

УДК 621.039.7

ТЕПЛОВОЕ ПОЛЕ СКВАЖИННОГО ХРАНИЛИЩА РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ

© 2021 г. Член-корреспондент РАН С. В. Юдинцев^{1,*}, В. И. Мальковский¹, М. Ю. Каленова²

Поступило 16.02.2021 г.

После доработки 10.03.2021 г.

Принято к публикации 11.03.2021 г.

Рассчитаны тепловые поля для скважинного хранилища Cs–Sr- и РЗЭ-актинидной фракций радиоактивных отходов в зависимости от содержания отходов, размера блока матрицы, времени хранения до захоронения. Сделан вывод, что эти хранилища перспективны для размещения РЗЭ-актинидной фракции в составе кристаллических матриц с диаметром цилиндрического блока 0.1–0.2 м без предварительного хранения.

Ключевые слова: радиоактивные отходы, фракции, изоляция, захоронение, скважины

DOI: 10.31857/S2686739721060177

Безопасное обращение с высокорadioактивными отходами (ВАО) ядерной энергетики предполагает их включение в устойчивую матрицу [1] и захоронение в шахтных хранилищах на глубине до 1 км [2–5]. Другой вариант таких сооружений – скважины протяженностью до 5 км, вертикальные или до глубины 1–2 км вертикальные, затем переходящие в горизонтальные [6–9]. Шахтные сооружения имеют емкость несколько тысяч кубометров и предполагают совместное захоронение ВАО и среднеактивных отходов с долгоживущими радионуклидами (САО). Для ВАО матрицей служат В–Si- или Al–P-стекла, а для САО – цемент. Скважинное хранилище на 2 порядка меньшей вместимости имеет телескопическое строение, их диаметр уменьшается с 0.6–1.0 м у поверхности до 0.3–0.5 м в удаленной части. Скважинные хранилища предполагается заполнять тепловыделяющими ВАО (галиды ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr), матрицами типа Синрок с отходами переработки облученного ядерного топлива (ОЯТ) или с фракциями ВАО. В оба типа хранилищ можно помещать ОЯТ, что отвечает открытому топливному циклу. Однако по эффективности и безопасности предпочтительнее замкнутый ядерный цикл с переработкой ОЯТ и разделением ВАО на группы. Выделенные из ВАО изотопы можно применять в промыш-

ленности, включать в матрицу для захоронения, “сжигать” в реакторе на быстрых нейтронах [3, 9–18]. Это позволит использовать компоненты ОЯТ, увеличить ресурс ядерной энергетики за счет рециклинга U и Pu, сократить объем отходов и повысить эффективность использования подземного хранилища.

Однако выделение тепла при распаде радионуклидов приводит к разогреву матрицы отходов и окружающей среды. Высокая загрузка матрицы отходами увеличивает температуру хранилища, что повлияет на долговечность инженерных барьеров (матрица, контейнер, буфер) и защитные свойства вмещающих пород. Повышение температуры вод ускорит коррозию матрицы, что усилит вынос радионуклидов из мест размещения при конвекции вод, вызванной радиогенным теплом. Моделирование этих процессов основано на расчетах интенсивности тепловыделения и температуры в хранилище отходов. Этот анализ выполнен, в основном, для наиболее близких к практической реализации шахтных хранилищ для ОЯТ или остеклованных ВАО [2–5].

С целью определения оптимальных размеров блоков матриц и содержаний в них отходов в работе рассмотрен тепловой режим гипотетического скважинного хранилища. Температура в хранилище зависит от тепловыделения отходов, которое определяется временем хранения ОЯТ до переработки, содержанием радионуклидов, выдержкой матриц до захоронения, плотностью размещения отходов. Распределение температуры в ближней зоне хранилища зависит от тепловыделения ВАО, теплопроводности пород, фоновой температуры среды. Ближняя зона включает

¹ *Институт геологии рудных месторождений, петрографии, минералогии и геохимии Российской академии наук, Москва, Россия*

² *Ведущий научно-исследовательский институт химической технологии, Москва, Россия*

