## О. Р. Гачкевич<sup>1,2</sup>, М. Т. Солодяк<sup>1</sup>, Р. О. Івасько<sup>1</sup>, М. Г. Гачкевич<sup>1</sup>

## ПРОЦЕСИ ВЕРТИКАЛЬНОЇ ДИФУЗІЇ РАДІОНУКЛІДІВ У ШАРІ З ЛАВОПОДІБНОГО ПАЛИВОВМІСНОГО МАТЕРІАЛУ

З використанням відомої моделі кількісного опису дифузії радіоактивних домішок у паливовмісних матеріалах за врахування процесів електролітичної дисоціації і електродифузії (у випадку заряджених домішок) у взаємозв'язку з тепловими та електромагнітними досліджено вертикальну дифузію частинок у шарі.

Вступ. Адекватне математичне моделювання процесу переносу радіоактивних забруднень є необхідним і важливим з огляду на екологічні проблеми, пов'язані зі значними локальними забрудненнями земної поверхні внаслідок техногенної діяльності людини [1, 5, 9, 15].

В роботі [2] запропоновано математичну модель опису механотермоелектродифузії шкідливих домішок, в тому числі водних розчинів солей, у пористих середовищах, в якій враховано дифузію радіоактивних домішок у паливовмісних матеріалах за врахування процесів дисперсії, сорбції, електролітичної дисоціації у взаємозв'язку з тепловими та електромагнітними процесами.

У цій роботі на основі вищезгаданої моделі досліджено процеси дифузії як незаряджених (нейтральна сіль), так і заряджених (катіони та аніони) частинок у шарі з лавоподібного паливовмісного матеріалу (ЛПВМ) [11].

З аналізу літературних джерел відомо [7, 12], що електролітична дисоціація солей не призводить до значних змін температури середовица чи його тиску. Тому обмежимося в подальшому розглядом ізотермічних ( $T = T_0$ ) та ізобаричних ( $P = P_0$ ) умов, а також не враховуватимемо рухомості скелету ЛПВМ (у такому наближенні збігаються повна та локальна похідні за часом). Вважатимемо, що середовище не перебуває в магнітному полі (магнітним полем Землі нехтуватимемо) і, як наслідок, магнітне поле відсутнє і всередині тіла ( $\mathbf{H} = 0$ ,  $\mathbf{B} = 0$ ). Приймаємо, що електролітична дисоціація проходить майже миттєво порівняно з процесами електродифузії ( $\Xi = 0$ ) (що справджується практично для більшості радіоактивних солей).

1. Дифузія радіонуклідів у шарі. Розглянемо дифузію нейтральних та заряджених частинок у шарі. Шар вважатимемо пористим середовищем. Виберемо декартову систему координат з віссю *Oz*, перпендикулярною до поверхні шару. Задачу сформулюємо в одновимірній відносно просторових координат постановці.

Нехай у початковий момент часу t = 0 на верхній основі (z = 0) шару міститься певна кількість нейтральної солі з заданою концентрацією  $C_0$ , а електричний заряд відсутній. На нижній основі ( $z = \ell$ ) шару відсутні потоки як нейтральних, так і заряджених частинок.

Зі співвідношень (37) і (57) роботи [2] за врахування наближень, описаних вище, отримаємо таку систему рівнянь на концентрацію нейтральної солі C(z,t), густину електричного заряду  $\Omega(z,t)$  і вертикальну складову електричного поля  $E_z \equiv E(z,t)$ :

$$\begin{split} &\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial}{\partial z} \bigg[ \frac{1}{C + C_0} \frac{\partial C}{\partial z} - \frac{M_3 M}{\tilde{M}_3^2} \bigg( \frac{\partial C}{\partial z} + k \frac{\partial \Omega}{\partial z} \bigg) \bigg], \\ &\frac{\partial \Omega}{\partial t} = \lambda \left\{ - \frac{\Omega}{\varepsilon \varepsilon_0} + \frac{\varpi_0 \Omega_0}{\rho} \frac{\partial}{\partial z} \bigg[ \frac{1}{\Omega + \Omega_0} \frac{\partial \Omega}{\partial z} - \frac{k M}{k_* \tilde{M}_3^2} \bigg( \frac{\partial C}{\partial z} + k \frac{\partial \Omega}{\partial z} \bigg) \bigg] \right\}, \end{split}$$

ISSN 0130-9420. Мат. методи та фіз.-мех. поля. 2011. - 54, № 3. - С. 179-187. 179

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{\rho \Omega}{\varepsilon \varepsilon_0}, \qquad \qquad \frac{1}{M} = \frac{1}{M_4} \left[ 1 + \frac{M_4}{\tilde{M}_3} (C + C_0 + k\Omega) \right]. \tag{1}$$

Усі величини і коефіцієнти, які входять в систему рівнянь (1), означені в роботі [2].

