

ІНСТИТУТ  
ФІЗИКИ  
КОНДЕНСОВАНИХ  
СИСТЕМ

ICMP-96-06U

І.Р.Юхновський, Р.І.Желем, І.П.Омелян,  
Є.М.Сов'як, М.В.Токарчук

ПРОБЛЕМИ ОПИСУ ЯДЕРНО-ФІЗИКО-ХІМІЧНИХ  
ПРОЦЕСІВ У ЯДЕРНІЙ МАГМІ В ОБ'ЄКТІ "УКРИТТЯ" II.  
ОПИС ПРОЦЕСІВ ДИФУЗІЇ В СИСТЕМІ  
"ЯДЕРНА МАГМА — ВОДА"

УДК: 5.39.1, 66.085:66.093, 621.039.526

РАС: 66.10.С, 66.10.-х, 68.45.-v

Проблеми опису ядерно-фізико-хімічних процесів у ядерній магмі в об'єкті "Укриття" II. Опис процесів дифузії в системі "ядерна магма – вода"

І.Р.Юхновський, Р.І.Желем, І.П.Омелян, Є.М.Сов'як,  
М.В.Токарчук

**Анотація.** Для детального розуміння процесів руйнування ядерної магми, виходу з неї урану у воду та їх прогнозування в об'єкті "Укриття" досліджуються процеси дифузії радіонуклідів в системі "ядерна магма – вода".

**Problems of description of nuclear physical and chemical processes in nuclear magma inside object "Shelter" II. Description of diffusion processes in a system "nuclear magma – water"**

I.R. Yukhnovskii, R.I. Zhelem, I.P. Omelyan, E.M. Sovjak, M.V. Tokarchuk

**Abstract.** Diffusion processes of radionuclides in the system "nuclear magma – water" are researched to get detailed knowledge on the magma destruction and transfer of uranium into water and predict the processes occurring inside the object "Shelter".

## 1. Вступ

За останні 5 років була проведена величезна кількість досліджень, деяка частина результатів яких опублікована [1-10], а більша частина цих результатів знаходиться в архівних документах та звітах [11-26] і вказує на кардинальні зміни в стані лавоподібних паливомістких масах - ядерній магмі. Ядерна магма - склоподібний композит, що утворився із розплаву окисів: CaO, MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, ZrO<sub>2</sub>, SiO<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>O, з вкладом до 18% окису урану UO<sub>2</sub> - руйнується, перетворюючись у ядерний пил. Одним із важливих факторів процесів руйнування ядерної магми є пониження в цілому температури паливомістких матеріалів, що привело до активної взаємодії води з ядерною магмою [19,16].

Чи можна було б передбачити такі кардинальні зміни в стані ядерної магми? Очевидно, що так! Експериментальні дослідження та розрахунки, на основі яких формувалось ТОЯБ [24] стосувались до вивчення процесів на поверхні ядерної магми. Безперечно, дослідження внутрішніх процесів у ядерній магмі чисто технічно були не можливі за відсутності методик досліджень та технічних засобів. Однак постановка задач комплексу теоретичних досліджень фізико-хімічних процесів в середині ядерної магми з метою прогнозування зміни її стану з плином часу в значній мірі могла б передбачити ті внутрішні процеси, наслідки яких ми зараз спостерігаємо пасивно.

Такі дослідження є актуальними і в даний час, оскільки ядерна магма і в цілому об'єкт "Укриття" є нерівноважною системою і прогнозування у них процесів з метою стабілізації є важливим.

Процеси руйнування склоподібної ядерної магми є складними. Насамперед необхідно ствердити, що склоподібна ядерна магма, у якій біля 30%-60% SiO<sub>2</sub> за фізичною суттю є нерівноважним аморфним середовищем з великими часами релаксації, а тому зовнішні фактори, зокрема, вода можуть швидко змінити такий стан паливомістких матеріалів. Ще у 1986 році, коли тільки сформувалась склоподібна ядерна магма, можна було б стверджувати про її поступове руйнування з плином часу, оскільки у ній ще проходили процеси вимушеного радіоактивного розпаду <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, продуктами яких є водень, інертні гази: тритій, неон, ксенон, криптон, а також цілий ряд уламків - нестабільних елементів, які шляхом випромінювання нейтронів переходять в стабільні ізотопи і довгоживучі (понад 10<sup>5</sup> років) радіоактивні елементи. Процес розпаду ядер <sup>235</sup>U, <sup>239</sup>Pu, <sup>241</sup>Pu, чи  $\alpha$ -,  $\beta$ -ядерні перетворення, супроводжуються в певних об'ємах значним виділенням енергії. Це приводить до ін-

