

Кінетика переносу радіонуклідів у склоподібних радіоактивно збуджених матеріалах

Михайло Токарчук¹, Анатолій Жаліло², Євген Чапля³, Ольга Чернуха⁴

¹ проф., д. ф.-м. н., Інститут конденсованих систем НАН України, вул. Свінціцького, 1, Львів, 79011, Національний університет «Львівська політехніка», вул. С. Бандери, 12, Львів, 79013, e-mail: mtok@icomp.lviv.ua

² с. н. с., к. ф.-м. н., Відділення математики НАН України, вул. Володимирська, 54, Київ, 06100, e-mail: vmat@nas.gov.ua

³ с. н. с., к. ф.-м. н., Центр математичного моделювання ІПММ ім. Я. С. Підстригача НАН України, вул. Дж. Дудаєва, 15, Львів, 79005; Інститут механіки середовища і прикладної інформатики Університету Казимира Великого в Бидгощі, вул. Ходкевича, Бидгощ, 85-064, Польща, e-mail: chaplia@cmm.lviv.ua

⁴ с. н. с., к. ф.-м. н., Центр математичного моделювання ІПММ ім. Я. С. Підстригача НАН України, вул. Дж. Дудаєва, 15, Львів, 79005, e-mail: cher@cmm.lviv.ua

У роботі в рамках континуальних наближень досліджується міграція радіоактивної домішки двома шляхами в шарі склоподібного паливомісткого матеріалу, які відповідають знаходженню радіоактивних частинок у суттєво збурених мікрообластях і поза ними. За різних граничних умов проаналізовано вплив параметрів матеріалу на розподіли концентрації радіонуклідів у шарі, сумарних потоків маси та кількості радіоактивної речовини, вимитої з поверхні тіла.

Ключові слова: гетеродифузія, склоподібні матеріали, радіонукліди.

Вступ. У результаті аварії на Чорнобильській атомній електростанції утворилися лавоподібні паливомісткі матеріали (ЛПВМ), які за фізичними і хімічними властивостями близькі до силікатного скла (SiO_2 , MgO , Al_2O_3 , CaO). У певному наближенні їх можна вважати гетерогенними твердими розчинами, які утворені силікатною склоподібною матрицею з різного роду включеннями [1]. Реальні умови, що виникають в об'єкті «Укриття» призводять до утворення ядерного пилу з субмікронною фракцією, вимивання та перерозподілу радіоактивних елементів [2, 3] і вимагають дальшого вивчення.

Одним із основних чинників, які впливають на інтенсивність згаданих процесів, є самоопромінювання, що спричиняє виникнення і підтримку метастабільного стану склоподібних ЛПВМ [4]. Так, самоопромінювання α -частинками та тяжкими ядрами віддачі призводить до дефектоутворення близько $5 \cdot 10^{-4}$ зміщень на атом, причому 90% усіх стійких радіаційних дефектів забезпечується тяжкими ядрами віддачі. Основними джерелами α -активності та нейтронів спонтанного поділу є ізотопи $^{238-240}Pu$, ^{241}Am , ^{242}Am , ^{242}Cm , ^{244}Cm [5]. Взаємодія випромінених α -частинок з атомами B , O , Na , Mg , Al , Li , C , Be , що містяться в ЛПВМ, супроводжується реакцією (α, γ) і додатково генерує потік нейтронів.

При цьому надлишок енергії може вивільнятися через рух пор (доступна пористість від 2% до 10% [6]), пилоутворення та розтріскування поверхні.

При макроскопічному описі процесів дифузії окремих компонент такої системи приймемо, що у межах кожного фізично малого елемента частинки перебувають у двох фізично різних станах — у збурених мікрообластях і поза ними, де вони істотно відрізняються своєю рухливістю. Це призводить до гетеродифузії двома шляхами і супроводжується переходом з одного шляху дифузії на інший. У цьому випадку перерозподіл домішок має суттєві відмінності порівняно з їхнім перерозподілом в однорідних середовищах, які описують на основі моделі з ефективними характеристиками [7, 8]. Ряд особливостей процесу перенесення для такого типу матеріалів істотно залежать від крайових умов.

У даній роботі на основі моделі гетеродифузії частинок двома шляхами досліджується міграція радіоактивної домішки в шарі ЛПВМ за різних граничних умов, що відповідають вірогідним прогнозним оцінкам перебування його в реальних умовах. Аналізується вплив параметрів матеріалу на розподіли концентрації радіонуклідів у шарі ЛПВМ, потоків маси і кількості радіоактивної речовини, вимитої з поверхні тіла.

