DOI: 10.25283/2587-9707-2022-2-100-104 УДК 621.039

МОДЕЛЬ ТЕРМОМИГРАЦИИ ЖИДКОГО ВКЛЮЧЕНИЯ В МОНОКРИСТАЛЛЕ ГАЛИТОВ В ОДНОРОДНОМ ПОЛЕ ГРАДИЕНТА ТЕМПЕРАТУРЫ

А. Р. Аветисян, О. О. Корчагина, Л. В. Матвеев

Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН, Москва

Статья поступила в редакцию 23 декабря 2021 г.

Статья посвящена разработке модели эволюции жидкого включения в галитах в поле градиента температуры с учетом поверхностных явлений. Исследования процесса термомиграции жидких включений необходимы для обоснования безопасности захоронения тепловыделяющих радиоактивных отходов в соляных породах (галитах). На базе работы был создан программный комплекс для численной реализации этой модели, в котором уравнения диффузии с начальными и граничными условиями аппроксимируются методом конечных элементов на треугольных неструктурированных подвижных сетках, а также в слабой постановке дискретизируются и решаются в среде FEniCS. Сравнение результатов расчетов с экспериментальными данными показало их хорошее совпадение.

Ключевые слова: *радиоактивные отходы, градиент температуры, термомиграция, галиты, жидкие включения, разность химических потенциалов.*

Введение

Каменная соль (галиты) — широко распространенная горная порода, которая, несмотря на легкую растворимость в воде, сохраняется среди геологических формаций различных континентальных структур в течение сотен миллионов лет, первая и пока единственная геологическая формация, которая была рекомендована и реально использована для подземной изоляции радиоактивных отходов. В документах МАГАТЭ она оценивается как малопроницаемая, пластичная и практически необводненная геологическая среда с малозатратными условиями строительства подземных выработок [1]. Обширные сырьевые запасы каменной соли позволяют использовать соляные формации для строительства подземных хранилищ радиоактивных отходов.

При всех преимуществах изоляции РАО в геологические формации, до настоящего времени остается нерешенным вопрос долгосрочного прогнозирования стабильности и сохранения основных барьерных свойств геологической среды на участке размещения РАО. Для решения этой сложной научно-технической задачи необходимо привлечение данных различных направлений наук о Земле, использование достигнутого за последнее время высокого уровня обработки и интерпретации информации.

Постановка задачи

Рассматривается эволюция жидкого включения в геологической породе галитов в поле градиента температуры, из-за которого соль на границе включения неравномерно растворяется и оседает. На «горячей» границе включения происходит ее растворение, а на «холодной» — оседание. Этот эффект приводит к движению включения вдоль градиента температуры к источнику тепла с одновременным изменением его формы — вытягиванием вдоль изотермического направления [2, 3].

Химические потенциалы соли в твердой фазе и в растворе задаются выражениями:

$$\mu_S = \mu_{0,S}(P_L, T) + \upsilon_S(P_S - P_L), \qquad (1)$$

$$\mu_L = \mu_{0,L}(P_L, T) + RT\ln\alpha, \qquad (2)$$

где P_L — давление в жидкости, P_S — нормальное давление в твердом теле, α — активность соли в растворе, υ_S — молярный объем соли в твердой фазе, $\mu_{0,S}$ — химический потенциал соли в твердой фазе, $\mu_{0,L}$ — химический потенциал соли в жидкой фазе.

Термодинамическое равновесие соответствует условию $\mu_L = \mu_S$, но согласно работе [2], растворение и оседание соли на границе является неравновесным процессом, поэтому:

$$\mu_L = \mu_S + \Delta\mu, \qquad (3)$$

где $\Delta\mu$ — некоторый добавочный химический потенциал, отрицательный для растворяющейся границы и положительный для границы, на которую оседает соль из раствора.