тенсивних процесів переносу енергії в середовищі, а отже неоднорідної зміни температури. Крім того, продукти радіоактивних розпадів є практично неоднорідними включеннями у структурі склоподібної ядерної магми і за теорією дислокацій у твердих тілах [27] можуть приводити з часом до значних структурних перетворень, рекристалізації. Ще більш складніші процеси пов'язані з газовими продуктами розпаду - воднем, тритієм, гелієм, неоном, криптоном і ксеноном. У зв'язку з малою розчинністю інертних газів в матеріалах паливних елементів, наприклад UO<sub>2</sub>, виділяється надлишковий газ і утворює газозаповнені порожнини. Зародження та ріст цих порожнин приводить до набухання матеріалу - свелінгу. Кількість газу, накопиченого в опроміненому середовищі - склоподібній ядерній магмі - може бути значна, що приводить до деформації та руйнування середовища. Процеси свелінгу в значній мірі залежать від багатьох одночасно протікаючих процесів: зміни температури, умов та інтенсивності опромінення, властивостей матеріалів. В проблемі свелінгу важливим є питання механізму росту газових пор. Експериментальні дослідження [4] вказують на значну пористість склоподібної ядерної магми. Процес зародження газових пор проходить внаслідок дифузії атомів газу до різних дефектів, тріщин, різних дислокацій, водню до металів. Накопичуючись у порожнинах газ створює тиск, який визиває деформацію структури матеріалу. Газові порожнини за рахунок температурних флуктуацій шляхом макроскопічної дифузії можуть об'єднуватись, що приводить до ще більш масштабних деформацій матеріалу.

Дослідження за 1989-1991 роки показали [16,18,20], що склоподібні лави ядерної магми в об'єкті "Укриття" втрачають свою міцність. Очевидно, це є результатом незворотніх ядерно-фізико-хімічних процесів в ядерній магмі, які практично неможливо стабілізувати. Пониження температури на поверхні лав в середньому до 40÷60 °C, утворення великої кількості тріщин, пор у ядерній магмі спричинились до активної взаємодії з нею води, що потрапляє в "Укриття" через чисельні отвори, щілини у покрівлі і стінах, конденсації її з повітря на внутрішніх стінах об'єкту та в процесі зрошування ядерного пилу. Вода проникає в тріщини, пори в ядерній магмі, де відбувається її радіоліз внаслідок  $\alpha$ -,  $\beta$ -розпадів та  $\gamma$ -випромінювання. Продукти радіолізу, молекули води на границі ядерна магма - вода вступають в складні процеси гідратації [28,29] окисів урану UO<sub>2</sub>, плутонію PuO<sub>2</sub> та інших окислів радіоактивних елементів. Проходить активно процес вилужування урану із ядерної магми і швидкого його виходу у водойми, що знаходяться в се-

редині об'єкту “Укриття”. Експериментальні дослідження [16,19,23] вказують на значну зміну з часом концентрації урану у водоймах “Укриття”.

Важливим фактором значної зміни стану ядерної магми за рахунок ядерно-фізико-хімічних перетворень в контакт з водою є поява жовтих плям на чорній кераміці [2,3]. Вперше такі жовті плями спостерігали в 1990 році [11]. Зразки жовтих новоутворень були обстежені методами растрової електронної спектроскопії, рентгенофазовим і рентгеноспектральним аналізом. В результаті вдалось вивчити, що жовті плями - голкоподібні кристали уранових мінералів з основних фазами [2,9,16]: епінтиніт -  $UO_3 \cdot 2H_2O$ , студіт -  $UO_3 \cdot 16CO_3 \cdot 1.91H_2O$ , дві модифікації -  $UO_4 \cdot 4H_2O$ , ретзерфордін -  $UO_2CO_3$  і неназвані фази  $Na_4UO_2(CO_3)_3$ ,  $Na_2UO_2(CO_3)_2 \cdot 2H_2O$ . Усі ці уранові мінерали мають одну дуже важливу особливість - добре розчиняються у воді!

Підсумовуючи це, необхідно ствердити, що в об'єкті “Укриття” відбувається незворотній процес із зростаючою тенденцією виходу ядерного палива із ядерної магми у водойми в середині приміщень об'єкту. Це становить один із факторів ядерної небезпеки об'єкту “Укриття”. Тому проблема взаємодії води з фрагментами активної зони реактора, лавами ядерної магми та ядерним пилом стає вкрай гострою, оскільки:

- вода, взаємодіючи з ядерною магмою приводить до суттєвого збільшення ефективного коефіцієнта  $K_{ef}$  розмноження нейтронів [13,14, 16,19] і як результат можливого виникнення локальних самопідтримуючих ядерних ланцюгових реакцій (СЯЛР);
- вода, шляхом її радіолізу та складних процесів вилучування руйнує лави ядерної магми, спричиняючи неконтрольоване перенесення радіоактивних елементів всередині об'єкту і за його межами;
- при руйнуванні лав ядерної магми утворюється ядерний пил (з вмістом урану, плутонію, америцію) - ще один фактор екологічної небезпеки об'єкту “Укриття”;
- вода є однією із основних причин прискорення процесів руйнування будівельних конструкцій “Укриття”.