*E-mail: yudintsevsv@gmail.com

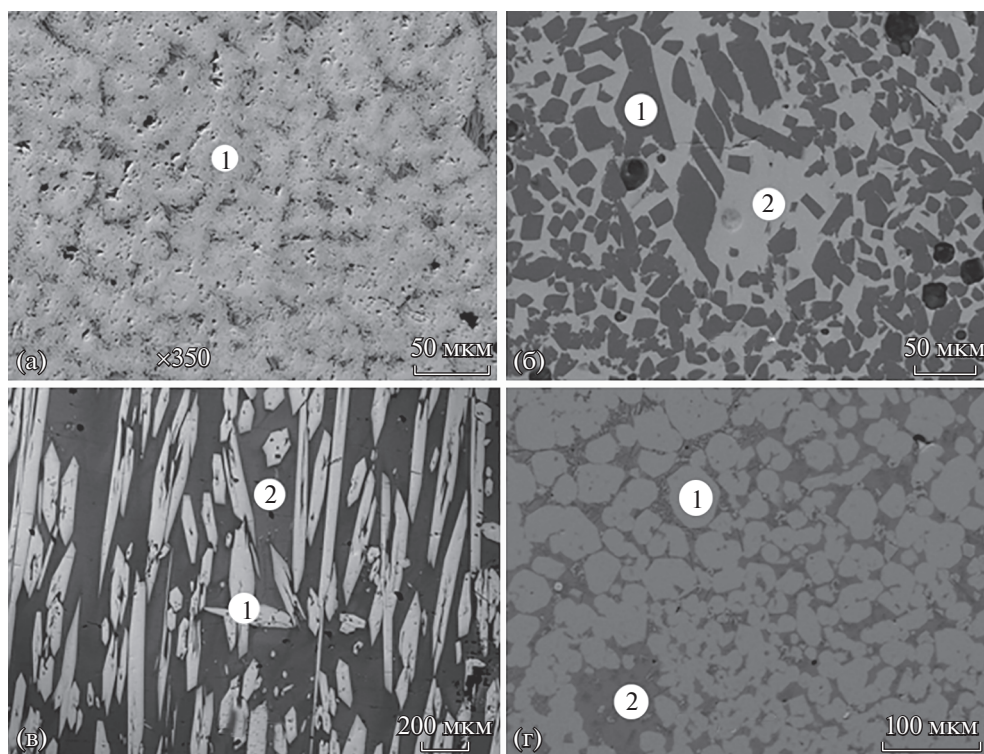


Рис. 1. Изображение в растровом электронном микроскопе матриц с имитаторами ВАО [15–18]: а) 60% REE–МА, 1 – пироклор, $\text{Nd}_2(\text{Ti,Zr})_2\text{O}_7$; б) 30% REE–МА: 1 – рутил, TiO_2 , 2 – $\text{Nd}_4\text{Ti}_9\text{O}_{24}$; в) 30% REE–МА: 1 – бритолит $(\text{Ca,Nd})_{10}(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$, 2 – стекло; г) 45% Cs–Sr: 1 – Cs-лейцит $\text{CsAlSi}_2\text{O}_6$, 2 – таусонит SrTiO_3 .

окружающие породы мощностью сотни метров, которые подвергаются воздействию сначала при сооружении хранилища, а затем после размещения в нем отходов. Тепловыделение ОЯТ связано с распадом продуктов деления (основные – ^{90}Sr , ^{137}Cs) и трансурановых актинидов – Pu, Am, Cm [3, 11–13]. Известны способы выделения фракций Cs–Sr и REE–МА (МА – это Am, Cm) из ВАО от переработки ОЯТ [3, 10–13], один из них уже реализован в промышленном масштабе [14]. Матрицы фракционированных отходов предлагается размещать в скважинах на глубине от 3 до 5 км [5–7, 9, 16]. Эффективность и безопасность такого подхода обеспечат высокая загрузка коррозионно-стойких матриц отходами и удаленность их размещения.

В сообщении рассмотрены тепловые поля для скважинного хранилища матриц, содержащих, мас. %: 1) 30% REE–МА, 2) 60% REE–МА, 3) 45% Cs–Sr, их примерами служат: 1 – цирконолит, $(\text{Ca, Nd})\text{Zr}(\text{Ti, Al})_2\text{O}_7$; стеклокерамика с 50% бритолита, $(\text{Ca, Nd})_{10}\text{Si}_4\text{O}_{26}$; 2 – пироклор состава $\text{Nd}_2(\text{Ti, Zr})_2\text{O}_7$; 3 – керамика с 90% CsAlSi₂O₆ (Cs-лейцит) и 10% SrTiO₃ (таусонит). Изображения матриц с имитаторами ВАО приведены на рис. 1, а результаты изучения – в работах [3, 15–18].

Для анализа тепловых режимов необходимо задать параметры вычислений, а именно: составы фракций, размеры блоков матриц, время хранения до размещения в хранилище. REE–МА-фракция ВАО переработки ОЯТ легководных реакторов содержит 95 мас. % изотопов РЗЭ и 5 мас. % актинидов [11–13], включая 3.5% ^{243}Am (период полураспада, $T_{1/2} = 7300$ лет), 1% ^{241}Am ($T_{1/2} = 433$ года) и 0.5% ^{244}Cm ($T_{1/2} = 18$ лет). Период полураспада ^{243}Am больше, чем у ^{241}Am , а удельное тепловыделение ^{243}Am (6.4 Вт/кг) гораздо меньше, чем у ^{241}Am (114.7 Вт/кг). Поэтому, несмотря на доминирование ^{243}Am , тепловыделение фракции, в основном, связано с ^{241}Am и ^{244}Cm . На начальной стадии на 91% оно определяется ^{244}Cm , 8% приходится на ^{241}Am и лишь около 1% на ^{243}Am . Среди редких земель также есть радиоизотопы (^{144}Ce , ^{147}Pm , $^{154,155}\text{Eu}$), но их количество невелико, а из-за малого периода полураспада (0.8–9 лет) они в значительной мере распадутся за 5–10 лет хранения ОЯТ до переработки. Таким образом, задача сводится к расчету температур в центре и на поверхности блоков матриц фракции REE–МА (30 или 60 мас. %) и Cs–Sr (45 мас. %). Содержание изотопов в матрице с 30 мас. % REE–МА-фракции (95% REE, 3.5% ^{243}Am , 1% ^{241}Am , 0.5% ^{244}Cm)

составит: 28.5% РЗЭ, 1.05% ^{243}Am , 0.3% ^{241}Am , 0.15% ^{244}Cm ; а для 60 мас. %: 57% РЗЭ, 2.1% ^{243}Am , 0.6% ^{241}Am , 0.3% ^{244}Cm . В составе Cs–Sr-фракции имеются [10–12]: ^{133}Cs (стабилен), ^{134}Cs ($T_{1/2}$ равен 2 года); ^{135}Cs ($T_{1/2}$ равен 2.6 млн лет), ^{137}Cs ($T_{1/2}$ равен 30.2 года), ^{88}Sr (стабилен) и ^{90}Sr ($T_{1/2}$ равен 28.8 года); ее тепловыделение связано, в основном, с радионуклидами ^{137}Cs и ^{90}Sr . Доля ^{137}Cs в смеси изотопов Cs в ОЯТ (ВАО) примерно равна 42%, а для ^{90}Sr это значение около 55%. При содержании в матрице 45 мас. % Cs–Sr-фракции (35% Cs_2O , 10% SrO) количества изотопов Cs и Sr составят: 17.5% ^{133}Cs , 3.5% ^{135}Cs , 14% ^{137}Cs , 4.5% ^{88}Sr и 5.5% ^{90}Sr .

