

ІНСТИТУТ
ФІЗИКИ
КОНДЕНСОВАНИХ
СИСТЕМ

ICMP-02-29U

І.Й. Куриляк*, П.А. Глушак, М.Т. Солодяк†, М.В. Токарчук

ДОСЛІДЖЕННЯ ПРОЦЕСІВ ВИЛУГОВУВАННЯ ПОВЕРХНІ
ЛПВМ ПРИ ВЗАЄМОДІЇ З ВОДНИМИ РОЗЧИНАМИ
РАДІОНУКЛІДІВ

*Національний університет "Львівська політехніка", 29000 Львів,
вул. С.Бандери 12

†Інститут прикладних проблем механіки і математики
ім. Я.С. Підстригача НАН України, 79601 Львів, вул. Наукова 36

ЛЬВІВ

УДК: 532; 533; 533.9:530.182; 536.75; 536-12.01.

PACS: 05.60.+w, 05.70.Ln, 05.20.Dd, 52.25.Dg, 52.25.Fi

Дослідження процесів вилуговування поверхні ЛПВМ при взаємодії з водними розчинами радіонуклідів

І.Й. Куриляк, П.А. Глушак, М.Т. Солодяк, М.В. Токарчук

Анотація. Представлено електродифузійну модель опису процесів вилуговування іонів радіонуклідів із ЛПВМ при взаємодії із водними розчинами.

Investigation of leaching processes of a LFCM surface at interaction with water solutions of radionuclides

I.J. Kurylyak, P.A. Hlushak, M.T. Solodyak, M.V. Tokarchuk

Abstract. Electrodiffusion model for the description of leaching processes of radionuclide ions from LFCM at interaction with water solutions is presented.

Подається в Проблеми Чорнобиля
Submitted to Problems of Chernobyl

© Інститут фізики конденсованих систем 2002
Institute for Condensed Matter Physics 2002

1. Вступ

Проблеми водних потоків, що взаємодіють із ЛПВМ, водних розчинів радіонуклідів в об'єкті "Укриття" детально проаналізовані в ряді робіт [1]- [6]. Досліджена динаміка середніх концентрацій радіонуклідів у "блочних" водах, яка дала можливість оцінити, що за рік водопотоки всередині об'єкту можуть розчинити і перенести до 23 кг урану і 10^{14} Бк радіонуклідів [3]. Очевидно, частина урану, цезію, стронцію, плутонію у водні потоки потрапляють шляхом складних процесів вилугування із ЛПВМ при взаємодії з водою. Інша частина радіонуклідів потрапляє більш складним шляхом. Відомо, що поверхня ЛПВМ постійно руйнується і утворюється ядерний пил з вмістом радіонуклідів [7]. В результаті внутрішні приміщення об'єкту "Укриття" періодично зрошуються спеціальними розчинами для пилеподавлення. Цим шляхом частинки пилу більші за субмікронні потрапляють у водні розчини, де із них знову ж таки внаслідок складних процесів вилугування радіонукліди потрапляють у водопотоки. Отже процеси вилугування радіонуклідів водними розчинами проходять безпосередньо при взаємодії з певними об'ємами ЛПВМ та із ядерного пилу, який потрапляє у водопотоки в процесі зрошування спеціальними розчинами приміщень об'єкту. Важливо дослідити основні фактори, які впливають на процеси вилугування радіонуклідів із ЛПВМ при взаємодії з водними розчинами. Одними з важливих є:

- радіаційне дефектоутворення внаслідок самоопромінення ЛПВМ, що веде до росту пор;
- процеси переносу іонів, атомів в ЛПВМ;
- електромагнітна природа взаємодії ЛПВМ з водними розчинами.

2. Процеси вилугування

Хімічна взаємодія ЛПВМ як склоподібного пористого середовища з водними розчинами приводить до утворення приповерхневого шару складного за хімічним складом і мікроструктурою. Як правило можна виділити три основні субшари:

дифузійний (шар реакцій) (1);

гелевий (2);

шар осадів (3) з аморфними і кристалічними частинками.