Зауважимо, що перші два рівняння системи (1) є наслідком законів збереження маси та електричного заряду, тобто залежностей [11, 12]:

$$\frac{\partial J}{\partial z} + \rho \frac{\partial C}{\partial t} = 0, \qquad \qquad \frac{\partial J_{\Omega}}{\partial z} + \rho \frac{\partial \Omega}{\partial t} = 0.$$
(2)

Початкові умови. У початковий момент часу t = 0 в шарі відсутні як нейтральні, так і заряджені частинки. Тоді

$$C(z,0) = 0,$$
  $\Omega(z,0) = 0.$  (3)

Крайові умови. Відповідно до прийнятих вище припущень про задання на верхній основі шару концентрації нейтральної солі, а на нижній – відсутність потоків нейтральних та заряджених частинок, крайові умови запишемо так:

$$\begin{split} C(0,t) &= C_0, & \Omega(0,t) = 0, \\ J(\ell,t) &= 0, & J_{\Omega}(\ell,t) = 0. \end{split} \tag{4}$$

З формул (54), (55) роботи [2] в розглядуваному випадку отримаємо такі вирази для термодинамічних потоків:

$$J = -\lambda_C \frac{\partial \mu}{\partial z} = -\lambda_C \frac{RT_0}{M_3} \frac{\partial}{\partial z} \left[ \ln\left(1 + \frac{C}{C_0}\right) - \frac{M_3}{\tilde{M}_3} \ln\frac{M_0}{M} \right],$$
  
$$J_\Omega = \lambda \left( E - \frac{\partial \varphi}{\partial z} \right) = \lambda \left\{ E - k_* RT_0 \frac{\partial}{\partial z} \left[ \ln\left(1 + \frac{\Omega}{\Omega_0}\right) - \frac{k}{k_* \tilde{M}_3} \ln\frac{M_0}{M} \right] \right\}.$$
(5)

Проінтегруємо за товщинною координатою *z* в межах шару обидва рівняння системи (2). При цьому прийдемо до закону збереження повної маси та повного електричного заряду у формі

$$\rho \frac{\partial M(t)}{\partial t} = J(0, t), \qquad \rho \frac{\partial Q(t)}{\partial t} = J_{\Omega}(0, t), \qquad (6)$$

де

$$M(t) \equiv \int_{0}^{\ell} C(z,t) dz, \qquad Q(t) \equiv \int_{0}^{\ell} \Omega(z,t) dz$$
(7)

- сумарні маса та заряд відповідно.

Обмежимося лінійним відносно вихідного стану випадком. Вихідна система рівнянь електродифузії (1) у такому випадку буде

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2}{\partial z^2} (C - \boldsymbol{x}_C \Omega),$$

$$\frac{\partial \Omega}{\partial t} = \lambda \left[ -\frac{\Omega}{\varepsilon \varepsilon_0} + \frac{\boldsymbol{x}_0}{\rho} \frac{\partial^2}{\partial z^2} (\Omega - \boldsymbol{x}_\Omega C) \right],$$

$$\frac{\partial E}{\partial z} = \frac{\rho \Omega}{\varepsilon \varepsilon_0},$$
(8)

а вирази (5) для термодинамічних потоків запишемо так:

$$J = -\rho D \frac{\partial}{\partial z} (C - \boldsymbol{x}_{C} \Omega),$$
  

$$J_{\Omega} = \lambda \Big[ E - \boldsymbol{x}_{0} \frac{\partial}{\partial z} (\Omega - \boldsymbol{x}_{\Omega} C) \Big].$$
(9)