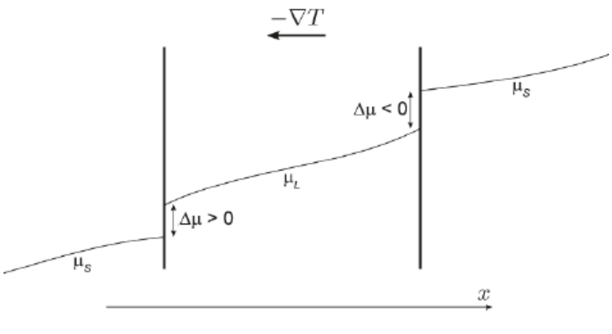

Рис. 1. Профиль химических потенциалов во включении

Используя (1)—(3) и принимая активность равной концентрации соли в растворе, получаем следующее выражение:

$$C = C_e(P_L, T)\exp\left(\frac{\Delta\mu}{RT}\right)\exp\left(-\frac{\upsilon_S\Delta p}{RT}\right). \qquad (4)$$

Здесь $C_e(P_L, T)$ — равновесная концентрация насыщенного раствора соли.

В работе [2] $\Delta\mu$ задается как

$$\Delta\mu = \begin{cases} -K_D \text{ — на растворяющейся грани,} \\ K_S \text{ — на растущей грани.} \end{cases} \qquad (5)$$

При этом $\Delta\mu$ на торцевых гранях определяется скоростью их движения, и в установившемся периоде (когда скорость торцевых граней нулевая) он исчезает.

Для простоты считаем, что $\Delta\mu$ зависит только от проекции скорости грани на ее нормаль и не зависит от ее типа (растворяющаяся, растущая, торцевая):

$$\Delta\mu(V) = \begin{cases} -K_D, & V \gg V_0 \\ K_S, & V \ll -V_0 \\ \sim -V, & |V| \ll V_0 \end{cases}. \qquad (6)$$

Здесь V_0 — некоторая характерная скорость, промежуточная между скоростями растущей и растворяющейся грани и скоростями торцевых граней.

Для обеспечения сквозного (безытерационного) счета кусочно-постоянная функция (6) аппроксимируется непрерывной функцией:

$$\begin{aligned} \Delta\mu &= a + b\cdot\tanh(V/V_0 - x_0), \\ a &= \frac{1}{2}(K_S - K_D), \\ b &= -\frac{1}{2}(K_D + K_S), \\ x_0 &= \operatorname{arctanh}(a/b). \end{aligned} \qquad (7)$$

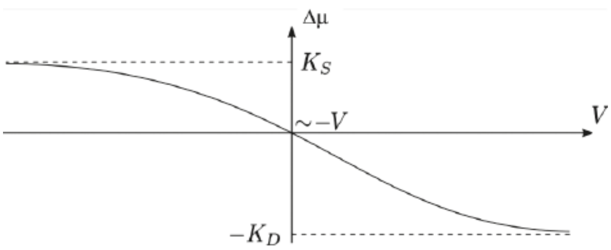

Рис. 2. Аппроксимация функции разности кинетического потенциала

Расчетная область представляет собой включение прямоугольной формы, каждая грань которого движется со своей скоростью V_i (рис. 3).

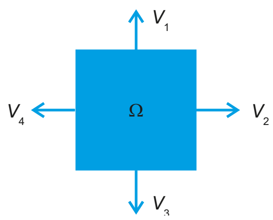

Рис. 3. Расчетная область и нормальные скорости границ

Концентрация C в области включения Ω удовлетворяет уравнению диффузии:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \mathbf{V}\nabla C - D\Delta C = 0. \qquad (8)$$

Граничные условия:

$$C\big|_{\Gamma} = C_e(T)\cdot\exp\left(\frac{\Delta\mu}{RT}\right)\exp\left(-\frac{\upsilon_S\Delta p}{RT}\right). \qquad (9)$$

Скорость изменения границы области определяется соотношением:

$$D\frac{\partial C}{\partial n}\bigg|_{\Gamma} = -C_S V_n\,, \qquad (10)$$

где C_S — молярная концентрация соли в твердом теле.