В данному контексті необхідно звернути особливу увагу на результати звітів [12,13]. В [12] були проведені комп'ютерні числові роз-

рахунки коефіцієнтів ефективного розмноження нейтронів для системи, що моделює скупчення фрагментів активної зони реактора в різних приміщеннях об'єкту “Укриття”. Розрахунки показали, що для скупчень фрагментів в барабан-сепараторах з врахуванням гетерогенності структури значення  $K_{ef}$  досягає 0,61, на схемі “Е” - до 0,88, а для скупчень в центральному залі  $K_{ef}$  досягає 0,97. У [14] вказується, що при любых переміщеннях конструктивних будівельних елементів об'єкту “Укриття”, які можуть привести до зміни геометричної форми скупчень паливомістких матеріалів, найбільшу небезпеку несуть ті зміщення, котрі можуть привести до утворення ядерної магми сферичної форми. Найбільш небезпечним є руйнування конструкції схеми “Е” і падіння на скупчення фрагментів активної зони в Центральному залі та об'єднання їх з ядерною магмою в приміщенні 305/2. У випадку залиття їх водою на 0,2 м [12] ця ситуація може привести до СЯЛР. Комп'ютерні моделювання проведені в [12] вказують на те, що залиття водою ядерної магми, фрагментів активної зони при збільшенні процентного вкладу  $UO_2$  приводить до збільшення  $K_{ef}$  розмноження нейтронів, досягаючи в Центральному залі до 1.05 – надкритична ситуація.

Для детального розуміння процесів руйнування ядерної магми, виходу з неї урану у воду та їх прогнозування важливо, зокрема, дослідити процеси дифузії радіонуклідів в системі “ядерна магма – вода”. Тому головною метою наступної частини є статистичний опис процесів дифузії частинок в системі “ядерна магма – вода”.

## 2. Неоднорідні рівняння дифузії частинок в системі “ядерна магма – вода”

Процеси взаємодії ядерної магми з водою ми будемо розглядати на модельній двофазній системі “ядерна магма – вода”.

Ядерна магма утворилась шляхом високотемпературного розплаву і поступового застигання ядерного палива зі сполуками бору, з доломітом, піском, глиною, свинцем, котрі засипались в реактор, щоб знизити температуру й припинити активні ядерні процеси. Розв'язувалась глобальна задача деконцентрування ядерного палива. В результаті утворилось склоподібне неоднорідне тверде середовище у вигляді лавин, яке містить цілий ряд високоактивних радіонуклідів: U, Pu, Cs, Ce, Am, Cm, Zr, Sb, та їх ізотопів. За процентним хімічним складом проб [1-5] можна стверджувати, що ядерна магма за структурою є багатокомпонентним склом [30,31], що характеризується іонними зв'язками -Si-O-Si-, -O-Si-O-, -Ca-O-, -Al-O-Al-, і на-

лежить до типу ситалового скла:  $\text{CaO-MgO-FeO-Fe}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ .

Дослідження зміни процентного вмісту компонент такого скла [30] показують, що якщо у ньому  $\text{SiO}_2$  буде більше як 40%, то у структурі скла спостерігатиметься кристалічна будова. Слід зауважити, що стійкість такого скла залежить від наявності груп  $\text{OH}^-$ , очевидно, у склоподібній ядерній магмі такі групи є. Збільшення вмісту груп  $\text{OH}^-$  знижує стійкість склоподібного середовища [30]. Враховуючи хімічний склад матеріалів засипання: доломіт, карбід бора, тринатрійфосфат, полімеризуючі рідини, можна було б припускати про утворення скла типу алюмофосфатного, яке є кандидатом у матричний матеріал для радіоактивних відходів [32] за хімічним складом:  $\text{NaNO}_3$ ,  $\text{CsNO}_3$ ,  $\text{SrO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{AlPO}_4$ ,  $\text{H}_3\text{PO}_4$ ,  $\text{Na}_2\text{SO}_4$ ,  $\text{NaCl}$ ,  $\text{NiO}$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ,  $\text{UO}_2$ ,  $\text{ZrO}_2$ ,  $(\text{NH}_4)_2\text{MoO}_4$ . Як показали експериментальні роботи [4], в хімічний склад ядерної магми входить до 60%  $\text{SiO}_2$ . Детальний хімічний аналіз на вміст заліза, нікелю, цирконію, ніобію, проб урану, які взяті з ядерної магми “слонової ноги”, був проведений у роботах [1,4]. Зокрема, рентгенофазовий аналіз зразків з “слонової ноги” показали наявність у них фази  $\text{UO}_2$ , слідів мінералу міннесотаїта  $(\text{Fe}_{2.4}\text{Mg}_{0.4})(\text{Si}_{3.95}\text{Al}_{0.95})(\text{OH})_{2.72}$  і діопсиду  $\text{CaMg}(\text{SiO}_3)_2$ , а також можливість утворень  $(\text{UZr})\text{O}_2$ , оскільки мольне відношення урану до цирконію близьке до одиниці (0.99-1.2), та новоутворення - чорнобиліт  $(\text{UZr})\text{SiO}_4$ . В роботі [4] поданий сценарій утворення чорнобильських склоподібних лав, за яким максимальна температура в реакторі під час аварії досягала до 2800 °C. При аналізі склоподібних середовищ важливо встановити природу зв'язків між основними його компонентами; у випадку ядерної магми - це в основному оксиди з іонними зв'язками.