1. Вихідні модельні співвідношення

Якщо обмежитись розглядом тільки дифузійних процесів, то за ізотермічних та ізобаричних умов міграція двома шляхами описується системою балансових рівнянь [8]

$$\rho \frac{dC_1(t, \vec{r})}{dt} = -\vec{\nabla} \cdot \vec{J}_1 - J, \quad \rho \frac{dC_2(t, \vec{r})}{dt} = -\vec{\nabla} \cdot \vec{J}_2 + J. \quad (1)$$

де $C_i(t, \vec{r})$ — масові концентрації домішкової речовини в стані i ($i = 1, 2$), \vec{J}_i — дифузійні потоки в цих станах, J — локальний скалярний потік, що відповідає переходу частинок з одного стану в інший; $d/dt = \partial/\partial t + \vec{v} \cdot \vec{\nabla}$ — повна похідна за часом, $\vec{\nabla} = \vec{i}^\alpha \partial/\partial x^\alpha$ — оператор Гамільтона, \vec{i}^α — базисний одиничний орт, x^α — координата декартової системи координат, до якої віднесений ейлерів простір, $\vec{r} = x^\alpha \vec{i}_\alpha$ ($\alpha = \overline{1,3}$); t — час; \vec{v} — швидкість точок континууму центрів мас; крапкою між величинами позначена їхня згортка і за індексами, що повторюються — сумування.

Нехтуючи перехресними ефектами, потоки домішкової речовини можна подати наступним чином

$$\vec{J}_1 = -L_1 \vec{\nabla} \mu_1(t, \vec{r}), \quad \vec{J}_2 = -L_2 \vec{\nabla} \mu_2(t, \vec{r}); \quad J = \theta (\mu_1 - \mu_2), \quad (2)$$

де μ_i — хімічний потенціал частинок у стані i ($i = 1, 2$), L_1 , L_2 , θ — кінетичні коефіцієнти, пов'язані з дифузією і процесом переходу частинок з одного стану в інший.

Зв'язок між концентраціями і хімічними потенціалами має логарифмічний характер [8-10]

$$\mu_1(t, \vec{r}) = \mu_1^0 + A \ln[\gamma_1 C_1(t, \vec{r})], \quad \mu_2(t, \vec{r}) = \mu_2^0 + A \ln[\gamma_2 C_2(t, \vec{r})], \quad (3)$$

де μ_i^0 — значення хімічного потенціалу i -ої компоненти для чистої речовини у стані, який заданий значеннями абсолютної температури T і тиску P ; $A = RT/M$ — коефіцієнт, у якому R — універсальна газова стала та M — атомна вага, γ_i — коефіцієнти активності.

Зазначимо, що в загальному випадку коефіцієнти активності γ_i залежать від температури T , тиску P та концентрації, тобто $\gamma_1 = \gamma_1(T, P, C_2)$, $\gamma_2 = \gamma_2(T, P, C_1)$. При цьому з того, що $C_i \rightarrow 1$, випливає $\gamma_i \rightarrow 1$.

Лінеаризовані співвідношення (3) мають вигляд

$$\mu_1(t, \vec{r}) = \mu_1^0 - A[1 - \gamma_1 C_1(t, \vec{r})], \quad \mu_2(t, \vec{r}) = \mu_2^0 - A[1 - \gamma_2 C_2(t, \vec{r})]. \quad (4)$$

Тоді, нехтуючи конвективним перенесенням, одержимо лінійну систему взаємозв'язаних диференціальних рівнянь у часткових похідних, записану для концентрацій домішкових частинок

$$\frac{\partial C_1}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (D_1 \vec{\nabla} C_1) - k_1 C_1 + k_2 C_2, \quad \frac{\partial C_2}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (D_2 \vec{\nabla} C_2) + k_1 C_1 - k_2 C_2, \quad (5)$$

де D_1 — коефіцієнт дифузії радіоактивних частинок у збурених мікрообластях, D_2 — коефіцієнт дифузії домішки поза ними; k_1 — коефіцієнт інтенсивності переходу частинок зі збуреної мікрообласті в основну матрицю матеріалу, k_2 — коефіцієнт інтенсивності зворотного переходу.

Система рівнянь гетеродифузії запишемо у природній безрозмірній формі [8]. З цією метою використаємо безрозмірні змінні

$$\tau = kt, \quad \xi_\alpha = \left(\frac{k}{D}\right)^{1/2} x_\alpha \quad (\alpha = \overline{1,3}). \quad (6)$$

Тут $k = \min\{k_1, k_2\}$ і $D = \max\{D_1, D_2\}$. Зауважимо, що перехід до безрозмірних змінних (6) стискає часову вісь і розтягує осі просторових координат. Тоді система рівнянь (5) у безрозмірних змінних (6) набуде вигляду

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_1(\tau, \xi)}{\partial \tau} &= d_1 \Delta_\xi C_1(\tau, \xi) - a_1 C_1(\tau, \xi) + a_2 C_2(\tau, \xi), \\ \frac{\partial C_2(\tau, \xi)}{\partial \tau} &= d_2 \Delta_\xi C_2(\tau, \xi) + a_1 C_1(\tau, \xi) - a_2 C_2(\tau, \xi), \end{aligned} \quad (7)$$

де $d_i = D_i/D$, $a_i = k_i/k$, причому $d_i \leq 1$, а $a_i \geq 1$; Δ_ξ — оператор Лапласа в змінних ξ_α .