Дані шари структурно та композиційно відрізняються від ЛПВМ і утворюються в результаті взаємозв'язаних процесів іонного обміну, дифузії, гідролізу, матричного розчинення. При взаємодії пористих

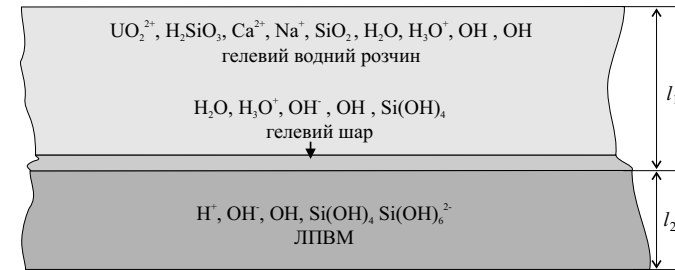
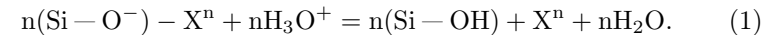
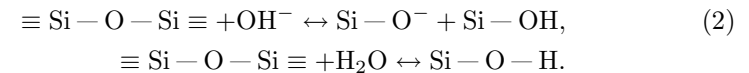


Рис. 1. Модель водних розчинів радіонуклідів на поверхнях ЛПВМ.

ЛПВМ з водними розчинами проходить, насамперед, дифузія молекул води, H^+ , OH^- , H_3O^+ в матрицю ЛПВМ, яка супроводжується процесами іонного обміну з іонами Na^+ , Cs^+ та ін.:

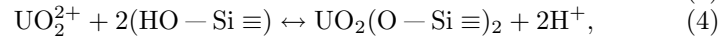
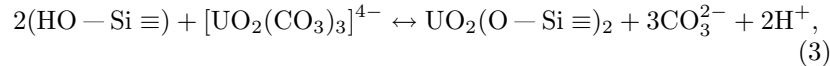


При цьому зростає рН розчину і проходить гідроліз кремній-кисневих зв'язків – процес деполімеризації ЛПВМ:



Реакція гідролізу може проходити і без виділення кремнію у розчин. При цьому кремній-кисневий зв'язок розривається і приєднується OH^- , а іон водню швидко мігрує по структурі, захопивши електрон, переходить у атомарний водень. Якщо гідроліз кремній-кисневих зв'язків відбувається з виділенням кремнію у розчин, тобто проходить розчинення матричного матеріалу, то взаємопов'язані процеси іонного обміну і матричного розчинення ведуть до трансформації частини дифузійного шару у гелевий. При розчиненні силікатної матриці $\equiv Si - O - Si \equiv$, всі інші хімічні елементи чи цілі комплекси також переходять у дифузійний шар, що приводить на границі розділу гель – дифузійний шар до утворення деякої кількості SiO_2 , яка трансформується через гель у розчин. На границі розчину гель також зазнає значних змін внаслідок протікаючих реакцій гідролізу. Через руйнування кремній-кисневих зв'язків на поверхні ЛПВМ, у порах ЛПВМ, виносяться поступово у дифузійний, гелевий і на кінець у розчин крім $Si - O^-$, $Si - OH$, $Si(OH)_4$, $Si(OH)_6^{2-}$ інші елементи, зокрема Cs^+ , Sr^{2+} , UO_2^{2+} , PuO_2^{2+} та інші іони, які у розчині зазнають гідролізу, комплексоутворення. Розчинення силі-

катної матриці проходить селективно, оскільки у процесі розчинення у шарі реакцій компоненти мають різну активність. В шарі гелю може відбуватися реполімеризація, пов'язана з перебудовою гідролізованих $\text{Si} - \text{OH}$, $\text{Si}(\text{OH})_4$, $\text{Si}(\text{OH})_6^{2-}$ з утворенням нанокристалічних $\text{Si} - \text{O} - \text{Si}$ і виділенням води H_2O . У процесі розчинення кремній-кисневої структури ЛПВМ і виходом окремих хімічних елементів чи цілих комплексів у шар гелю, а далі у розчин, змінюється хімічний склад самого розчину, у якому, в свою чергу, можуть протікати процеси сорбції і утворення колоїдів. Зокрема, сорбція урану може відбуватися за реакціями