При цьому отримуємо початкові умови (3), а крайові умови (4) з урахуванням співвідношень (9) виразимо таким чином:

$$C(0,t) = C_0, \qquad \Omega(0,t) = 0, \qquad \frac{\partial C(\ell,t)}{\partial z} = \mathfrak{a}_C \frac{\partial \Omega(\ell,t)}{\partial z},$$
$$E(\ell,t) = \mathfrak{a}_0 \left[ \frac{\partial \Omega(\ell,t)}{\partial z} - \mathfrak{a}_\Omega \frac{\partial C(\ell,t)}{\partial z} \right]. \tag{10}$$

Для розв'язання сформульованої вище задачі використаємо перетворення Лапласа за часом t. При цьому отримаємо наступні вирази для концентрації C(z,t) нейтральної солі, густини електричного заряду  $\Omega(z,t)$ , напруженості електричного поля E(z,t), потоку J(z,t) нейтральних частинок та густини електричного струму  $J_{\Omega}(z,t)$ :

$$\begin{split} C(z,t) &= C_0 \left\{ 1 - \mathfrak{x}_0 \lambda \sum_{n=0}^{\infty} A_n \left[ \frac{(S_{1n} + D\mu_n^2) e^{S_{1n}t}}{S_{1n}a'(S_{1n}) \sqrt{d_0(S_{1n})}} \times \right. \\ & \times \left\{ \left[ S_{1n} + (1 - \mathfrak{x}_C \mathfrak{x}_\Omega) D \mathfrak{v}_n^2 \right] \sin \mathfrak{v}_n \ell \sin \mu_n z - \right. \\ & - \left[ S_{1n} + (1 - \mathfrak{x}_C \mathfrak{x}_\Omega) D \mu_n^2 \right] \sin \mu_n \ell \sin \mathfrak{v}_n z \right\} + \\ & + \frac{(S_{2n} + D\mu_n^2) e^{S_{2n}t}}{S_{2n}a'(S_{2n}) \sqrt{d_0(S_{2n})}} \left\{ \left[ S_{2n} + (1 - \mathfrak{x}_C \mathfrak{x}_\Omega) D \mathfrak{v}_n^2 \right] \times \\ & \times \sin \mathfrak{v}_n \ell \sin \mu_n z - \left\{ \left[ S_{2n} + (1 - \mathfrak{x}_C \mathfrak{x}_\Omega) D \mu_n^2 \right] \sin \mu_n \ell \sin \mathfrak{v}_n z \right\} \right\}, \end{split}$$

$$\begin{split} \Omega(z,t) &= \mathfrak{x}_{0}\lambda\mathfrak{x}_{\Omega}C_{0}\sum_{n=0}^{\infty}A_{n}(\sin\mu_{n}\ell\sin\nu_{n}z - \sin\nu_{n}\ell\sin\mu_{n}z) \times \\ &\times \biggl[ \frac{(S_{1n} + D\mu_{n}^{2})e^{S_{1n}t}}{a'(S_{1n})\sqrt{d_{0}(S_{1n})}} + \frac{(S_{2n} + D\mu_{n}^{2})e^{S_{2n}t}}{a'(S_{2n})\sqrt{d_{0}(S_{2n})}} \biggr], \\ E(z,t) &= \frac{\rho\mathfrak{x}_{0}\mathfrak{x}_{\Omega}}{\tau_{\varepsilon}}C_{0}\sum_{n=0}^{\infty}\frac{A_{n}}{\nu_{n}} \left\{ \frac{(S_{1n} + D\mu_{n}^{2})e^{S_{1n}t}}{a'(S_{1n})\sqrt{d_{0}(S_{1n})}} \times \right. \\ &\times \left[ \nu_{n}\sin\nu_{n}\ell(\cos\mu_{n}z + \tau_{\varepsilon}S_{1n}\cos\mu_{n}\ell) - \right. \\ &- \mu_{n}\sin\mu_{n}\ell(\cos\nu_{n}z + \tau_{\varepsilon}S_{1n}\cos\nu_{n}\ell) \biggr] + \\ &+ \frac{(S_{2n} + D\mu_{n}^{2})e^{S_{2n}t}}{a'(S_{2n})\sqrt{d_{0}(S_{2n})}} \left[ \nu_{n}\sin\nu_{n}\ell(\cos\mu_{n}z + \tau_{\varepsilon}S_{2n}\cos\mu_{n}\ell) - \right. \\ &- \mu_{n}\sin\mu_{n}\ell(\cos\nu_{n}z + \tau_{\varepsilon}S_{2n}\cos\nu_{n}\ell) \biggr] \biggr\}, \\ J(z,t) &= (1 - \mathfrak{x}_{C}\mathfrak{x}_{\Omega})\rho D\mathfrak{x}_{0}\lambda C_{0}\sum_{n=0}^{\infty}\frac{\nu_{n}A_{n}}{\cos\mu_{n}\ell}(\cos\nu_{n}\ell\cos\mu_{n}z - \\ &- \cos\mu_{n}\ell\cos\nu_{n}z) \biggl[ \frac{(S_{1n} + D\mu_{n}^{2})^{2}e^{S_{1n}t}}{S_{1n}a'(S_{1n})\sqrt{d_{0}(S_{1n})}} + \\ &+ \frac{(S_{2n} + D\mu_{n}^{2})^{2}e^{S_{2n}t}}{S_{2n}a'(S_{2n})\sqrt{d_{0}(S_{2n})}} \biggr], \end{split}$$