При формулюванні задач масоперенесення рівняння (5) (або (7)) потрібно доповнити відповідними крайовими умовами, вигляд яких залежить від реального вихідного розподілу радіонуклідів у досліджуваному зразку ЛПВМ та його взаємодії з довкіллям.

2. Концентрація радіонуклідів у ЛПВМ за гетеродифузного масоперенесення

Розглянемо шар ЛПВМ, товщина якого в безрозмірних змінних є ξ_0 (рис. 1). Приймаємо, що в початковий момент часу $\tau = 0$ в тілі однорідно розподілена Радіоактивна речовина

$$C_1(\tau, \xi)|_{\tau=0} = \alpha C_0, \quad C_2(\tau, \xi)|_{\tau=0} = (1 - \alpha)C_0, \quad (8)$$

де $C_0 \equiv const$ — сумарна концентрація частинок у шарі; α — параметр, який визначає рівноважний розподіл домішкової речовини між станами 1 і 2 ($0 \leq \alpha \leq 1$). Цей параметр можна визначити, наприклад, з умови термодинамічної рівноваги щодо процесу переходу частинок між різними шляхами міграції, тобто з умови $\mu_1(t, \vec{r}) = \mu_2(t, \vec{r})$, яка в безрозмірній формі прийме вигляд $a_1 C_1 - a_2 C_2 = 0$.

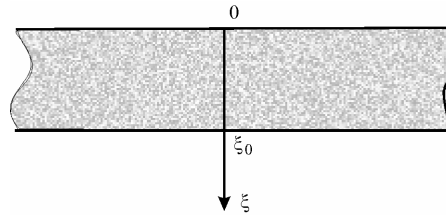


Рис. 1. Шар ЛПВМ, в якому мігрує радіоактивна домішка

Тоді, оскільки сумарна концентрація $C = C_1 + C_2$, то значення величини α , що відповідає рівноважному стану в початковий момент часу, буде

$$\alpha = \alpha_{\text{рівн}} = \frac{a_2}{a_1 + a_2}. \quad (9)$$

Також приймаємо, що на границі шару $\xi = 0$ підтримується постійне значення сумарної концентрації C_0 і виконується умова термодинамічної рівноваги ($\mu_1(t, \vec{r}) = \mu_2(t, \vec{r})$) розподілу радіоактивних частинок між станами

$$C_1|_{\xi=0} = \alpha C_0, \quad C_2|_{\xi=0} = (1 - \alpha)C_0, \quad (10)$$

на границі $\xi = \xi_0$ відбувається вимив домішкової речовини

$$C_1|_{\xi=\xi_0} = 0, \quad C_2|_{\xi=\xi_0} = 0. \quad (11)$$

Система рівнянь гетеродифузії в одновимірному випадку в безрозмірних змінних має вигляд

$$\frac{\partial C_1}{\partial \tau} = d_1 \frac{\partial^2 C_1}{\partial \xi^2} - a_1 C_1 + a_2 C_2, \quad \frac{\partial C_2}{\partial \tau} = d_2 \frac{\partial^2 C_2}{\partial \xi^2} + a_1 C_1 - a_2 C_2. \quad (12)$$

Для розв'язання крайової задачі (12), (8), (10), (11) використаємо методику, запропоновану в [8]. Введемо нові невідомі функції, для яких граничні умови будуть нульовими

$$f_1(\xi, \tau) = C_1(\xi, \tau) - \alpha C_0 \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0}\right), \quad f_2(\xi, \tau) = C_2(\xi, \tau) - (1 - \alpha) C_0 \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0}\right). \quad (13)$$

Ці функції f_1, f_2 задовольняють систему рівнянь

$$\begin{aligned} \frac{\partial f_1}{\partial t} &= d_1 \frac{\partial^2 f_1}{\partial \xi^2} - a_1 f_1 + a_2 f_2 - \alpha_k C_0 \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0}\right), \\ \frac{\partial f_2}{\partial t} &= d_2 \frac{\partial^2 f_2}{\partial \xi^2} + a_1 f_1 - a_2 f_2 + \alpha_k C_0 \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0}\right), \end{aligned} \quad (14)$$

і такі початкові й граничні умови

$$f_1(\xi, \tau)|_{\tau=0} = \alpha C_0 \frac{\xi}{\xi_0}, \quad f_2(\xi, \tau)|_{\tau=0} = (1 - \alpha) C_0 \frac{\xi}{\xi_0}; \quad (15)$$

$$f_1(\xi, \tau)|_{\xi=0} = f_2(\xi, \tau)|_{\xi=0} = f_1(\xi, \tau)|_{\xi=\xi_0} = f_2(\xi, \tau)|_{\xi=\xi_0} = 0. \quad (16)$$

Тут $\alpha_k = a_1 \alpha - a_2(1 - \alpha)$.