з виділенням іонів водню, які в розчині гідролізуються, H_3O^+ . Утворення колоїдів, зокрема $\text{Pu}(\text{CO}_3)_2$, $[\text{Pu}(\text{CO}_3)_3]^{2-}$, $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3]^{4-}$, $[(\text{UO}_2)_2\text{CO}_3]^{2+}$, $[\text{U}(\text{CO}_3)_3]^{2-}$, $[\text{U}(\text{OH})_2(\text{CO}_3)_2]^{2-}$, характерних для “блочних” вод [3], суттєво впливає на рН розчину, і склад якого змінюється аж до насичення розчиненими компонентами ЛПВМ, в результаті чого вони осідають на поверхню у вигляді осаду, зокрема $\text{Pu}(\text{OH})_4$, UO_2CO_3 , $\text{Na}_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$ [3, 5]. Осаджений шар може складатися як із аморфних, так і кристалічних фаз, які містять елементи з ЛПВМ та водних розчинів. Очевидно, така низка фізико-хімічних процесів приводить до утворення уранових мінералів $\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$, $\text{UO}_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$, UO_2CO_3 , $\text{Na}_4\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3$, які утворюються на поверхні ЛПВМ [5].

Кількісно та якісно взаємодифузійні процеси у дифузійному шарі можуть описуватися рівняннями дифузії [8]:

$$\frac{\partial}{\partial t} n_i = \frac{\partial}{\partial x} \left(D_{ij} \frac{\partial}{\partial x} n_i \right) - \frac{\partial}{\partial x} (v_h n_i), \quad (5)$$

де n_i - мольна доля іона сорту i ($i = 1, 2$), 1 - іон із ЛПВМ, а 2 - іон із розчину. $D_{ij}(x, n_i)$, (D_{12}) - коефіцієнт взаємної дифузії, t - час, x - координата, $v_h(x, t)$ - швидкість проникнення в середину пористого ЛПВМ фронту реакції внутрішнього гідролізу (2), що супроводжує дифузію води. Тобто сумарний процес у реакційному шарі розглядається як взаємодифузія іонів з внутрішнім гідролізом кремній-кисневої сітки ЛПВМ. В загальному випадку $D_{ij}(x, n_i)$ залежить як від характеру взаємодії іонів, так і структурного розподілу іонів, молекул розчину та структури пористих ЛПВМ. Для граничного випадку, коли $D_{ij} = D = \text{постійна}$, $v_h = \text{постійна}$ і граничних

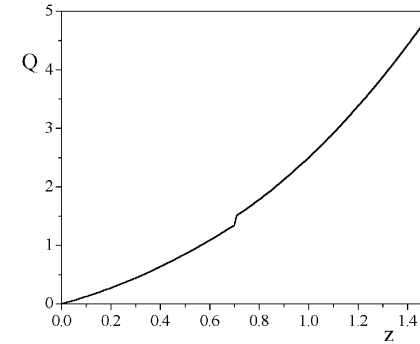


Рис. 2. Залежність кількості іона сорту 1, що вилугується з поверхні ЛПВМ від параметра z .

умовах першого роду для кількості іона сорту 1, вилугуваного за час t з 1 см^2 поверхні ЛПВМ, із рівняння (5) для безрозмірної кількості $Q_{z,1} = Q_{t,1}/(2c_1^0 D/v_h)$ одержимо:

$$Q_{z,1} = (z^2 + 1/2) \text{erf}(z) + z^2 + \pi^{-1/2} z \exp(-z^2), \quad (6)$$

де $z = v_h/2 (D/t)^{-1/2}$ - безрозмірна величина, c_1^0 - початкова концентрація (моль/см³) іона сорту 1 в ЛПВМ. Для різних інтервалів зміни параметра z рівняння (6) може бути апроксимоване [8]:

1. $0 < z \leq 0.03$, $0 < v_h/2 (D/t)^{-1/2} \leq 0.03$,
 $Q_{z,1} = 2z/\pi^{-1/2}$, $Q_{t,1} = 2c_1^0 \pi^{-1/2} (Dt)^{1/2}$,
2. $0.03 \leq z < 0.7$, $0.03 \leq v_h/2 (D/t)^{-1/2} < 0.7$,
 $Q_{z,1} = 2z/\pi^{-1/2} (1+z)$, $Q_{t,1} = 2c_1^0 \pi^{-1/2} ((Dt)^{1/2} + v_h t)$,
3. $0.7 \leq z$, $0.7 \leq v_h/2 (D/t)^{-1/2}$,
 $Q_{z,1} = 2z^2 + 1/2$, $Q_{t,1} = 2c_1^0 (D/v_h + v_h t)$.

На рис.2 представлена залежність кількості $Q_{z,1}$ іона сорту 1 від z . Залежність, як бачимо, монотонно зростаюча в інтервалі від 0 до 1.5.

Оскільки $z = v_h/2 (D/t)^{-1/2} = v_h^{1/2}/2 (D/v_h t)^{-1/2}$, то вилугування іона сорту 1 із ЛПВМ постійно зростатиме при $v_h t \gg D$, тобто, коли швидкість проникнення в середину пористого ЛПВМ фронту реакції внутрішнього гідролізу (2) на час вилугування значно більша від коефіцієнта взаємодифузії іона із ЛПВМ та з водного розчину. Однак, в загальному випадку $v_h(x, t)$ взаємозв'язані із $D_{ij}(x, n_i)$ і

залежать від характеру взаємодії та структурного розподілу іонів та молекул як ЛПВМ, так і водного розчину. Важливою задачею є розрахунок коефіцієнтів взаємної дифузії іонів, які будуть залежати як від характеристик самих іонів, так і молекул води, комплексів, які можуть виникати у таких водних розчинах. Процеси взаємодифузії іонів між ЛПВМ та водним розчином породжують іонний струм, який визначається потоком густини заряду іонів певного сорту. При цьому виникають приповерхневі локальні електричні поля, які також впливають поряд з дифузійними процесами на провідність іонів в системі ЛПВМ – водний розчин. Тому систему рівнянь дифузії (5) необхідно модифікувати у систему рівнянь переносу густини заряду іонів з врахуванням впливу приповерхневих електричних полів.

3. Процеси електродифузії у системі “ЛПВМ – водні розчини”

Розглянемо задачу про взаємодифузії іонів, які можуть містити радіоактивні елементи (UO_2^{2+} , PuO_2^{2+}), або бути ними (Cs^+ , Sr^{2+}) через границю контакту електроліту з паливовмісним матеріалом з врахуванням швидкості проникнення в середину пористого ЛПВМ фронту реакції внутрішнього гідролізу (2). При цьому будемо враховувати вплив контактних приповерхневих електричних полів на міграцію радіонуклідів.

Дані дослідження проведемо на прикладі вертикальної дифузії заряджених частинок у двофазній системі. При цьому верхня фаза товщиною l_1 представляє собою водний розчин радіоактивних елементів. Друга фаза товщиною l_2 – середовище ЛПВМ, пори якого заповнені розчином, який за своїм складом співпадає з вмістом першої фази (Рис.1). Виберемо прямокутну декартову систему координат так, щоб вісь $0z$ була перпендикулярна до поверхні фаз, а її початок знаходився на верхній поверхні другої фази. Будемо вважати, що шукані функції залежать тільки від координати z .