$$J_{\Omega}(z,t) = \rho \mathfrak{a}_{0} \lambda \mathfrak{a}_{\Omega} C_{0} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{A_{n}}{\mu_{n} \nu_{n}} [\mu_{n} \sin \mu_{n} \ell(\cos \nu_{n} z - \cos \nu_{n} \ell) - \nu_{n} \sin \nu_{n} \ell(\cos \mu_{n} z - \cos \mu_{n} \ell)] \times \\ \times \left[ \frac{S_{1n}(S_{1n} + D\mu_{n}^{2})}{a'(S_{1n})\sqrt{d_{0}(S_{1n})}} e^{S_{1n}t} + \frac{S_{2n}(S_{2n} + D\mu_{n}^{2})}{a'(S_{2n})\sqrt{d_{0}(S_{2n})}} e^{S_{2n}t} \right].$$
(11)

У формулах (11) використано такі позначення:

$$\begin{split} A_{n} &= \frac{v_{n}(\cos\mu_{n}\ell - \cos\nu_{n}\ell)}{\cos\mu_{n}\ell \sin\nu_{n}\ell}, \\ S_{1n} &= -\frac{1}{2} \bigg[ \frac{1}{\tau_{c}} + \bigg( D + \frac{w_{0}\lambda}{\rho} \bigg) \mu_{n}^{2} - \sqrt{d_{1n}} \bigg], \\ S_{2n} &= -\frac{1}{2} \bigg[ \frac{1}{\tau_{c}} + \bigg( D + \frac{w_{0}\lambda}{\rho} \bigg) \nu_{n}^{2} + \frac{4}{\rho} x_{c} x_{\Omega} x_{0} \lambda D \mu_{n}^{4}, \\ d_{2n} &= \bigg[ \frac{1}{\tau_{c}} - \bigg( D - \frac{w_{0}\lambda}{\rho} \bigg) \nu_{n}^{2} \bigg]^{2} + \frac{4}{\rho} x_{c} x_{\Omega} x_{0} \lambda D \nu_{n}^{4}, \\ \sqrt{d_{0}(S_{1n})} &= -\frac{1}{2} \bigg\{ \frac{\rho D - w_{0}\lambda}{\tau_{c}} + \bigg[ 4w_{0}\lambda D(1 - w_{c} x_{\Omega}) - \frac{(\rho D + w_{0}\lambda)^{2}}{\rho} \bigg] \mu_{n}^{2} + \\ &+ (\rho D + w_{0}\lambda) \sqrt{d_{1n}} \bigg\}, \\ \sqrt{d_{0}(S_{2n})} &= \frac{1}{2} \bigg\{ \frac{\rho D - w_{0}\lambda}{\tau_{c}} + \bigg[ 4w_{0}\lambda D(1 - w_{c} x_{\Omega}) - \frac{(\rho D + w_{0}\lambda)^{2}}{\rho} \bigg] \nu_{n}^{2} - \\ &- (\rho D + w_{0}\lambda) \sqrt{d_{2n}} \bigg\}, \\ d_{0}'(S_{1n}) &= \frac{\rho^{2} D^{2} - \frac{w_{0}^{2}\lambda^{2}}{\tau_{c}} - [(\rho D - w_{0}\lambda)^{2} + 4\rho Dw_{0}\lambda w_{c} x_{\Omega}] \times \\ &\times \bigg[ \frac{\rho D + w_{0}\lambda}{\rho} \mu_{n}^{2} - \sqrt{d_{1n}} \bigg], \\ d_{0}'(S_{2n}) &= \frac{\rho^{2} D^{2} - \frac{w_{0}^{2}\lambda^{2}}{\tau_{c}} - [(\rho D - w_{0}\lambda)^{2} + 4\rho Dw_{0}\lambda w_{c} x_{\Omega}] \times \\ &\times \bigg[ \frac{\rho D + w_{0}\lambda}{\rho} \nu_{n}^{2} - \sqrt{d_{2n}} \bigg], \\ a'(S) &= [a'_{2}(S - Da_{1}^{2}) + a_{2}(1 - 2Da_{1}a'_{1})] \sin a_{1}\ell \sin a_{2}\ell - \\ &- [a'_{1}(S - Da_{2}^{2}) + a_{1}(1 - 2Da_{2}a'_{2})] \sin a_{2}\ell \sin a_{1}\ell \sin a_{2}\ell \bigg] - \\ &- \ell a_{1}(S - Da_{2}^{2})[a'_{1} \sin a_{1}\ell \sin a_{2}\ell + a'_{2} \sin a_{1}\ell \sin a_{2}\ell \bigg], \\ a'_{1}(S) &= \frac{2(\rho D + w_{0}\lambda)\sqrt{d_{0}} + d'_{0}(S)}{8w_{0}\lambda D(1 - w_{c}x_{\Omega})\sqrt{d_{0}}} a_{2}. \end{split}$$
(12)