Начальные условия:

$$\begin{aligned} C(t=0) &= C_{e0} \\ T(t=0) &= T_0 \end{aligned}, \qquad (11)$$

где C_{e0} — равновесная концентрация соли в рассоле при T_0.

Численная реализация

Уравнение (8) с граничными и начальными условиями (9)—(11) аппроксимируется методом конечных элементов на треугольных неструктурированных подвижных сетках, которые строятся с помощью библиотеки AniAFT из пакета Ani2D [5].

Уравнение (8) дискретизируется методом Галеркина:

$$\frac{\partial}{\partial t}\int_{\Omega} C\omega d\Omega + \int_{\Omega} V\nabla C\omega d\Omega - D\int_{\Omega}\Delta C\omega d\Omega = 0\,,$$

где ω — пробная, кусочно-линейная функция.

Из теоремы Гаусса-Остроградского:

$$D\int_{\Omega}\Delta C\omega d\Omega = D\int_{\partial\Omega}\frac{\partial C}{\partial n}\omega d\Gamma - D\int_{\Omega}\nabla C\nabla\omega d\Omega\,,$$

подставляется граничное условие для нахождения скорости (10):

$$\frac{\partial}{\partial t}\int_{\Omega} C\omega d\Omega + \int_{\Omega} V\nabla C\omega d\Omega - C_S\int_{\partial\Omega} V_n\omega d\Gamma + D\int_{\Omega}\nabla C\nabla\omega d\Omega = 0.$$

Уравнение аппроксимируется по времени неявно: C — значение на n слое по времени (неизвестное), а $\tilde{C}$ — значение предыдущего шага (известное), тогда:

$$\frac{dC}{dt} = \frac{C-\tilde{C}}{\tau}\,,$$

$$\int_{\Omega}\frac{C-\tilde{C}}{\tau}\omega d\Omega - C_s\int_{\partial\Omega} V_n\omega d\Gamma + \int_{\Omega}(D\nabla C)\nabla\omega d\Omega = 0\,.$$

Предполагаем, что расчетная область сохраняет форму прямоугольника. Для определения скоростей границ и перестроения узлов сетки используется следующий прием: принимается допущение, что все узлы вдоль границ имеют одинаковую соответствующую нормальную скорость V_i:

$$\frac{1}{\tau}\int_{\Omega} C\omega d\Omega + \int_{\Omega}(D\nabla C)\nabla\omega d\Omega = \frac{1}{\tau}\int_{\Omega}\tilde{C}\omega d\Omega + C_S\sum_{i=1}^{4} V_i\int_{\Gamma_i}\omega d\Gamma. \quad (12)$$

Линейная задача относительно концентрации решается с помощью программного комплекса FEniCS.

Для определения C решается система нелинейных уравнений, полученная из граничного условия (9):

$$\int_{\Gamma_i} Cd\Gamma = \int_{\Gamma_i} C_e\exp\left(\frac{\Delta\mu}{RT}\right)\exp\left(\frac{\upsilon_S\Delta p}{RT}\right)d\Gamma. \quad (13)$$

Система уравнений (12) и (13) полностью определяет концентрацию и скорости границ. Величина $\Delta\mu$ ависит лишь от скорости границы, поэтому $\exp\left(\frac{\Delta\mu}{RT}\right)$ может быть вынесена из-под знака интеграла. При вычислении интегралов от известных величин получается система из четырех нелинейных уравнений, которая решается методом Ньютона.

Для нахождения скорости в каждом узле расчетной области принимаются следующие допущения: предполагается, что жидкость во включении несжимаемая $\operatorname{div}\mathbf{V}=0$, течение потенциально $\mathbf{V}=\operatorname{grad}\varphi$, поэтому в данной задаче используется уравнение Пуассона.

$$\begin{aligned} &\Delta\varphi = 0 \text{ в } \Omega, \\ &\frac{\partial\varphi}{\partial n} = V_n \text{ на } \partial\Omega. \end{aligned} \qquad (14)$$

В качестве V_n подставлется решение системы уравнений (13).

Задача (14) дискретизируется методом Галеркина, решается с помощью программного комплекса FEniCS.