Надалі всі величини, що відносяться до першої фази, відмічати мемо індексом “1”, а до другої – індексом “2”. Вважаємо, що в початковий момент часу $t = 0$ у першій фазі, частинки якого дифундують у другу фазу (ЛПВМ), знаходиться певна кількість електричного заряду ω_0 . Ставиться задача про знаходження кінцевого розподілу електричного заряду та напруженості електричного поля в шарах залежно від вибраних характеристик електроліту та ЛПВМ. Зокрема, такого, коли електродифузія буде мінімальною (пройде найменша кількість заряджених частинок в ЛПВМ і буде мінімальним потік

густини електричного струму). Виписемо для цього вихідну систему співвідношень, початкові, граничні та умови контакту [9]. Вихідна система рівнянь має вигляд:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \omega_i}{\partial t} &= D_i \frac{\partial^2 \omega_i}{\partial z^2} - \frac{\lambda_i}{\varepsilon_i \varepsilon_0} \omega_i, \\ \frac{\partial E_i}{\partial z} &= \frac{\rho_i}{\varepsilon_i \varepsilon_0} \omega_i, \\ j_i &= \lambda_i E_i - \rho_i D_i \frac{\partial \omega_i}{\partial z}, \quad i = 1, 2. \end{aligned} \quad (8)$$

λ_i – електропровідність іонів сорту i .

Зауважимо, що система рівнянь (8) задовольняє додаткові умови збереження електричного заряду:

$$\frac{\partial j_i}{\partial z} + \rho_i \frac{\partial \omega_i}{\partial t} = 0. \quad (9)$$

У співвідношеннях (8), (9) введено наступні позначення та означення:

ω – питома густина електричного заряду з розрахунку на одиницю маси іона;

E – напруженість електричного поля;

j – густина електричного струму;

D – коефіцієнт електродифузії;

ε – відносна електрична проникність середовища;

ρ – масова густина;

ε_0 – електрична стала.

Початкові умови:

Приймаємо, що в початковий момент часу ($t = 0$) в околі першого шару знаходиться електричний заряд ω_0 , а в ЛПВМ він відсутній, тобто

$$\omega_1(z; 0) = \omega_0, \quad \omega_2(z; 0) = 0. \quad (10)$$

Граничні умови:

Приймаємо, що на верхній границі першого шару і на нижній границі другого шару відсутні потоки заряджених частинок, а на нижній границі другого шару відсутній також і електричний заряд, тобто

$$j_1(-l_1; t), \quad j_2(l_2; t) = 0, \quad \omega_2(l_2; t) = 0. \quad (11)$$

Умови контакту:

Це умови на границі $z = 0$, які задаватимемо наступним чином:

а) рівність потоків заряджених частинок

$$j_1(0; t) = j_2(0; t); \quad (12)$$

б) рівність електрохімічних потенціалів

$$\phi_1(0; t) = \phi_2(0; t), \quad (13)$$

або з врахуванням конкретних виразів для ϕ [9] матимемо

$$\frac{\rho_1 D_1}{\lambda_1} \omega_1(0; t) = \frac{\rho_2 D_2}{\lambda_2} \omega_2(0; t); \quad (14)$$

в) неперервність нормальної складової індукції електричного поля

$$\varepsilon_1 E_1(0; t) = \varepsilon_2 E_2(0; t) \quad (15)$$

Проінтегрувавши перше рівняння системи (8) для $i=1$ по товщині першого шару, а для $i=2$ – відповідно по товщині другого та використавши початкові умови (10), отримаємо закон збереження повного електричного заряду:

$$\rho_1 \Omega_1(t) + \rho_2 \Omega_2(t) = \rho_1 \omega_0 l_1, \quad (16)$$

де

$$\Omega_1(t) \equiv \int_{-l_1}^0 \omega_1(z; t) dz, \quad \Omega_2(t) \equiv \int_{-l_2}^0 \omega_2(z; t) dz \quad (17)$$

повні заряди в першому і другому шарах відповідно.

На основі сформульованої задачі (8) - (17) можна дослідити кінетику перерозподілу електричних зарядів у шарах та відповідні зв'язані з ними електричні поля і потоки.