Обозначим $\chi_{j,i}$ константы распада ^{241}Am и ^{244}Cm и их дочерних элементов ($\chi = \ln 2 / T_{1/2}$) в рядах распада, где i – номер исходного радионуклида ($i = 1$ для ^{241}Am и $i = 2$ для ^{244}Cm), а j – номер дочернего радионуклида в цепочке трансмутаций. В результате α -распада ^{241}Am переходит в ^{237}Np : $^{241}\text{Am} \rightarrow ^{237}\text{Np} + ^4\alpha$. Период полураспада ^{241}Am равен 432 годам ($\chi_{1,1} = 5.08 \times 10^{-11}$ 1/с), $Q_{1,1} = 114.7$ Вт/кг ($Q_{j,i}$ – удельное тепловыделение распада j -го дочернего нуклида в i -й цепочке для единичной массы радионуклида). ^{237}Np путем α -распада ($T_{1/2} = 2.14 \times 10^6$ лет) превращается в ^{233}Pa : $^{237}\text{Np} \rightarrow ^{233}\text{Pa} + ^4\alpha$, ($\chi_{2,1} = 1.03 \times 10^{-14}$ 1/с), $Q_{2,1} = 0.0207$ Вт/кг [13], а β -распад быстро приводит к превращению ^{233}Pa в ^{233}U : $^{233}\text{Pa} \rightarrow ^{233}\text{U} + e^-$, $T_{1/2} = 27$ сут ($\chi_{3,1} = 2.97 \times 10^{-7}$ 1/с). ^{233}U превращается в ^{229}Th ($T_{1/2} = 1.59 \times 10^5$ лет). При моделировании тепловыделения ограничимся первыми тремя нуклидами в цепи распада ^{241}Am . В ходе α -распада ^{244}Cm превращается в ^{240}Pu : $^{244}\text{Cm} \rightarrow ^{240}\text{Pu} + ^4\alpha$, $T_{1/2} = 18.1$ года ($\chi_{1,2} = 1.216 \times 10^{-9}$ 1/с), $Q_{1,2} = 2842$ Вт/кг [13], затем ^{240}Pu распадается до ^{236}U : $^{240}\text{Pu} \rightarrow ^{236}\text{U} + ^4\alpha$ ($T_{1/2} = 6537$ лет, $\chi_{2,2} = 1.216 \times 10^{-12}$ 1/с), $Q_{2,2} = 7$ Вт/кг, а α -распад приводит к превращению ^{236}U в ^{232}Th : $^{236}\text{U} \rightarrow ^{232}\text{Th} + ^4\alpha$. $T_{1/2} = 2.3 \times 10^7$ лет, $\chi_{3,2} = 9.57 \times 10^{-16}$ 1/с, $Q_{3,2} = 0.0013$ Вт/кг). При расчете тепловыделения, как и в случае ^{241}Am , ограничимся тремя реакциями распада ^{244}Cm . В первые сотни лет основной вклад в тепловыделение ВАО вносят ^{137}Cs и ^{90}Sr : β -распад ^{137}Cs ($T_{1/2} = 30.2$ года) ведет к появлению стабильного ^{137}Ba (через гамма-распад $^{137\text{m}}\text{Ba}$, $T_{1/2} = 2.5$ мин), а ^{90}Sr в результате β -распада трансформируется в ^{90}Y ($T_{1/2}$ равен 28.8 года), который путем β -распада (64 ч) превращается в стабильный ^{90}Zr . Эти процессы являются двухстадийными, но так как периоды полураспада дочерних элементов малы, то при моделировании тепловыделения распад ^{137}Cs и ^{90}Sr

будем считать одностадийным. Удельные (на единичную массу радионуклида) тепловыделения ^{137}Cs и ^{90}Sr обозначим Q_{Cs} и Q_{Sr} , они равны 435 Вт/кг и 1040 Вт/кг. Общее удельное объемное тепловыделение $W(t)$ матрицы радиоактивных отходов определяется как

$$\Omega(t) = Q_{\text{Cs}}\rho_{\text{Cs}}(t) + Q_{\text{Sr}}\rho_{\text{Sr}}(t) + \sum_{i=1}^2 \sum_{j=1}^3 \rho_{j,i}(t)Q_{j,i}, \quad (1)$$

где ρ_{Cs} , ρ_{Sr} – плотности ^{137}Cs и ^{90}Sr в матрице, $\rho_{j,i}$ – плотности j -го дочернего элемента в i -й цепи распада актинидов (Am, Cm). Если какие-то из радиоизотопов отсутствуют в ВАО, то это уравнение упрощается за счет обнуления соответствующего им значения ρ . Тепловыделение матриц, содержащих фракции ВАО с различным составом и содержанием, показано на рис. 2а. Примем, что блоки матриц имеют цилиндрическую форму диаметром 0.1 или 0.2 м, а их длина существенно больше диаметра, т.е. тепло распространяется перпендикулярно к оси блоков. Между контейнером с ВАО и породами расположен слой глины (бентонита) толщиной 0.2 м (рис. 2 б). При заданных условиях эволюция поля температур в хранилище отвечает уравнению:

$$\frac{\partial T}{\partial t} \rho(r)c(r) = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r\lambda(r) \frac{\partial T}{\partial r} \right] + W(t, r), \quad (2)$$

t – время; r – расстояние до оси контейнера; ρ – плотность среды (матрицы, буферного слоя, породы); c – удельная теплоемкость среды; λ – теплопроводность среды; T – температура среды; W – количество тепла, выделяющегося в единичном объеме среды в единицу времени.

$$c(r) = \begin{cases} c_{\text{matr}}, & 0 < r < R; \\ c_b, & R < r < R + \delta; \\ c_r, & R + \delta < r < \infty. \end{cases}$$

$$\rho(r) = \begin{cases} \rho_{\text{matr}}, & 0 < r < R; \\ \rho_b, & R < r < R + \delta; \\ \rho_r, & R + \delta < r < \infty. \end{cases}$$

$$\lambda(r) = \begin{cases} \lambda_{\text{matr}}, & 0 < r < R; \\ \lambda_b, & R < r < R + \delta; \\ \lambda_r, & R + \delta < r < \infty. \end{cases}$$

$$W(r, t) = \begin{cases} \Omega(t), & r < R; \\ 0, & r > R, \end{cases}$$

c_{matr} , c_b , c_r – удельные теплоемкости матрицы, буферного слоя и вмещающих пород; ρ_{matr} , ρ_b , ρ_r – плотности матрицы, буферного слоя и пород; λ_{matr} , λ_b , λ_r – теплопроводности матрицы, буферного слоя и вмещающих пород; величина $\Omega(t)$ определяется по формуле (1).