Величини  $a'(S_{in})$ ,  $\alpha'_1(S_{in})$ ,  $\alpha'_2(S_{in})$ , i = 1, 2, описуються трьома останніми з формул (12) при конкретних виразах для  $S_{1n}$  і  $S_{2n}$ , а  $\mu_n$  і  $\nu_n$  – корені рівнянь

 $v(S_1 + D\mu^2)\sin\mu\ell\cos\nu\ell = \mu(S_1 + D\nu^2)\sin\nu\ell\cos\mu\ell,$ 

 $v(S_2 + D\mu^2)\sin\mu\ell\cos\nu\ell = \mu(S_2 + D\nu^2)\sin\nu\ell\cos\mu\ell,$ 

Таким чином, записано загальні розв'язки (11), (12) розглядуваної задачі (2)-(10).

2. Електродифузія радіонуклідів у шарі. Розглянемо типовий процес вертикальної дифузії карбонату урану  $UO_2CO_3$  (нейтральна сіль) та його компонент: катіонів  $UO_2^+$  та аніонів  $CO_3^-$  (реакція утворення такого мінералу схематично записується як  $UO_2^++CO_3^- \rightarrow UO_2CO_3$ ) у лавоподібний паливовмісний матеріал (ЛПВМ), який в основному складається (95% маси) з двоокису кремнію SiO\_3. При цьому вважатимемо, що пори ЛПВМ заповнені водою. Тоді характеристики дифузантів і матеріалу будуть такими [10]:

$$\begin{split} &M_1 = 0.27 \, \text{kg/mojb}, &M_2 = 0.0600 \, \text{kg/mojb}, \\ &M_3 = 0.33 \, \text{kg/mojb}, &M_4 = 0.0601 \, \text{kg/mojb}, \\ &\rho = 2.3 \cdot 10^3 \, \text{kg/m}^3, &\lambda = 10^{-10} \, \text{A/(B \cdot m)}, &D = 10^{-9} \, \text{m}^2/\text{c}, \\ &\epsilon = 7 \,, &T_0 = 300 \, \text{K}. \end{split}$$

При цьому

$\varepsilon_0 = 8.85 \cdot 10^{-12} \mathrm{Km}^2 / (\mathrm{H} \cdot \mathrm{m}^2),$	$R = 8.314  \text{Дж}/(\text{моль} \cdot \text{K}),$
$N_A = 6.022 \cdot 10^{23}  1/$ моль,	$F = 9.648 \cdot 10^4  { m K}_{ m J}$ /моль.

Товщину шару виберемо  $\ell = 1$  м.