После нахождения скорости каждого узла области находятся векторы перемещений узлов.

В процессе расчетов шаг по времени регулируется так, чтобы включение деформировалось на величину порядка параметра сетки h — минимального размера сетки (чтобы избежать ее значительных искажений). Также отслеживается ее качество: если оно падает ниже критического значения, сетка перестраивается с помощью библиотеки AniAFT.

Реализация численных методов была осуществлена с помощью открытой программной среды FEniCS [4].

Результаты

При численном решении поставленной задачи использовались константы и параметры, соответствующие условиям эксперимента, описанным в работе [2]. В настоящей статье показана эволюция четырех включений разных размеров. Трансформация одного из них приведена на рис. 4. Вычисления проводились для сравнения с этими экспериментальными данными. Результаты расчетов приведены на рис. 5.

Сравнение рис. 4 и рис. 5 показывает, что численное решение качественно согласуется с экспериментальными результатами [2], но имеется значительное количественное рассогласование во времени стабилизации. Это обусловлено следующими факторами: во-первых, двухмерной постановкой модельной задачи, в отличие от реального трехмерного эксперимента, и, во-вторых, аппроксимацией $\Delta\mu$ функцией (7), которая в дальнейшем может быть заменена более подходящей.

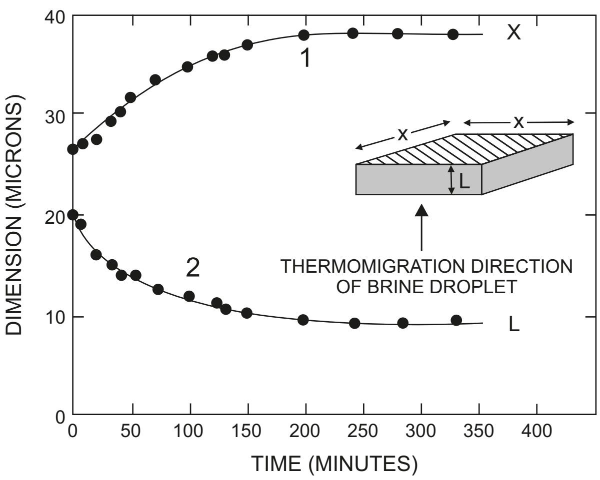

Рис. 4. Эволюция вертикального (1) и горизонтального (2) размеров включения [2]

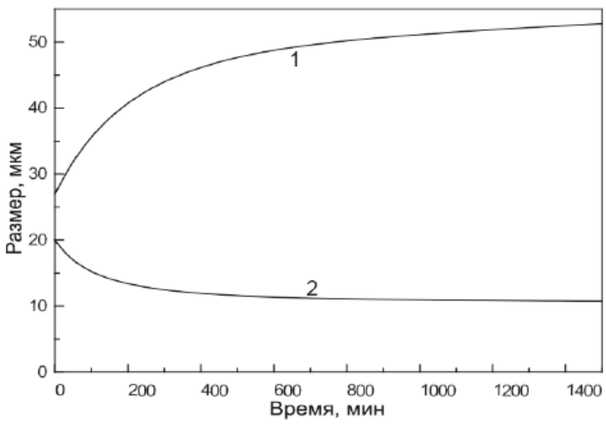

Рис. 5. Эволюция вертикального (1) и горизонтального (2) размеров включения

Заключение

В работе рассматривается микроскопическая модель эволюции жидкого включения в поле градиента температуры с учетом поверхностных явлений.

Разработан программный комплекс для численной реализации этой модели, основанный на методе конечных элементов на подвижной адаптивной сетке.

Сравнение результатов расчетов с экспериментальными данными [2] показало их хорошее совпадение.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проект 20-08-01192).