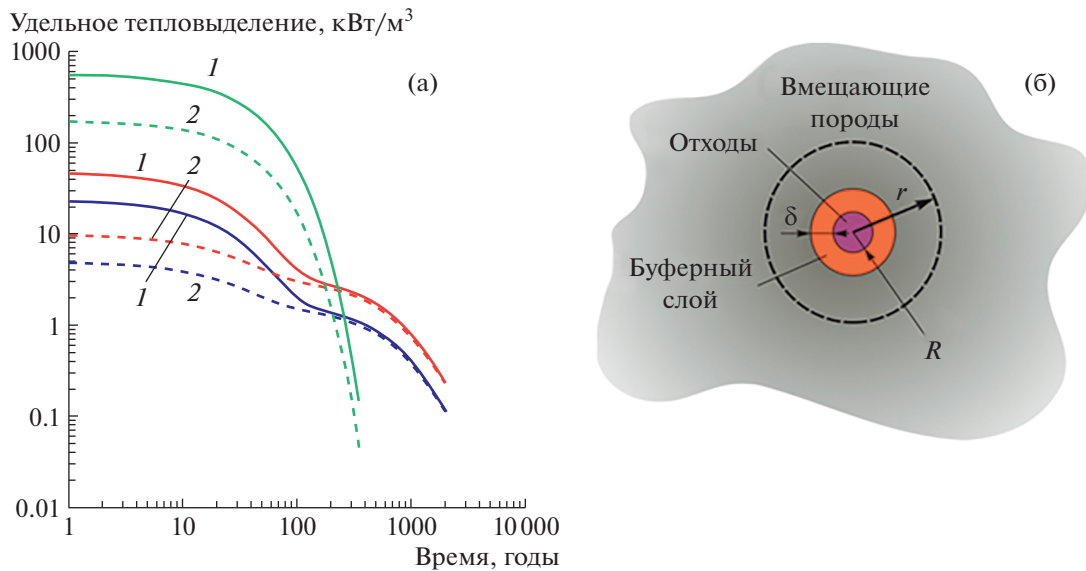


Рис. 2. Зависимость удельного тепловыделения фракций ВАО от времени (а) и поперечное сечение скважинного хранилища (б). Зеленые кривые – 45 мас. % фракции Cs–Sr, красные – 60 мас. % фракции REE–МА, синие – 30 мас. % фракции REE–МА. Сплошная линия (1) – без предварительного хранения, пунктирная линия (2) – выдержка отходов 50 лет до захоронения.

Вмещающие породы и буферный слой являются водонасыщенными. Поэтому в общем случае модель теплообмена в этой системе должна учитывать не только теплопроводную составляющую теплопереноса, как в уравнении (2), но также и ту часть, которая обусловлена развитием тепловой конвекции в подземных водах. Однако оценка чисел Пекле (Peclet) для такого процесса теплообмена показала, что для проницаемости вмещающих пород менее 10^{-16} м^2 (что характерно для плотных кристаллических пород при отсутствии в них трещиноватости) влияние тепловой конвекции подземных вод на отвод тепла от скважины будет незначительно.

Граничные и начальные условия для уравнения (2) имеют вид

$$r = 0, \quad \frac{\partial T}{\partial r} = 0; \quad (3)$$

$$r \rightarrow \infty, \quad \frac{\partial T}{\partial r} \rightarrow 0.$$

$$t = 0, \quad T = 0. \quad (4)$$

Для интегрирования уравнения (2) с учетом условий (3, 4) выбран конечно-разностный модифицированный полуявный метод Кранка–Николсона [19]. Условия на бесконечности отнесены к конечному значению $r = r_{\text{lim}}$, где r_{lim} – достаточно большое значение r , при котором температурные возмущения, обусловленные тепловыделением в отходах, незначительны. В расчетах в дальнейшем полагалось $r_{\text{lim}} = 100 \text{ м}$. Обозначим координаты узловых точек по оси r

$\{r_i, i = 1, \dots, L\}$, где $r_1 = 0$, $r_L = r_{\text{lim}}$. Наиболее существенные изменения температуры с увеличением r имеют место у границы источника тепла (т.е. у поверхности контейнера). В связи с этим расстояния между соседними узлами вблизи $r = R$ должны быть, как минимум, на порядок меньше R . Чтобы обеспечить достаточную точность моделирования распространения тепла через буфер, необходимо, чтобы расстояния между соседними узлами в его пределах были на порядок меньше δ . Поскольку $2R = 0.1\text{--}0.2 \text{ м}$, $\delta = 0.2 \text{ м}$, а $r_{\text{lim}} = 100 \text{ м}$, то разностная сетка по оси r должна быть густой в области контейнера, буфера и примыкающих пород и разреженной в удаленной от контейнера области моделирования. В противном случае число узловых точек по оси r будет слишком большим. С учетом всего вышесказанного было выбрано разбиение следующего типа:

1) В пределах контейнера расстояние между узловыми точками по оси r одинаково и равно $\Delta_r^w = R/(M_w - 1)$, где $M_w > 10$ – число узловых точек внутри контейнера (включая граничные узлы); номер узла на границе между контейнером и буфером ($r = R$) равен $I = M_w$.

2) В области буфера расстояние между узловыми точками по оси r одинаково и равно $\Delta_r^b = \delta/(M_b - 1)$, где $M_b > 10$ – число узловых точек в пределах слоя (включая граничные узлы); номер узла на границе между буфером и породами ($r = R + \delta$) равен $J = I + M_b - 1$.

3) Во вмещающих породах разностная сетка – неравномерная, расстояния между соседними узлами определяется рекуррентным соотношением: $r_{i+1} = r_i + G(r_i - r_{i-1})$ при $J + 1 \leq i \leq J + M - 1$ и $r_{J+1} = r_J + \Delta_r^b = R + \delta + \Delta_r^b$. Здесь M – число узловых точек в пределах вмещающих пород (включая граничные узлы), G – параметр неравномерности сетки; номер узла, соответствующего границе области моделирования ($r = r_{\text{lim}}$) равен $L = J + M - 1$.