На основі залежностей, наведених у [2], з використанням значень характеристик середовища ρ, λ і D (взятих як ефективні для пористих середовищ [6, 13, 14]) отримаємо:

$$\begin{split} \tilde{M}_1 &= -77.292 \cdot 10^{-3} \, \mathrm{kr/mojb}, & \tilde{M}_2 &= -40.060 \, \mathrm{kr/mojb}, \\ \tilde{M}_3 &= -73.468 \cdot 10^{-3} \, \mathrm{kr/mojb}, & \\ k_1 &= 27.985 \cdot 10^{-7} \, \mathrm{kr/Kj}, & k_2 &= 6.219 \cdot 10^{-7} \, \mathrm{kr/Kj}, \\ k &= 2.660 \cdot 10^{-6} \, \mathrm{kr/Kj}, & k_* &= 2.073 \cdot 10^{-5} \, \mathrm{mojb/Kj}, \\ v_1 &= 4.484 \cdot 10^{-25} \, \mathrm{kr}, & v_2 &= 0.996 \cdot 10^{-25} \, \mathrm{kr}, \\ v_3 &= -5.480 \cdot 10^{-25} \, \mathrm{kr}, & v &= -1.220 \cdot 10^{-25} \, \mathrm{kr}, \\ \alpha_0 &= \frac{1.768}{C_0} \cdot 10^{-7} \, \mathrm{B} \cdot \mathrm{kr/Kj}, & \alpha_C &= 9.772 \cdot 10^{-6} \, \mathrm{C}_0 \, \mathrm{kr/Kj}, \\ \alpha_0 &= 1.449 \cdot 10^{10} \sqrt{C_0} \, 1/\mathrm{m}. \end{split}$$

Наведені нижче рисунки ілюструють зміни величин, віднесених до їх початкових значень ( $\frac{A(z,t)}{A_0}$ , де  $A \in \{C, J, M, \Omega, E, J_\Omega, Q\}$ ,  $A_0$  – початкове значення розглядуваних величин, тобто  $J_0 = \frac{2\rho DC_0}{\ell}$ ,  $M_0 = C_0 \ell$ ,  $\Omega_0 = \frac{2\chi_\Omega C_0}{\alpha_0^2 \ell}$ ,  $E_0 = \frac{2\chi_0 \chi_\Omega C_0}{\ell}$ ,  $Q_0 = \frac{2\chi_\Omega C_0}{\alpha_0^2 \ell}$ ,  $J_{\Omega 0} = \frac{2\varepsilon \varepsilon_0 D\chi_0 \chi_\Omega C_0}{\ell}$ ), залежно від

безрозмірних часу t (віднесеного до тривалості розглядуваних процесів  $t_0 = 30$  днів) та координати z (віднесеної до товщини шару  $\ell = 1$  м).

На рис. 1, 3, 5, 6, 8, 10, 12 наведено графіки часових залежностей розглядуваних величин на основах шару z = 0, z = 1 та серединній поверхні z = 0.5. Розподіли цих величин за товщинною координатою подано на рис. 2, 4, 7, 9, 11 (в моменти часу t = 1, t = 2 та t = 10).

На рис. 1 показано залежність від часу відносної концентрації нейтральної солі. Видно, що концентрація на поверхнях z = 0.5 та z = 1 зростає з часом за експоненціальним законом і за час порядку t = 10 практично досягає значення концентрації на верхній основі шару z = 0 (яке є постійним).

Розподіл концентрації нейтральної солі за товщиною шару в різні моменти часу приведено на рис. 2. Значення розглядуваної величини спадає із зростанням значення товщинної координати. При цьому для більших часів перепад за товщинною координатою концентрації нейтральної солі є меншим, а в момент часу t = 10 розподіл її в шарі стає практично рівномірним.



На рис. 3 подано залежність від часу дифузійного потоку нейтральних частинок на різних поверхнях (z = 0, z = 0.5 і z = 1). На верхній основі шару z = 0 потік з плином часу експоненційно спадає, а на серединній поверхні шару він спочатку зростає до максимального значення (в момент часу  $t \approx 1, 2$ ) і в подальшому спадає до нуля.