Для розв'язання сформульованої задачі використаємо перетворення Лапласа за часом [10]. Тоді розв'язки можна записати у вигляді:

$$\omega_1(z; t) = \omega_0 \left[e^{-\frac{\lambda_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} t} + \frac{\Phi_{1\omega}(z; S_0)}{a(S_0)} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\Phi_{1\omega}(z; S_n)}{S_n a(S_n)} e^{(-\frac{\lambda_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} + \mu_n^2 D_1) t} \right], \quad (18)$$

$$E_1(z; t) = \frac{\rho_1 \omega_0}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} \left[z e^{-\frac{\lambda_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} t} + \frac{\Phi_{1E}(z; S_0)}{a(S_0)} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\Phi_{1E}(z; S_n)}{S_n a(S_n)} e^{(-\frac{\lambda_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} + \mu_n^2 D_1) t} \right], \quad (19)$$

$$j_1(z; t) = \rho_1 \omega_0 \left[\frac{\lambda_1 z}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} e^{-\frac{\lambda_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} t} - \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\Phi_{1j}(z; S_n)}{a(S_n)} e^{(-\frac{\lambda_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} + \mu_n^2 D_1) t} \right] \quad (20)$$

у першій фазі;

$$\omega_2(z; t) = \frac{\rho_1 \omega_0 \varepsilon_1 \lambda_2}{\rho_2} \left[\frac{\Phi_{2\omega}(z; S_0)}{a(S_0)} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\Phi_{2\omega}(z; S_n)}{S_n a(S_n)} e^{(-\frac{\lambda_2}{\varepsilon_0 \varepsilon_2} + \nu_n^2 D_2) t} \right], \quad (21)$$

$$E_2(z; t) = -\frac{\rho_1 \omega_0 \varepsilon_1 \lambda_2}{\varepsilon_0 \varepsilon_2} \left[\frac{\Phi_{2E}(z; S_0)}{a(S_0)} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\Phi_{2E}(z; S_n)}{S_n a(S_n)} e^{(-\frac{\lambda_2}{\varepsilon_0 \varepsilon_2} + \nu_n^2 D_2) t} \right], \quad (22)$$

$$j_2(z; t) = \rho_1 \omega_0 \varepsilon_1 \lambda_2 \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\Phi_{2j}(z; S_n)}{a(S_n)} e^{(-\frac{\lambda_2}{\varepsilon_0 \varepsilon_2} + \nu_n^2 D_2) t}. \quad (23)$$

у другій фазі.

У формулах (18)-(23) введено наступні позначення:

$$\Phi_{1\omega}(z; S_0) = (\lambda_1 D_2 \gamma_2 \operatorname{sh} \gamma_2 l_2 \operatorname{ch} \gamma_1 z - \lambda_2 D_1 \gamma_1 \operatorname{ch} \gamma_1 l_2 \operatorname{sh} \gamma_1 z) \frac{\lambda_1 l_1}{\varepsilon_0 D_1},$$

$$\Phi_{1E}(z; S_0) = (\lambda_1 D_2 \gamma_2 \operatorname{sh} \gamma_2 l_2 \operatorname{ch} \gamma_1 z - \lambda_2 D_1 \gamma_1 \operatorname{ch} \gamma_1 l_2 \operatorname{sh} \gamma_1 z) \frac{\lambda_1 l_1}{\varepsilon_0 D_1 \gamma_1},$$

$$\Phi_{2\omega}(z; S_0) = \frac{\lambda_1 l_1 \gamma_2}{\varepsilon_1 \varepsilon_0} \operatorname{sh} \gamma_2 (l_2 - z),$$

$$\Phi_{1E}(z; S_0) = \frac{\lambda_1 l_1}{\varepsilon_1 \varepsilon_0} \operatorname{ch} \gamma_2 (l_2 - z),$$

$$a(S_0) = \varepsilon_1 \gamma_1 (\lambda_1 D_2 \gamma_2 \operatorname{sh} \gamma_2 l_2 \operatorname{sh} \gamma_1 L_1 + \lambda_2 D_1 \gamma_1 \operatorname{ch} \gamma_1 l_1 \operatorname{ch} \gamma_2 l_2) - \frac{\lambda_1 \lambda_2}{\varepsilon_0},$$