Следовательно,

$$\Delta_r^b(1 + G + \dots + G^{M-1}) = r_{\text{lim}} - (R + \delta),$$

т.е. G – корень нелинейного уравнения

$$\frac{G^M - 1}{G - 1} - \frac{r_{\text{lim}} - R + \delta}{\Delta_r^b} = 0. \tag{5}$$

Уравнение (5) решалось методом дихотомии. Введем обозначения

$$t_n = \Delta_t(n - 1), \quad n \geq 1; \quad T_i^n = T(t_n, r_i).$$

Тогда граничные условия (3) запишутся в виде

$$T_2^n - T_1^n = 0, \quad T_L^n - T_{L-1}^n = 0; \quad n \geq 1. \tag{6}$$

Начальное условие (4) запишется в виде

$$T_i^1 = 0, \quad i = 1, \dots, L.$$

В соответствии с выбранным методом и типом разбиения оси r уравнение (1) аппроксимировалось конечно-разностными соотношениями.

1) В области контейнера ($2 \leq i \leq I - 1$)

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\lambda_{\text{matr}} \Delta_t}{2 \rho_{\text{matr}} c_{\text{matr}} (\Delta_r^w)^2 r_i} \times \left[\frac{r_i + r_{i+1}}{2} (T_{i+1}^{n+1} + T_{i+1}^n - T_i^{n+1} - T_i^n) - \frac{r_i + r_{i-1}}{2} (T_i^{n+1} + T_i^n - T_{i-1}^{n+1} - T_{i-1}^n) \right] + \frac{\Omega(t_n) \Delta_t}{\rho_{\text{matr}} c_{\text{matr}}}.$$

2) На границе контейнера и буферного слоя ($i = I$)

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\Delta_t}{\rho_{mb} c_{mb} r_i (\Delta_r^w + \Delta_r^b)} \times \left[\lambda_b \frac{r_i + r_{i+1}}{2 \Delta_r^b} (T_{i+1}^{n+1} + T_{i+1}^n - T_i^{n+1} - T_i^n) - \lambda_{\text{matr}} \frac{r_i + r_{i-1}}{2 \Delta_r^w} (T_i^{n+1} + T_i^n - T_{i-1}^{n+1} - T_{i-1}^n) \right] + \frac{\Omega(t_n) \Delta_t}{\rho_{mb} c_{mb}} \left(\frac{\Delta_r^w}{\Delta_r^w + \Delta_r^b} \right),$$

где

$$\rho_{mb} = \frac{\rho_{\text{matr}} \Delta_r^w + \rho_b \Delta_r^b}{\Delta_r^w + \Delta_r^b}, \quad c_{mb} = \frac{c_{\text{matr}} \Delta_r^w + c_b \Delta_r^b}{\Delta_r^w + \Delta_r^b}.$$

3) В буферном слое ($I + 1 \leq i \leq J - 1$)

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\lambda_b \Delta_t}{2 \rho_b c_b (\Delta_r^b)^2 r_i} \times \left[\frac{r_i + r_{i+1}}{2} (T_{i+1}^{n+1} + T_{i+1}^n - T_i^{n+1} - T_i^n) - \frac{r_i + r_{i-1}}{2} (T_i^{n+1} + T_i^n - T_{i-1}^{n+1} - T_{i-1}^n) \right].$$

4) На границе буферного слоя и вмещающих пород ($i = J$)

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\Delta_t}{2 \rho_{br} c_{br} r_i (\Delta_r^b)^2} \times \left[\lambda_r \frac{r_i + r_{i+1}}{2} (T_{i+1}^{n+1} + T_{i+1}^n - T_i^{n+1} - T_i^n) - \lambda_b \frac{r_i + r_{i-1}}{2} (T_i^{n+1} + T_i^n - T_{i-1}^{n+1} - T_{i-1}^n) \right],$$

где

$$\rho_{br} = \frac{\rho_b + \rho_r}{2}, \quad c_{br} = \frac{c_b + c_r}{2}.$$

5) Во вмещающих породах ($J + 1 \leq i \leq L - 1$)

$$T_i^{n+1} = T_i^n + \frac{\lambda_r \Delta_t}{\rho_r c_r (r_{i+1} - r_{i-1}) r_i} \times \left[\frac{r_i + r_{i+1}}{2(r_{i+1} - r_i)} (T_{i+1}^{n+1} + T_{i+1}^n - T_i^{n+1} - T_i^n) - \frac{r_i + r_{i-1}}{2(r_i - r_{i-1})} (T_i^{n+1} + T_i^n - T_{i-1}^{n+1} - T_{i-1}^n) \right].$$

Если известны температуры в узловых точках при $t = t_n$, то конечно-разностные аппроксимации уравнения (1) и граничных условий (2) образуют систему линейных уравнений относительно неизвестных значений температуры в узловых точках при $t = t_{n+1}$, т.е. $\{T_i^{n+1}, i = 1, \dots, L\}$. Система имеет матрицу вида Якоби и решалась методом прогонки для свойств матрицы, буфера и породы (табл. 1), взятых из литературы [1–3, 6–10, 20] или по собственным данным. Результаты вычислений сведены в табл. 2 для следующих условий: тип фракции (REE–МА или Cs–Sr) и ее массовая доля в матрице (30, 45 или 60%), диаметр блока (0.1 или 0.2 м), временное хранение отходов 50 лет или без него, через 3 года или 30 лет после захоронения ВАО. Верхняя граница области использования данной модели условно выбрана за 1000°C, что выше значения устойчивости бентонитового

Таблица 1. Теплофизические свойства матрицы, бентонитового буфера и вмещающей породы

| Матрица, буфер или вмещающая порода | Плотность, ρ_r , кг/м ³ | Удельная теплоемкость, c_r , Дж/(кг К) | Теплопроводность, λ_r , Вт/(м К) |
|-------------------------------------|---|--|--|
| 60 мас. % REE–MA | 5200 | 500 | 1.2 |
| 30 мас. % REE–MA | 4600 | 700 | 1.7 |
| 45 мас. % Cs–Sr | 2800 | 600 | 1.0 |
| Бентонитовый буфер | 1700 | 1000 | 0.8 |
| Порода, гранито-гнейс | 2850 | 965 | 1.5 |