Розподіл потоку нейтральних частинок за товщиною шару в різні моменти часу проілюстровано на рис. 4. Потік спадає зі зростанням значення товщинної координати. Характер його спадання є наслідком особливості товщинного розподілу концентрації. З плином часу значення потоку на верхній основі шару z = 0 та його перепаду за товщиною збігаються.



На рис. 5 подано залежність від часу сумарної концентрації нейтральних частинок, що проникають в шар через верхню основу (z = 0) за час t. З плином часу розглядувана величина за час t = 10 досягає постійного значення.

На рис. 6 показано зміну за часом питомого електричного заряду для поверхонь z = 0, z = 0.5 і z = 1. Видно, що заряд зростає і в момент часу  $t \approx 1$  досягає максимального значення. Потім він монотонно спадає і при t = 10 стає практично рівний нулеві.



Зміну заряду по товщині шару в різні моменти часу проілюстровано на рис. 7. Як бачимо, зі збільшенням товщини значення заряду зростає і на внутрішній поверхні шару z = 1 є найбільшим.



Залежності від часу напруженості електричного поля для різних значень товщинної координати приведено на рис. 8, а на рис. 9 показано її розподіл за товщинною координатою для різних моментів часу.



На рис. 10 подано зміну в часі (на проміжку  $t = [0, 3t_0]$ ) густини електричного струму на розглядуваних поверхнях шару, а його розподіл за координатою для різних моментів часу — на рис. 11.

Зміну сумарного заряду з плином часу показано на рис. 12. Бачимо, що в момент часу  $t \approx 1$  він досягає максимального значення, а потім монотонно спадає і при t = 10 приймає практично нульове значення.



Висновки. Таким чином, в роботі на основі відомої моделі кількісного опису дифузії радіоактивних домішок у паливовмісних матеріалах за врахування процесів електролітичної дисоціації і електродифузії (у випадку заряджених домішок) у взаємозв'язку з тепловими та електромагнітними [2, 3] вивчено процеси вертикальної дифузії як незаряджених (нейтральна сіль), так і заряджених (катіони і аніони, які є продуктами електролітичної дисоціації) частинок у шарі з ЛПВМ.

Числові дослідження показали, що:

- концентрації та їх потоки, а також напруженість електричного поля з плином часу досягають усталеного режиму (для розглядуваного випадку він становить 300 днів);
- характерний час дифузії т<sub>d</sub> нейтральних частинок прямо пропорційний до квадрата товщини шару і обернено пропорційний до коефіцієнта дифузії;
- у стаціонарному режимі (при t ≫ τ<sub>ε</sub>, де τ<sub>ε</sub> характерний час дифузії заряджених частинок) концентрація нейтральних частинок не залежить від товщини шару, а електричний заряд і напруженість електричного поля зосереджені лише у приповерхневих областях. При цьому електричний струм відсутній (що добре узгоджується з відомими в літературі [4, 8, 12] результатами).

Робота виконана за часткової фінансової підтримки НАН України (проект НТП/333, № держреєстрації 0108U004467) та ДФФД (проект Ф40.7/023, № держреєстрації 0111U008211).

- Бондарьков М. Д., Желтоножская М. В., Гащак С. П., Иванов Ю. А., Максименко А. М., Мартыненко В. И., Роджерс Б., Чессер Р. К., Бондарьков Д. М. Вертикальная миграция радионуклидов на исследовательских полигонах Чернобыльской зоны // Проблемы безопасности атомных электростанций и Чернобыля. – 2006. – Вып. 6. – С. 155–163.
- 2. Бурак Я. Й., Гачкевич О. Р., Солодяк М. Т. Математична модель опису процесу електродифузії радіонуклідів у лавоподібних паливовмісних матеріалах // Мат. методи та фіз.-мех. поля. 2011. **54**, № 1. С. 65–78.
- Гачкевич О., Солодяк М., Івасько Р., Міщенко В. До питання математичного моделювання процесу електродифузії радіонуклідів у лавоподібних паливовмісних матеріалах // Обчисл. математика і мат. проблеми механіки / Під заг. ред. В. Л. Макарова, І. О. Луковського, Р. М. Кушніра. – Львів: ІППММ НАН України, 2009. – С. 267–269.
- Джексон Дж. Классическая электродинамика. Москва: Мир, 1965. 702 с. Te came: Jackson J. D. Classical electrodynamics. – New York: J. Wiley & Sons: 1998. – xxi + 808 p.
- 5. Желтоножская М. В. Исследование изотопных отношений в почвенных разрезах 5-километровой зоны ЧАЭС // Ядерна фізика та енергетика. 2009. 10, № 4. С. 409–412.
- 6. *Кэй Дж., Лэби Т.* Таблицы физических и химических постоянных / Под ред. К. П. Яковлева. Москва: Физматгиз, 1962. 247 с.
  - Te саме: Kaye G. W. C., Laby T. H. Tables of physical and chemical constants and some mathematical functions. Nabu Press, 2010. 178 p.