$$\Phi_{1\omega}(z; S_n) = \left[\varepsilon_1 \mu_n (\lambda_2 D_1 \mu_n \cos \nu_n l_2 \sin \mu_n z - \lambda_1 D_2 \nu_n \sin \nu_n l_2 \cos \mu_n z) - \lambda_* S_n \sin \mu_n z \right] \frac{C_n}{D_1 \mu_n},$$

$$\Phi_{1E}(z; S_n) = \left[S_n (\lambda_* \cos \mu_n z - \varepsilon_0 \varepsilon_1 \varepsilon_2 D_2 \nu_n^2) - \varepsilon_1 \mu_1 (\lambda_1 D_2 \nu_n \sin \nu_n l_2 \sin \mu_n z + \lambda_2 D_1 \mu_n \cos \nu_n l_2 \cos \mu_n z) \right] \frac{C_n}{D_1 \mu_n^2},$$

$$\Phi_{1j}(z; S_n) = \left[S_n \lambda_* \cos \mu_n z + \lambda_1 \varepsilon_2 D_2 \nu_n^2 - \varepsilon_1 \mu_n (\lambda_1 D_2 \nu_n \sin \nu_n l_2 \sin \mu_n z + \lambda_2 D_1 \mu_n \cos \nu_n l_2 \cos \mu_n z) \right] \frac{C_n}{D_1 \mu_n^2},$$

$$\Phi_{2\omega}(z; S_n) = -\nu_n C_n \sin \nu_n (l_2 - z),$$

$$\Phi_{2E}(z; S_n) = C_n \left[\cos \nu_n (l_2 - z) + \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_2 S_n}{\lambda_2} \right],$$

$$\Phi_{2j}(z; S_n) = C_n [\cos \nu_n (l_2 - z) - 1],$$

$$C_n = S_n \frac{\sin \mu_n l_1}{\mu_n} + \frac{\lambda_1 l_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1},$$

$$a(S_n) = \frac{\varepsilon_1}{2} \left[2\lambda_2 \cos \mu_n l_1 \cos \nu_n l_2 - \frac{\lambda_1 (D_1 \mu_n^2 + D_2 \nu_n^2)}{D_1 \mu_n \nu_n} \sin \mu_n l_1 \sin \nu_n l_2 - \frac{\lambda_1 l_1 (D_2 \nu_n)^2 + \lambda_2 l_2 (D_1 \mu_n)^2}{D_1 D_2 \nu_n} \cos \mu_n l_1 \sin \nu_n l_2 - (\lambda_1 l_2 + \lambda_2 l_1) \mu_n \sin \mu_n l_1 \cos \nu_n l_2 \right] + \lambda_* \left(\cos \mu_n l_1 - \frac{S_n l_1}{2 D_1 \mu_n} \sin \mu_n l_1 \right) - \lambda_1 \varepsilon_2;$$

$$\lambda_* = \lambda_1 \varepsilon_2 - \lambda_2 \varepsilon_1.$$

При цьому

$$\gamma_i^2 = \frac{\lambda_i}{\alpha \varepsilon_0 \varepsilon_i}, \quad i = 1, 2, \quad (24)$$

де $\gamma_i = 1/\delta_i$; δ_i - величина, що характеризує глибину проникання (дифузії) заряджених частинок у першому ($i=1$) та другому ($i=2$) шарах відповідно. Запишемо також вираз для S_n :

$$S_n = -\frac{\lambda_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} - \mu_n^2 D_1 = -\frac{\lambda_2}{\varepsilon_0 \varepsilon_2} - \nu_n^2 D_2, \quad i = 1, 2, \quad (25)$$

де μ_n і ν_n - корені рівняння.