Таблица 2. Расчет температуры в центре ⁽¹⁾ и на поверхности ⁽²⁾ блока матрицы в хранилище

| №№ п/п | Параметры расчета: диаметр блока, срок хранения и после захоронения | | | 60 мас. % REE–MA | 30 мас. % REE–MA | 45 мас. % Cs–Sr |
|--------|---|-----------------------------------|-----------------------------|--|------------------|-----------------|
| | $D_{\text{блока}}$, м | $t_{\text{врем. хранения}}$, лет | $t_{\text{захорон.}}$, лет | T , °C | T , °C | T , °C |
| 1 | 0.2 | 0 | 3 | <i>898⁽¹⁾/809⁽²⁾</i> | <i>386/358</i> | <i>>1000</i> |
| 2 | 0.2 | 0 | 30 | <i>468/430</i> | <i>201/190</i> | <i>>1000</i> |
| 3 | 0.2 | 50 | 3 | <i>191/173</i> | <i>82/76</i> | <i>>1000</i> |
| 4 | 0.2 | 50 | 30 | <i>136/125</i> | <i>59/55</i> | <i>>1000</i> |
| 5 | 0.1 | 0 | 3 | <i>265/243</i> | <i>114/107</i> | <i>>1000</i> |
| 6 | 0.1 | 0 | 30 | <i>133/124</i> | <i>58/55</i> | <i>>1000</i> |
| 7 | 0.1 | 50 | 3 | <i>57/52</i> | <i>24/23</i> | <i>554/500</i> |
| 8 | 0.1 | 50 | 30 | <i>39/36</i> | <i>17/16</i> | <i>353/325</i> |

Примечание. *Курсив* – значения выше предполагаемого предела устойчивости бентонита, равного 250°C [3].

буфера, но ниже температур плавления матриц и пород.

Температура в центре и на поверхности блока различается незначительно (рис. 3). Она снижается с уменьшением диаметра блока и доли фракции отходов в матрице, а также по мере увеличения срока временного ее хранения и нахождения после захоронения в скважине. Из-за ограничений по температуре, связанных с устойчивостью бентонита (менее 250°C), матрица с 60 мас. % фракции REE–MA при диаметре блока 0.2 м должна храниться не менее 50 лет до захоронения. Следовательно, оптимальный диаметр блока равен 0.1 м, поскольку такая матрица может размещаться в скважине без предварительной выдержки, а температура на поверхности блока составит около 250°C (60% REE–MA) или 100°C (30% REE–MA). С учетом толщины буферного слоя бентонита в 0.2 м такой размер блока возможен при диаметре скважины 0.5 м.

Максимальные значения температуры характерны для матрицы с Cs–Sr-фракцией ВАО, они выше предполагаемой устойчивости бентонитового буфера даже при наименьшем диаметре блока (0.1 м) и длительном сроке хранения в 50 лет. В дополнительных расчетах температуры при хранении матрицы 75 лет до окончательного захо-

ронения только в одном случае величина оказалась ниже 200°C (табл. 3). Однако к ним необходимо прибавлять фоновую температуру, достигающую 90–150°C на глубинах в 3–5 км. С учетом этого доля Cs–Sr-фракции в матрице, равная 45 мас. %, представляется слишком высокой. Тепловыделение ВАО можно уменьшить снижением концентрации фракции или ее разбавлением стабильными изотопами цезия и стронция. Вопрос об оптимальной доле Cs–Sr-фракции в матрице требует дополнительного исследования.

Со временем тепло радиоактивного распада будет рассеиваться в окружающей среде, что вызовет эволюцию теплового поля, как это показано на рис. 3 для матрицы с 30 и 60 мас. % фракции REE–MA или с 45 мас. % Cs–Sr-фракции через 100 и 1000 лет после размещения в хранилище без предварительной выдержки. Температура пород отличается от 0, поэтому эти линии нужно сместить на значение фона, который, с учетом геотермического градиента на глубинах от 3 до 5 км будет составлять от 90 до 150°C. Точки изгиба кривых (рис. 3б, 3г, 3е) отвечают границе сред с разными свойствами: матрица–буфер и буфер–порода. Со временем этот профиль становится более пологим, особенно для матрицы с отходами Cs–Sr-фракции из-за меньших периодов полу-