Далі, одержуємо:

розподіл концентрації радіонуклідів у збурених мікрообластях

$$\begin{aligned} \frac{C_1(\xi, \tau)}{C_0} &= \alpha \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0}\right) - \frac{d_2 \alpha_k}{d_a} \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0} - \frac{\text{sh} \bar{a}(\xi_0 - \xi)}{\text{sh} \bar{a} \xi_0}\right) - \\ &- \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \sin y_n \xi}{n \pi (s_{1n} - s_{2n})} \left[R_1(n) e^{s_{1n} \tau} - R_2(n) e^{s_{2n} \tau} \right]; \end{aligned}$$

розподіл концентрації частинок у основній матриці матеріалу

$$\frac{C_2(\xi, \tau)}{C_0} = (1 - \alpha) \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0}\right) + \frac{d_1 \alpha_k}{d_a} \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0} - \frac{\text{sh} \bar{a}(\xi_0 - \xi)}{\text{sh} \bar{a} \xi_0}\right) -$$

$$-\sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \sin y_n \xi}{n\pi(s_{1n} - s_{2n})} \left[P_1(n) e^{s_{1n}\tau} - P_2(n) e^{s_{2n}\tau} \right];$$

розподіл сумарної концентрації в середовищі

$$\begin{aligned} \frac{C(\xi, \tau)}{C_0} = & 1 - \frac{\xi}{\xi_0} + \frac{\alpha_k (d_1 - d_2)}{d_a} \left(1 - \frac{\xi}{\xi_0} - \frac{\text{sh}\bar{a}(\xi_0 - \xi)}{\text{sh}\bar{a}\xi_0} \right) - \\ & - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{2 \sin y_n \xi}{n\pi(s_{1n} - s_{2n})} \left[(R_1(n) + P_1(n)) e^{s_{1n}\tau} - (R_2(n) + P_2(n)) e^{s_{2n}\tau} \right]. \end{aligned} \quad (17)$$

Тут $y_n = n\pi/\xi_0$, $\bar{a} = \sqrt{d_a/d_1 d_2}$, $R_i(n) = (-1)^n \alpha s_{in} + A_{1n} + \frac{A'_{1n}}{s_{in}}$,

$P_i(n) = (-1)^n (1 - \alpha) s_{in} + A_{2n} - \frac{A'_{2n}}{s_{in}}$ ($i = 1; 2$), $A'_{1n} = d_2 y_n^2 \alpha_k$, $A'_{2n} = d_1 y_n^2 \alpha_k$;

$A_{1n} = \alpha_k + (-1)^n [a_2 + \alpha d_2 y_n^2]$, $A_{2n} = -\alpha_k + (-1)^n [a_1 + (1 - \alpha) d_1 y_n^2]$,

$s_{1n,2n}$ — корені квадратного рівняння $s^2 + \eta_{1n}s + \eta_{2n} = 0$,

$\eta_{1n} = (d_1 + d_2) y_n^2 + a_1 + a_2$, $\eta_{2n} = d_1 d_2 y_n^2 + (a_1 d_2 + a_2 d_1) y_n^2$, $d_a = a_1 d_2 + a_2 d_1$.

3. Масові потоки та кількість речовини, яка вимита з поверхні візця

Виходячи з формул (2) та (5), потоки маси радіоактивних частинок через поверхню $x = x_*$ визначаються співвідношеннями

$$J_1(t) = -D_1 \left. \frac{\partial C_1(x,t)}{\partial x} \right|_{x=x_*}, \quad J_2(t) = -D_2 \left. \frac{\partial C_2(x,t)}{\partial x} \right|_{x=x_*},$$

або, використовуючи формули (6), у безрозмірній формі отримаємо

$$J_1(\tau) = -\sqrt{kD} d_1 \left. \frac{\partial C_1}{\partial \xi} \right|_{\xi=\xi_*}, \quad J_2(\tau) = -\sqrt{kD} d_2 \left. \frac{\partial C_2}{\partial \xi} \right|_{\xi=\xi_*}, \quad (18)$$

при цьому сумарний потік через поверхню $\xi = \xi_*$, тобто $J_{\xi_*}(\tau) = J_1|_{\xi=\xi_*} + J_2|_{\xi=\xi_*}$, буде таким

$$J_{\xi_*}(\tau) = -\sqrt{kD} \left(d_1 \frac{\partial C_1}{\partial \xi} + d_2 \frac{\partial C_2}{\partial \xi} \right) \Big|_{\xi=\xi_*}. \quad (19)$$

Підставляючи у співвідношення (19) формули (17) для концентрацій $C_1(\xi, \tau)$ і $C_2(\xi, \tau)$, знайдемо

$$\frac{\xi_0}{C_0 \sqrt{kD}} J_{\xi_*}(\tau) = \bar{d} + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos y_n \xi_*}{s_{1n} - s_{2n}} \left[\left((-1)^n \bar{d} s_{1n} + B_n \right) e^{s_{1n} \tau} - \left((-1)^n \bar{d} s_{2n} + B_n \right) e^{s_{2n} \tau} \right], \quad (20)$$

