Korchagina O. O., Matveev L. V. Model' termomigratsii zhidkogo vklyucheniya v monokristalle galitov v odnorodnom pole gradienta temperatury [Model of a Thermally Induced Liquid Inclusion Migration in a Single Crystal of Halites under a Homogeneous Temperature Gradient Field]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste,* 2022, no. 2 (19), pp. 100—104. DOI: 10 .25283/258 -9707-2022-2-100-104.
7 . Korchagina O. O. Raspredeleniye temperatury vnutri zhidkogo vklyucheniya v pole vneshnego gradiyenta temperatury [Temperature distribution inside a liquid inclusion in the external temperature gradient field] *Izvestiya RAN. Energetika — Thermal Engineering.* (In print).
8 . Bogatov S. A., Blokhin P. A., Utkin S. S. et al. Usrednennyye otsenki udel'noy aktivnosti i teplovydeleniya osteklovannykh vysokoaktivnykh otkhodov, nakoplennykh na FGUP “PO “MAYAK” [Averagely estimated specific activity and heat release from vitrified high-level waste accumulated at the PA MAYAK site]. *Voprosy radiatsionnoy bezopasnosti — Radiation Safety Issues,* 2021, no. 3, pp. 3—12.
9 . Avetisyan A. R., Korchagina O. O., Matveev L. V. Kineticheskaya model' ehvolyutsii zhidkikh vklyuchenii v solyanykh porodakh pri vysokikh gradientakh temperatury [Kinetic model showing the evolution of liquid inclusions in salt rocks under high temperature gradients]. *Radioaktivnye otkhody — Radioactive Waste,* 2022, no. 1 (18), pp. 86—90. DOI: 10 .25283/258 -9707-2022-1-86-90.
10 . Cohen B. Zakhoronenie radioaktivnykh otkhodov yadernykh reaktorov [Disposal of radioactive waste from nuclear reactors]. *Uspekhi Fizicheskikh Nauk — Physics-Uspekhi,* 1978, vol. 126, no. 1, pp. 101—121.
11 . Geguzin Ya. E., Kruzhanov V. S., Starukhina L. V. O roli dislokatsiy v protsesse dvizheniya ogranennykh zhidkikh vklyucheniy v monokristallakh [On the role of dislocations in the movement of faceted liquid inclusions in single crystals]. *Fizika tverdogo tela — Physics of the Solid State,* 1985, vol. 27, no. 8, pp. 2367—2370.
12 . Geguzin Ya. E., Dzyuba A. S., Kruzhanov V. S. Issledovaniye povedeniya zhidkikh vklyucheniy v kristalle v pole temperaturnogo gradiyenta [Study exploring the behavior of liquid inclusions in a crystal within a temperature gradient field] *Kristallografi a — Crystallography Reports,* 1975, vol. 20, no .2, pp. 383—391.

Information about the authors

Korchagina Olesya Olegovna, junior researcher, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulskaya st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: ok@ibrae.ac.ru.

Matveev Leonid Vladimirovich, Doctor of Physico-Mathematical Sciences, Director, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulskaya st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: matweev@ibrae.ac.ru.

Bibliographic description

Korchagina O. O., Matveev L. V. Model Estimating the Brine Volume Inflowing a RW Storage Facility in Halites Considering their Microstructure. *Radioactive Waste,* 2024, no. 1 (26), pp. 95—104. DOI: 10.25283/2587-9707-2024-1-95-104. (In Russian).