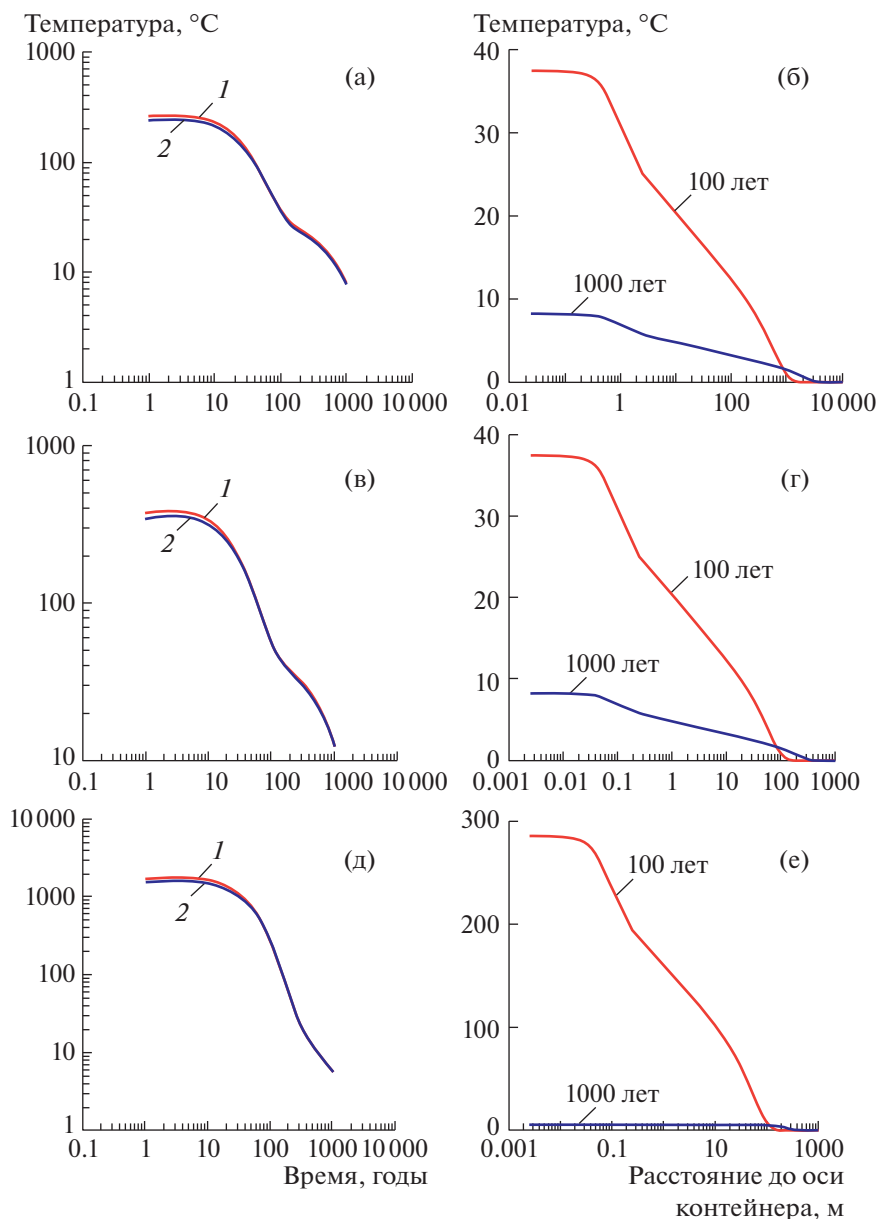


Рис. 3. Изменение со временем температуры матрицы с 60% (а) и 30% (в) фракции REE–МА или 45% (д) Cs–Sr-фракции (1 – ось блока, 2 – поверхность) и профили температур в ближней зоне хранилища отходов через 100 и 1000 лет (б, г, е). Диаметр блока равен 0.1 м (а, д) или 0.2 м (в). Без предварительной выдержки во временном хранилище.

распада радионуклидов цезия и стронция по сравнению с актинидами.

Для шахтного хранилища ОЯТ и ВАО в скальных породах или солях предполагаются предельные температуры в 150°C, а в вулканитах (туфах) – не выше 250°C [2–5, 12]. В эволюции параметров ближнего поля хранилища выделяется четыре стадии [4]: I – высокая температура, низкая влажность воздуха и высокий окислительный потенциал; II – высокая температура, низкие влажность и окислительный потенциал; III – высокие температура и влажность, низкий окислительный

потенциал; IV – снижение температуры до фоновых значений среды, низкий окислительный потенциал, поступление воды из вмещающих пород. Для скважинных хранилищ ожидаются более высокие значения температур, достигающие через первые десятки лет 200–550°C и даже 950°C [1, 9, 10] в зависимости от типа, содержания отходов, диаметра блока матрицы (табл. 2, 3). По мере распада радионуклидов и рассеяния тепла во вмещающих породах температура в хранилище и его ближнем поле снижается и тем быстрее, чем выше теплопроводность пород, которая зависит от их состава, а также содержания воды.

Таблица 3. Температуры в центре ⁽¹⁾ и на поверхности ⁽²⁾ цилиндрического блока матрицы Cs–Sr-фракции, размещенного в скважине после предварительной выдержки в течение 75 лет

| №№ | Параметры: диаметр блока (м), срок предварительного хранения и время после размещения в скважине (годы) | | | 45 мас. % фракции Cs–Sr |
|----|---|---------------------------------------|--------------------------------|---|
| | D _{блока матрицы} , м | t _{временное хранение} , лет | t _{захоронения} , лет | T, °C |
| 1 | 0.2 | 75 | 3 | 1046 ⁽¹⁾ /924 ⁽²⁾ |
| 2 | 0.2 | 75 | 30 | 687/623 |
| 3 | 0.1 | 75 | 3 | 308/278 |
| 4 | 0.1 | 75 | 30 | 196/180 |

Примечание. Курсив – значения выше предполагаемого предела устойчивости бентонитового буфера (250°C).

Повышение температуры оказывает отрицательный эффект на свойства стеклообразных матриц ВАО, вызывая их кристаллизацию и резкое увеличение интенсивности растворения в подземных водах. В то же время нагрев кристаллических матриц из-за тепла радиоактивного распада препятствует аморфизации или замедляет ее скорость и способствует сохранению ими высоких изоляционных характеристик. Ограничения по тепловыделению отходов снимаются в случае захоронения отходов с низким тепловыделением, например, долгоживущих ⁹⁹Tc и ¹²⁹I. Объем скважинного хранилища составляет первые десятки кубических метров, что примерно на 2 порядка ниже, чем у шахтного. При этом содержание отходов REE–MA-фракции в кристаллической матрице в 5–10 раз выше, чем в В–Si-стекле и в 20–50 раз выше, чем в используемой в нашей стране Al–P-композиции. Удельный вес кристаллической матрицы в 1.5–2 раза больше, чем у стекла и, поэтому, при одинаковом объеме в такой матрице содержится в 30–100 раз больше отходов REE–MA-фракции, чем в Al–P-стекле. Стоимость создания шахтного хранилища и проходки скважины до глубины 5 км различается многократно, составляя миллиарды и десятки миллионов долларов США соответственно. Кроме того, выбор участка и сооружение скважинного хранилища могут занять порядка 10 лет, что меньше, чем в случае шахтного хранилища (30–50 лет).

Теплофизические свойства матрицы ВАО и пород зависят от их состава, температуры, содержания воды в породах и будут меняться со временем. Задача работы состояла в разработке модели расчета теплового режима хранилища с целью оценки габаритов блоков и содержания в матрицах отходов, в дальнейшем она будет уточняться. Результаты позволяют заключить, что сверхглубокие скважины перспективны для размещения матриц с 30–60 мас. % фракции REE–MA при диаметре блока 0.1–0.2 м. Температуры в ближнем поле будут находиться в пределах устойчивости бентонита или несколько выше, но короткое

время. Пригодность таких хранилищ для изоляции актинидов требует дальнейшего анализа, в том числе возможности увеличения толщины стенок контейнера с отходами с целью исключения буфера на основе бентонита. Это, вместе с высокой устойчивостью минералоподобных матриц [1, 6, 16], обеспечит надежную локализацию актинидов.