де $B_n = \alpha_k (d_1 - d_2) + (-1)^n (d_a + d_1 d_2 y_n^2)$, $\bar{d} = \alpha d_1 + (1 - \alpha) d_2$.
Зокрема, потік через поверхню шару $\xi = \xi_0$ буде

$$\frac{\xi_0}{C_0 \sqrt{kD}} J_{\xi_0}(\tau) = \bar{d} + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{1}{s_{1n} - s_{2n}} \left[\left(\bar{d} s_{1n} + (-1)^n B_n \right) e^{s_{1n} \tau} - \left(\bar{d} s_{2n} + (-1)^n B_n \right) e^{s_{2n} \tau} \right]. \quad (21)$$

Кількість радіоактивної речовини, що пройшла за час τ_* через одиницю площі поверхні $\xi = \xi_*$, визначається за формулою

$$Q_{\xi_*} = \int_0^{\tau_*} J_{\xi_*}(\tau) d\tau. \quad (22)$$

Після підстановки виразу для сумарного потоку (21) у (22) та інтегрування, одержимо

$$\frac{\xi_0}{C_0 \sqrt{kD}} Q_{\xi_*} = \frac{\xi_0^2}{6} \left(3 \frac{\xi_*^2}{\xi_0^2} - 1 \right) + \bar{d} \tau_* + 2 \alpha_k (d_1 - d_2) \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos y_n \xi_*}{y_n^2 (d_1 d_2 y_n^2 - d_a)} + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos y_n \xi_*}{s_{1n} - s_{2n}} \left[\left((-1)^n \bar{d} + \frac{B_n}{s_{1n}} \right) e^{s_{1n} \tau_*} - \left((-1)^n \bar{d} + \frac{B_n}{s_{2n}} \right) e^{s_{2n} \tau_*} \right].$$

Кількість радіоактивної домішкової речовини, вимитої з одиниці площі поверхні шару $\xi = \xi_0$, визначається наступним чином

$$\frac{\xi_0}{C_0 \sqrt{kD}} Q_{\xi_0} = \frac{\xi_0^2}{3} + \frac{\alpha_k (d_1 - d_2)}{d_a} \left(\frac{1}{\bar{a}} - \frac{\xi_0^2}{6} - \frac{\xi_0}{\bar{a} \operatorname{sh} \bar{a} \xi_0} \right) + \bar{d} \tau_* + 2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{(-1)^n}{s_{1n} - s_{2n}} \left[\left((-1)^n \bar{d} + \frac{B_n}{s_{1n}} \right) e^{s_{1n} \tau_*} - \left((-1)^n \bar{d} + \frac{B_n}{s_{2n}} \right) e^{s_{2n} \tau_*} \right]. \quad (23)$$

Отримані вирази для концентрацій, потоків і кількості речовини, що пройшла за заданий проміжок часу через визначену поверхню, містять ряд невідомо-

мих характеристик матеріалу, зокрема, таких як k_1 і k_2 , що визначають інтенсивність переходу частинок між різними шляхами міграції. Ці величини можна визначати шляхом чисельного експерименту, узгоджуючи розрахункові профілі концентрацій з експериментальними, або реалізуючи цільові експериментальні дослідження.

4. Розподіли концентрацій, потоків та кількості вимитої речовини

Для встановлення основних закономірностей гетеродифузії двома шляхами при відомому початковому постійному значенні сумарної концентрації, проведено дослідження розподілів концентрацій, потоків і кількості перенесеної через шар речовини залежно від параметрів задачі у достатньо широких межах. Розрахунки наведені у безрозмірних змінних (6).

На рис. 2-6 показані розподіли сумарної концентрації, де по осі абсцис відкладено змінну ξ , а по осі ординат — функцію $C(\xi, \tau)/C_0$. Тут прийнято $\xi_0 = 10$, а коефіцієнт α таким, що відповідає рівноважному розподілу (9). Рис. 2 ілюструє розподіли сумарної концентрації для часу $\tau = 1, 10, 100, 200, 500$ (криві 1-6 відповідно) при $a_1 = 10, a_2 = 1$ і $d_1 = 1, d_2 = 0,01$ (рис. 2а), $d_1 = 0,01, d_2 = 1$ (рис. 2б).

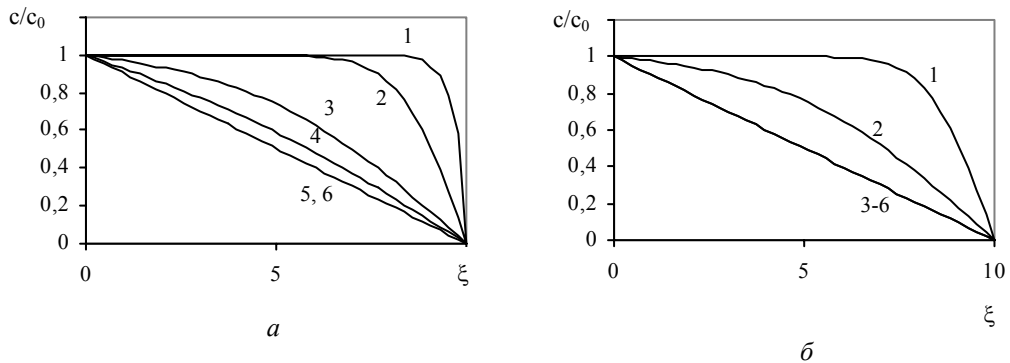


Рис. 2. Концентрація радіонуклідів в шарі ЛПВМ у різні моменти часу за рівноважного початкового розподілу частинок між станами