Виходячи з формул (21)–(26), знайдемо також вираз для повного заряду, який продифундував у другий шар:

$$\Omega_2(t) = \frac{\rho_1 \omega_0 \varepsilon_1 \lambda_2}{\rho_2} \left[\frac{\lambda_2 l_1}{\varepsilon_0 \varepsilon_1} \frac{\operatorname{ch} \lambda_2 l_2 - 1}{a(S_0)} + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\cos \nu_2 l_2 - 1}{S_n a(S_n)} C_n e^{-\left(\frac{\lambda_2}{\varepsilon_0 \varepsilon_2} + \nu_n^2 D_2\right)t} \right]. \quad (26)$$

Одержані аналітичні розв'язки рівнянь електродифузії для напруженості електричного поля та густини заряду іонів розчину у порах ЛПВМ будуть проаналізовані в залежності від концентрації електроліту, пористості ЛПВМ. Важливим моментом є оцінка вкладу у процеси переносу локального електричного поля від розділення заряду іонів у порах та власного електромагнітного поля ЛПВМ, яке постійно випромінюється внаслідок α , β , γ - самоопроміненням.

Література

1. Krinitsyn A.P., Simanovskaya I.Ya, Strikhar O.L. Action of Water on Constraction and Full-containing Materials in the Facilities of the Chernobyl Sarcophagus. // Radiochemistry, 1998, vol. 40, No 3, p. 287-297.
2. Щербин В.Н., Криницьн А.П., Стрихарь О.Л. Определение ^{235}U в водотоках объекта “Укрытие”. Чернобыль, 1999, 8 с. – (Препринт / НАН України МНТЦ “Укриття”; 99-1).
3. Богатов С.А., Корнеев А.А., Криницьн А.П., Симановская И.Я., Стрихарь О.Л., Щербин В.Н. Проблема воды в объекте “Укрытие”. Чернобыль, 1999, - 28 с. – (Препринт / НАН України МНТЦ “Укриття”; 99-5).
4. Криницьн А.П., Симановская И.Я., Стрихарь О.Л. Некоторые аспекты макрокомпонентного и радионуклидного составов воды объекта “Укрытие”. // Проблемы Чернобыля, 2000, вип.6, с. 21-24.

5. Основные научно-технические результаты, полученные в ОЯРБ в 1994 г. – Чернобыль, МНТЦ “Укрытие” НАН Украины, 1994, 137 с.
6. Доступная пористость и молекулярно-ситовые свойства лавообразных топливосодержащих материалов объекта “Укрытие”. (Отчет) / МНТЦ “Укрытие” НАН Украины. – Арх.№3723. – Чернобыль, 1998.
7. Baryakhtar V., Gonchar V., Zhidkov A., Zhydkov V. Radiation damages and self-sputtering of high-radioactive dielectrics: spontaneous emission of submicronic dust particles // *Condens. Matter Phys.* – 2002 – V. 5, No 3(31). – P. 449-471.
8. Белюстин А.А. Выщелачивание, состав и структура поверхностных слоев щелочносиликатных стекол, обработанных водными растворами, и диффузия катионов в них. Стеклообразное состояние.- Ленинград, Наука, 1983, с.95-96. *Физ.хим. стекла*, 1983, т.9, №1, с.3-27.
9. Солодяк М.Т., Чапля Є.Я., Качур І.Р. Вихідні співвідношення математичної моделі електродифузії водних розчинів солей у пористих середовищах. Львів. – 1993. – 46 с. – Препринт/АН України, ЦМН/ПІММ, №6-93.
10. Лыков А.В. Теория теплопроводности. – М.: Высш. школа, 1967. – 599с.

Препринти Інституту фізики конденсованих систем НАН України розповсюджуються серед наукових та інформаційних установ. Вони також доступні по електронній комп'ютерній мережі на WWW-сервері інституту за адресою <http://www.icmp.lviv.ua/>

The preprints of the Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine are distributed to scientific and informational institutions. They also are available by computer network from Institute's WWW server (<http://www.icmp.lviv.ua/>)

Іван Йосипович Куриляк
Петро Андрійович Глушак
Михайло Теодорович Солодяк
Михайло Васильович Токарчук

Дослідження процесів вилугування поверхні ЛПВМ при взаємодії з водними розчинами радіонуклідів

Роботу отримано 23 грудня 2002 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку семінаром відділу теорії нерівноважних процесів

Виготовлено при ІФКС НАН України

© Усі права застережені