БЛАГОДАРНОСТИ

Авторы благодарны рецензенту за замечания, позволившие улучшить текст статьи.

ИСТОЧНИК ФИНАНСИРОВАНИЯ

Работа выполнена по теме НИР государственного задания ИГЕМ РАН.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Radioactive Waste Forms for the Future. Lutze W., Ewing R.C. (eds.). Amsterdam: Elsevier, 1988. 778 p.
2. Wang J.S.Y., Mangold D.C., Tsang C.F. Thermal Impact of Waste Emplacement and Surface Cooling Associated with Geologic Disposal of High-level Nuclear Waste // Environmental Geology and Water Science. 1988. V. 11. № 2. P. 183–239.
3. Лаверов Н.П., Величкин В.И., Омеляненко Б.И., Юдинцев С.В., Петров В.А., Бычков А.В. Изоляция отработавших ядерных материалов: геолого-геохимические основы. М.: ИГЕМ РАН; ИФЗ РАН, 2008. 280 с.
4. Diomidis N., Johnson L.H. Materials Options and Corrosion-related Considerations in the Design of Spent Fuel and High-level Waste Disposal Canisters for a Deep Geological Repository in Opalinus Clay // JOM: Journal of The Minerals, Metals & Materials Society. 2014. V. 66. № 3. P. 461–470.
5. Geological Repository Systems for Safe Disposal of Spent Nuclear Fuels and Radioactive Waste. Apted M.J., Ahn J. (eds.). Kidlington, UK: Elsevier, 2017. 778 p.
6. Ringwood A.E. Disposal of High-level Nuclear Wastes: A Geological Perspective // Mineralogical Magazine. 1985. V. 49. P. 159–176.

7. *Gibb F.G.F., Travis K.P., McTaggart N.A., Burley D., Hesketh K.W.* Modeling Temperature Distribution Around Very Deep Borehole Disposals of HLW // Nuclear Technology. 2008. V. 163. P. 62–73.
8. *Krall L., McCartin T., Macfarlane A.* Siting Deep Boreholes for Disposal of Radioactive Waste: Consequences for Tight Coupling Between Natural and Engineered Systems // Environmental Science Technology. 2020. V. 54. P. 629–646.
9. *Sizgek G.D.* Thermal Considerations in a Very Deep Borehole Nuclear Waste Repository for Synroc // Proc. Symp. Mater. Research Society. V. 663. 2001. P. 819–826.
10. *Hsieh Y.H., Rushton M.J.D., Fossati P.C.M., Lee W.E.* Thermal Footprint of a Geological Disposal Facility Containing EURO-GANEX Wasteforms // Progress in Nuclear Energy. 2020. V. 118. 103065.
11. Spent Nuclear Fuel Reprocessing Flowsheet. Paris: OECD NEA, 2012. 120 p.
12. *Carter J.T., Luptak A.J., Gastelum J. Stockman C., Miller A.* Fuel Cycle Potential Waste Inventory for Disposition. Prepared for US DOE. 2012. 308 p.
13. Minor Actinide Burning in Thermal Reactors. Paris: OECD NEA, Report 6997. 2013. 78 p.
14. *Логунов М.В., Ворошилов Ю.А., Бабаин В.А., Скобцов А.С.* Опыт освоения, промышленной эксплуатации и оптимизации комплексной экстракционно-осадительной технологии фракционирования жидких высокоактивных отходов на ПО “Маяк” // Радиохимия. 2020. Т. 62. № 6. С. 463–484.
15. *Yudintsev S.V., Aleksandrova E.V., Livshits T.S., Mal'kovskii V.I., Bychkova Ya.V., Tagirov B.R.* Crystalline Matrices for Immobilization of Actinides: Corrosion Resistance in Water // Doklady Earth Sciences. 2014. V. 458. № 2. P. 1281–1284.
16. *Yudintsev S.V., Nikolskii M.S., Nikonov B.S., Malkovskii V.I.* Matrices for Isolation of Actinide Wastes in a Deep Well Repository // Doklady Earth Science. 2018. V. 480. № 1. P. 631–636.
17. *Yudintsev S.V., Livshits T.S., Zhang J., Ewing R.C.* The Behavior of Rare-earth Pyrochlores and Perovskites Under Ion Irradiation // Doklady Earth Sciences. 2015. V. 461. № 1. P. 247–253.
18. *Yudintsev S.V., Stefanovsky S.V., Kalenova M.Yu., Nikonov B.S., Nikol'skii M.S., Koshcheev A.M., Shepepin A.S.* Matrices for Immobilization of the Rare Earth–Actinide Waste Fraction, Synthesized by Cold Crucible Induction Melting // Radiochemistry. 2015. V. 57. № 3. P. 321–333.
19. *Роч П.* Вычислительная гидродинамика. М.: Мир, 1980. 616 с.
20. *Карслоу Г., Егер Д.* Теплопроводность твердых тел / Пер. с англ. М.: Наука, 1964. 487 с.

HEAT FIELD AROUND A BOREHOLE REPOSITORY OF RADIOACTIVE WASTE

Corresponding Member of the RAS S. V. Yudintsev^{a,#}, V. I. Malkovsky^a, and M. Yu. Kalenova^b

^a *Institute of Geology of Ore Deposits, Petrography, Mineralogy and Geochemistry, Russian Academy of Sciences, Moscow, Russian Federation*

^b *Leading Research Institute of Chemical Technology, Moscow, Russian Federation*

[#]*E-mail: yudintsevsv@gmail.com*

Thermal fields for deep borehole repository of Cs–Sr and REE-actinide fractions of high-level waste are calculated depending on the type and content of the waste, the size of the matrix block, and time of interim storage before disposal. These facilities are promising for disposal of the REE-actinide fraction incorporated into crystalline matrices with form of a cylindrical block with 0.1–0.2 m in diameter without interim storage.

Keywords: radioactive waste, fractions, isolation, disposal, borehole