На рис. 3 наведено сумарну концентрацію для різних значень коефіцієнтів дифузії в момент часу $\tau = 10$ при $a_1 = 10, a_2 = 1$. Тут криві 1-3 відповідають $d_1 = 1, d_2 = 0,001; 0,01; 0,1$, а криві 4-6 — для $d_1 = 0,001; 0,01; 0,1, d_2 = 1$. Рис. 4 ілюструє поведінку сумарної концентрації домішки залежно від коефіцієнтів інтенсивності переходу частинок між різними шляхами міграції. Тут $a_1 = 5, 10, 20, 50$ і $a_2 = 1$ (криві 1-4, рис. 4а), $a_1 = 1, a_2 = 5, 10, 20, 50$ (криві 1-4, рис. 4б) для $d_1 = 0,01, d_2 = 1, \tau = 10$.

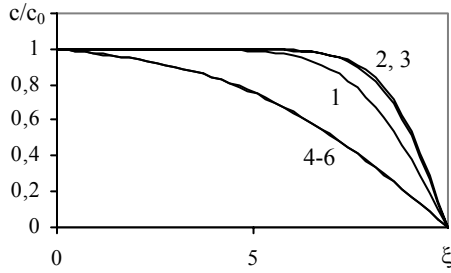


Рис. 3. Концентрація радіонуклідів для різних значень коефіцієнтів дифузії за рівноважного початкового розподілу частинок між станами

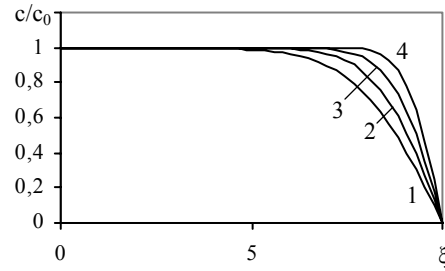


Рис. 4. Концентрація радіонуклідів в шарі ЛПВМ для різних значень коефіцієнтів інтенсивності переходу між шляхами міграції за рівноважного початкового розподілу частинок між станами

На рис. 5 показані закономірності розподілів концентрації домішок у шарі, коли коефіцієнт початкового розподілу частинок між станами є нерівноважним ($\alpha \neq \alpha_{рівн}$). Тут прийнято $a_1 = 10$, $a_2 = 1$, $\tau = 10$; а $d_1 = 1$, $d_2 = 0,01$ (рис. 5а) і $d_1 = 0,01$, $d_2 = 1$ (рис. 5б), $\alpha = 0; 0,25; 0,5; 0,75; 1$ (криві 1-5).

Рис. 6 ілюструє розподіли концентрації радіоактивної домішки для $\alpha = 0$, $d_1 = 1$, $d_2 = 0,01$ у різні моменти часу: кривим 1-5 відповідають $\tau = 1, 10, 100, 200, 500$.

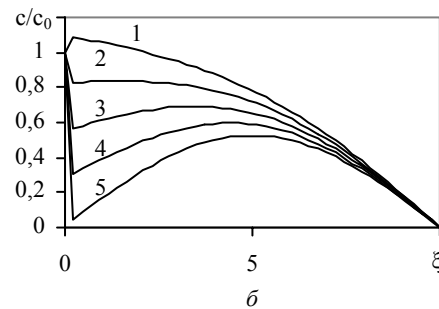
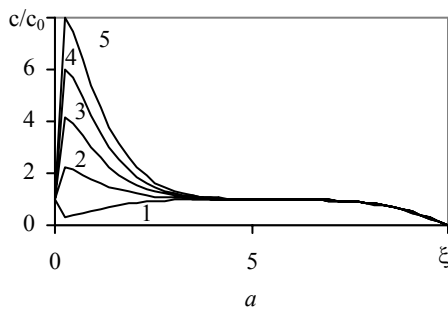


Рис. 5. Концентрація радіонуклідів в шарі ЛПВМ для різних значень нерівноважного розподілу частинок між станами

На рис. 7, 8 показані розподіли потоків через поверхню шару $\xi = \xi_0$, з якої відбувається вимивання домішок, пораховані згідно (21). Тут по осі абсцис відкладено безрозмірний час τ , по осі ординат — функцію $\bar{J} = \xi_0 J_{\xi_0} / C_0 \sqrt{kD}$.