Литература

1. *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.
2. *Anthony T. R., Cline H. E.* Thermal Migration of Liquid Droplets through Solids Solids // Journal of Applied Physics. 1971. Vol. 42. P. 3380. DOI: 10.1063/1.1660741.
3. *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—390.
4. *Alnaes M. S., Blechta J., Hake J., et al.* The FEniCS Project Version 1.5. // Archive of Numerical Software. 2015. Vol. 3. no. 100. Pp. 9—23. DOI: 10.11588/ans.2015.100.20553.
5. *Lipnikov K., Vassilevski Yu., Danilov A., et al.* Advanced numerical instruments 2D. — URL: https://sourceforge.net/projects/ani2d (дата обращения: 06.12.2021).

Информация об авторах

Аветисян Артур Робертович, кандидат физико-математических наук, старший научный сотрудник, Институт проблем безопасного развития атомной энергетики РАН (115191, Москва, Большая Тульская ул., д. 52), e-mail: avetis@ibrae.ac.ru.

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

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.ru.

Библиографическое описание статьи

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: 10.25283/2587-9707-2022-2-100-104.

MODEL OF A THERMALLY INDUCED LIQUID INCLUSION MIGRATION IN A SINGLE CRYSTAL OF HALITES UNDER A HOMOGENEOUS TEMPERATURE GRADIENT FIELD

Avetisyan A. R., Korchagina O. O., Matveev L. V.

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

Article received on December 23, 2021

The paper focuses on an evolution model developed for a liquid inclusion in halites under a temperature gradient field, taking into account surface phenomena. To demonstrate the safety of heat-generating radioactive waste disposal in salt rocks (halites), thermally induced migration of liquid inclusions should be studied. Based on the study, a software package was developed providing numerical implementation of this model. The diffusion equation with initial and boundary conditions was approximated via the finite element method on triangular unstructured mobile grids. In case of weak formulation, the equations were discretized and solved in the FEniCS software. The study showed good agreement between the calculations and the experimental data.

Keywords: *radioactive waste, temperature gradient, thermomigration, halites, liquid inclusions, chemical potential difference.*

References

1. Savonenkov V. G., Shabalev S. I. *Geokhimicheskie issledovaniya podzemnykh yadernykh vzryvov v kamennoi soli kak analogov zakhoroneniya RAO v solyanykh formatsiyakh* [Geochemical research of underground nuclear explosions in rock salt considered as analogues of radioactive waste disposal facilities in salt formations]. Saint-Petersburg, Publishing house "Info Ol" Publ., 2014. 270 p.
2. Anthony T. R., Cline H. E. Thermal Migration of Liquid Droplets through Solids. *Journal of Applied Physics,* 1971, vol. 42, p. 3380. DOI: 10.1063/1.1660741.
3. Geguzin Ya. Ye., Dzyuba A. S., Kruzhanov V. S. Issledovanie povedeniya zhidkikh vklyuchenii v kristalle v pole temperaturnogo gradienta [Behavior of liquid inclusions in a crystal under a temperature gradient field]. *Kristallografiya — Crystallography,* 1975, vol. 20, iss. 2, pp. 383—390.
4. Alnaes M. S., Blechta J., Hake J., et al. The FEniCS Project Version 1.5. *Archive of Numerical Software,* 2015, vol. 3, no. 100, pp. 9—23. DOI: 10.11588/ans.2015.100.20553.
5. Lipnikov K., Vassilevski Yu., Danilov A., et al. Advanced numerical instruments 2D. — URL: https://sourceforge.net/projects/ani2d (accessed on 06.12.2021).

Information about the authors

Avetisyan Artur Robertovich, PhD, Senior Researcher, Nuclear Safety Institute of the Russian Academy of Sciences (52, Bolshaya Tulskaya st., Moscow, 115191, Russia), e-mail: avetis@ibrae.ac.ru.

Korchagina Olesya Olegovna, junior researcher, graduate student, 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 Sciences in Physics and Mathematics, 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

Avetisyan A. R., Korchagina O. O., Matveev L. V. Model of a Thermally Induced Liquid Inclusion Migration in a Single Crystal of Halites under a Homogeneous Temperature Gradient Field. *Radioactive Waste,* 2022, no. 2 (19), pp. 100—104. DOI: 10.25283/2587-9707-2022-2-100-104. (In Russian).