- Мюнстер А. Химическая термодинамика. Москва: Мир, 1974. 304 с. Te саме: Münster A. Chemische Thermodynamik. – Berlin: Verlag Chemie, 1969. – ix + 261 S.
- 8. Пановский В., Филипс М. Классическая электродинамика. Москва: Физматгиз, 1963. 432 с.

Te came: Panofsky W. K. H., Phillips M. Classical electricity and magnetism: -Dover Publ., 2005. - 512 p. - (Dover Books on Physics.)

- Радиационные повреждения в лавообразных топливосодержащих материалах объекта «Укрытие» / В. Г. Барьяхтар, В. В. Гончар, А. В. Жидков, А. А. Ключников. – Чорнобиль, 1998. – 18 с. – (Препр. / НАН України. Міжгалуз. наук.-техн. центр «Укриття»; 98-12.)
- Солодяк М., Гачкевич М., Івасько Р., Міщенко В. До опису процесу електродифузії радіонуклідів у шарі з лавоподібного паливовмісного матеріалу // Математичні проблеми механіки неоднорідних структур / Під заг. ред. І. О. Луковського, Г. С. Кіта, Р. М. Кушніра. – Львів: ІШПММ НАН України, 2010. – С. 256–258.
- Солодяк М. Т., Токарчук М. В. Електродифузія радіонуклідів у лавоподібних паливовмісних матеріалах // Фіз.-хім. механіка матеріалів. – 2005. – 41, № 1. – С. 46–52.

Te came: Solodyak M. T., Tokarchuk M. B. Electrodiffusion of radionuclides in lava-like fuel-containing materials // Mater. Sci. = 2005. = 41, No. 1. = P. 47-55.

- Солодяк М. Т., Чапля Є. Я., Качур І. Р. Вихідні співвідношення математичної моделі електродифузії водних розчинів солей у пористих середовищах. – Львів, 1993. – 46 с. – (Препр. / АН України, Центр мат. моделювання ШПММ, № 6-93.)
- 13. Справочник по гидрохимии. Ленинград: Гидрометеоиздат, 1989. 391 с.
- 14. Справочник по электрохимии / Под ред. А. М. Сухотина. Ленинград: Химия, 1981. 488 с.
- 15. Radioactive particles in the environment / Eds D. Oughton, V. Kashparov. Springer, 2009. – xx + 279 p. – NATO Science for Peace and Security. Ser. C: Environmental Security.

## ПРОЦЕССЫ ВЕРТИКАЛЬНОЙ ДИФФУЗИИ РАДИОНУКЛИДОВ В СЛОЕ ИЗ ЛАВООБРАЗНОГО ТОПЛИВОСОДЕРЖАЩЕГО МАТЕРИАЛА

С использованием известной модели количественного описания диффузии радиоактивных примесей в топливосодержащих материалах при учете процессов электролитической диссоциации и электродиффузии (в случае заряженных примесей) во взаимосвязи с тепловыми и электромагнитными исследовано вертикальную диффузию частиц в слое.

## PROCESSES OF VERTICAL DIFFUSION OF RADIO NUCLIDE IN A LAYER OF AVALANCHE-TYPE FUEL CONTAINING MATERIAL

With using a known model to describe quantitatively diffusion of radio active impurities in fuel containing materials with regard for the processes of electrolytic dissociation and electrodiffusion (in the case of charged impurities) in connection with thermal and electromagnetic processes, a vertical diffusion of impurities in the layer is investigated.

- <sup>1</sup> Ін-т прикл. проблем механіки і математики Одержано ім. Я. С. Підстригача НАН України, Львів, 21.12.10
- <sup>2</sup> Політехніка Опольська, Ополе, Польща