На рис. 7 наведені потоки для різних значень коефіцієнтів дифузії $d_1 = 1$, $d_2 = 0,1; 0,01; 0,001$ (криві 1-3), $d_1 = 0,1; 0,01; 0,001$ $d_2 = 1$ (криві 4-6) при $a_1 = 10$, $a_2 = 1$. Рис. 8 ілюструють розподіли сумарних потоків залежно від коефіцієнтів інтенсивності переходу частинок між різними шляхами міграції для

$d_1 = 1$, $d_2 = 0,01$. Криві 1-4 відповідають значенням $a_1 = 5, 10, 20, 50$, $a_2 = 1$ (рис. 8а) і $a_1 = 1$, $a_2 = 5, 10, 20, 50$ (рис. 8б). Зауважимо, що криві на рис. 7, 8 побудовані для рівноважного значення α .

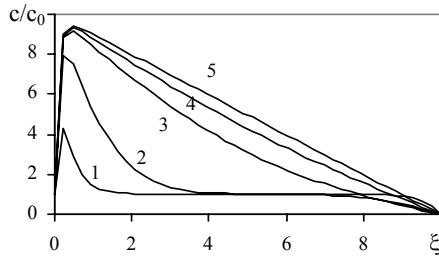


Рис. 6. Концентрація радіонуклідів в шарі ЛПВМ у різні моменти часу за нерівноважного по розподілу частинок між станами

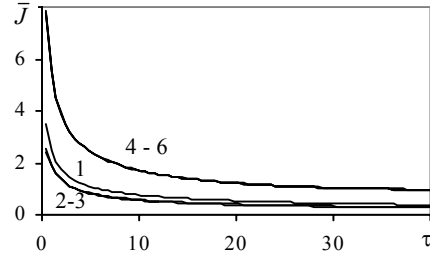


Рис. 7. Потоки радіонуклідів через поверхню вимивання для різних значень коефіцієнтів дифузії

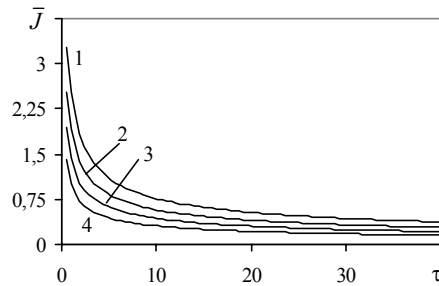


Рис. 8. Потоки радіонуклідів через поверхню вимивання для різних значень коефіцієнтів інтенсивності переходів частинок між станами

Рис. 9, 10 ілюструють кількість речовини, що пройшла через шар за певний проміжок часу і вимита з одиниці площі поверхні, визначену за формулою (23). Тут по осі абсцис відкладено безрозмірний час τ , по осі ординат — функцію $\bar{Q} = \xi_0 Q_{\xi_0} / C_0 \sqrt{kD}$. Криві на рис. 9 відповідають кількості вимитої речовини для різних значень коефіцієнтів дифузії $d_1 = 1$; $d_2 = 0,001; 0,01; 0,05; 0,1$ (криві 1-4, рис. а), $d_1 = 0,001; 0,01; 0,05; 0,1$ $d_2 = 1$ (криві 1-4, рис. б) при $a_1 = 10$, $a_2 = 1$. Рис. 10 ілюструють розподіли кількості речовини, вимитої з поверхні шару $\xi = \xi_0$ у випадку нерівноважного значення α . Тут криві 1-3 відповідають $\alpha = 0$;

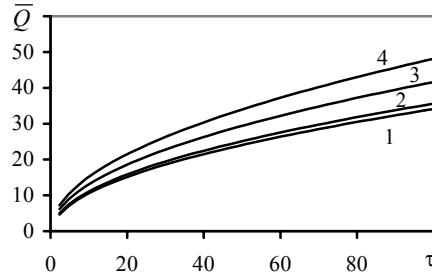


Рис. 9. Кількість радіоактивної речовини, вимитої з поверхні шару ЛПВМ, для різних значень коефіцієнтів дифузії за рівноважного розподілу частинок між станами

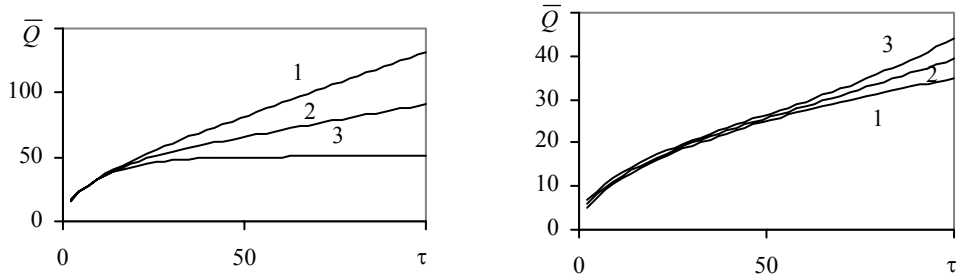


Рис. 10. Кількість радіоактивної речовини, вимитої з поверхні шару ЛПВМ, для різних нерівноважних значень коефіцієнта розподілу частинок між станами

0,5; 1 при $d_1 = 1$, $d_2 = 0,01$ (рис. 10а) і $d_1 = 0,01$, $d_2 = 1$ (рис. 10б) для $a_1 = 10$, $a_2 = 1$.

Висновки. Сформульовано та розв'язано крайову задачу гетеродифузії у разі відомого початкового розподілу радіоактивної домішкової речовини між збуреними мікрообластями та основною матрицею тіла і повного вимивання речовини з вільної поверхні ЛПВМ. Аналітичний розв'язок задачі дозволив записати розрахункові формули для потоків маси домішки через задану поверхню та кількості речовини, що пройшла через цю поверхню, в тому числі через поверхню вимивання, за деякий проміжок часу.

Для встановлення основних закономірностей масоперенесення використано безрозмірну форму, яка означається тільки через коефіцієнти рівнянь гетеродифузії, та проведено дослідження концентрації, потоків та кількості вимитої речовини від характеристик середовища у широких межах.

Показано, що розподіл сумарної концентрації радіоактивної домішки в ЛПВМ істотно залежить від таких характеристик середовища, як параметр α , який задає долю домішкової речовини, що в початковий момент часу перебувала

в збурених мікрообластях, та коефіцієнта d_1 (або d_2), який визначається відношенням коефіцієнтів дифузії домішки на повільному та швидкому шляхах міграції частинок. При цьому зміна величини параметра α суттєво впливає на поведінку функції сумарної концентрації. Наприклад, якщо при рівноважному значенні α функція має монотонно спадний характер, то у випадку нерівноважних значень параметра α може спостерігатися як приповерхневий максимум сумарної концентрації для $\alpha > \alpha_{\text{рівн}}$, так і приповерхневий мінімум при $\alpha < \alpha_{\text{рівн}}$.

Література

- [1] Пазухин Э. М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: топография, физико-химические свойства, сценарий образования // Радиохимия. — 1994. — Т. 36. — Вып. 2. — С. 97-142.
- [2] Baryakhtar V., Gonchar V, Zhidkov A. Radiation damages and self-sputtering of high-radioactive dielectrics: spontaneous emission of submicronic dust particles // Conden. Matt. Phys. — 2002. — Vol. 5, № 3(31). — P. 1-23.
- [3] Юхновський І. Р., Кобрин О. Є., Токаревський В. В., Токарчук М. В. Проблеми взаємодії води з паливомісними масами в об'єкті «Укриття» ЧАЕС // Журнал фізичних досліджень. — 1997. — Т. 1, число 2. — С. 169-180.
- [4] Юхновський І. Р., Глушак П. А., Захар'яш О. С., Токарчук М. В. Моделювання процесів вакансійного розпухання, міграції водню і гелію в ЛПВМ. Теплові клини в ЛПВМ. — Львів, 2001. — 17 с. — (Препр. / НАН України. ІФКС; ISMP-01-15U).
- [5] Радиационные повреждения в лавообразных топливосодержащих материалах объекта «Укрытие» / Барьяхтар В. Г., Гончар В. В., Жидков А. В., Ключников А. А. — Чернобыль, 1998. — 18 с. — (Препр. / НАН Украины. МНТЦ «Укрытие»; 98-12).
- [6] Доступная пористость и молекулярно-ситовые свойства лавообразных топливосодержащих материалов объекта «Укрытие»: (Отчет) / МНТЦ «Укрытие» НАН Украины. — Арх. № 3723. — Чернобыль, 1998.
- [7] Бурак Я. Й, Чапля Є. Я, Чернуха О. Ю. Про вертикальну міграцію радіонуклідів у ґрунті // Доп. НАН України. — 1995. — № 11. — С. 34-37.
- [8] Чапля Є. Я, Чернуха О. Ю. Фізико-математичне моделювання гетеродифузного масопереносу. — Львів: СПОЛОМ, 2003. — 128 с.
- [9] Гиббс Д. В. Термодинамика. Статистическая физика. — М.: Наука, 1982. — 584 с.
- [10] Guminski K. Termodynamika — Warszawa: Panstwowe wydawnictwo naukowe, 1972. — 343 с.

Kinetics of radionuclide transport in glass-similar fuel-bearing materials

Mykhaylo Tokarchuk, Anatoliy Zhalilo, Evgen Chaplia, Olha Chernukha

In the paper within the scope of continual approximations, migration of radioactive admixture by two ways is investigated in a layer of glass-similar fuel-bearing materials. Admixture states correspond to occurrence of radioactive particles in substantially disturbed microareas and without them. Under different boundary conditions it is analyzed an influence of material parameters on

distributions of both radionuclide concentration in a layer, total mass fluxes and quantity of radioactive substance washed out from the body surface.

Кинетика переноса радионуклидов в стеклоподобных радиоактивно возбужденных материалах

Михаил Токарчук, Анатолий Жалило, Евгений Чапля, Ольга Чернуха

В работе в рамках континуальных приближений исследуется миграция радиоактивной примеси двумя путями в слое стеклоподобного топливосодержащего материала, которые отвечают нахождению радиоактивных частиц в существенно возмущенных микрообластях и вне их. При различных граничных условиях проанализировано влияние параметров материала на распределение концентраций радионуклидов в слое, суммарных потоков массы и количества радиоактивного вещества, вымытого с поверхности тела.

Отримано 05.11.05