Тут необхідно відзначити, що розплави склоутворюваних систем відрізняються від металічних, сольових тим, що в процесі переходу з твердого стану в рідкий не відбувається розриву ковалентних зв'язків між атомами, наприклад  $\text{Si-O}$ ,  $\text{Al-O}$ ,  $\text{B-O}$ ,  $\text{P-O}$ , тобто в комплексах, які утворюють каркас скла. При цьому переважаюча роль ковалентних зв'язків зумовлює полімерну будову скла, що формується полівалентними радикалами  $(\text{SiO}_3)_n^{2n-}$  для силікатів,  $(\text{BO}_2)_n^{(n-1)-}$  для боратів,  $(\text{PO}_3)_n^{n-}$  для фосфатів. Крім цього склоподібна структура, як відомо, утворюється лише в тому випадку, коли при охолодженні в'язкість розплаву буде швидко й неперервно зростати від декількох пауз до  $10^{14}$  і вище. Така висока в'язкість скла може бути досягнута лише в розплавах, що містять певну кількість окислів - склоутворювачів, якими є окисли, між атомами яких діють ковалентні зв'язки.

Таким чином, ядерна магма є силікатною матрицею з різноманітними включеннями за хімічним складом [4], включаючи оксид урану  $\text{UO}_2$  до 18%. Між включеннями і силікатною матрицею діють в основному іонні зв'язки, тому такі включення можна розглядати як іонні кластери (наприклад, іон уранілу  $\text{UO}_2^{2+}$ ) в силікатній матриці. У зв'язку з цим ядерну магму можна представити як систему взаємодіючих іонних кластерів з полівалентними радикалами  $(\text{SiO}_3)_n^{2n-}$ , що утворюють полімерну структуру скла.

Підсумовуючи це, систему “ядерна магма – вода” можна представити як статистичну модель взаємодії іонних кластерів з водним розчином. Очевидно, що, формулюючи модель, необхідно поставити такі вимоги, щоб вона найреальніше описувала фізико-хімічні процеси, які спостерігаються в реальних взаємодіях ядерної магми з водою в об'єкті “Укриття”.

Які ж основні процеси необхідно описати при розгляді ядерно-фізико-хімічних перетворень в системі “ядерна магма - вода”? До них належить ціла низка проблем; одними з них є:

1. Процеси дифузії іонних кластерів з вмістом радіоактивних елементів чи окремих іонів у силікатній матриці з врахуванням кулонівського, дипольного, та резонансного характерів взаємодії;
2. Процеси дифузії іонів радіоактивних елементів з поверхні ядерної магми у воду. Дослідження характеру взаємодії води з ядерною магмою з врахуванням як процесів радіолізу внаслідок  $\alpha$ -,  $\beta$ -розпадів та  $\gamma$ -випромінювання, так і хімічних реакцій.

На характер дифузії радіоактивних елементів (в іонній формі) із силікатної матриці у воду будуть впливати як процеси переносу іонів чи іонних кластерів в самій матриці, так і процеси радіолізу води та хімічні реакції, які проходять у ній. Очевидно, що основні процеси, які призводять до дифузії із силікатної матриці у воду, відбуваються насамперед у приповерхневому шарі системи “ядерна магма - вода”. На них особливий вплив має радіоліз води, зокрема, продукти радіолізу: як радикали, особливо іони водню  $\text{H}^+$  і іони  $\text{OH}^-$ , так і молекулярні продукти:  $\text{H}_2\text{O} \rightarrow e_{\text{aq}}^-, \text{H}_{\text{aq}}^+, \text{OH}_{\text{aq}}^-, \text{HO}_2, \text{H}_2, \text{H}_2\text{O}_2$ ; індекс “aq” означає, що іони є гідратовані. У значній мірі дані продукти радіолізу активно руйнують силікатну матрицю, збільшуючи ймовірність виходу з неї радіоактивних елементів в іонній формі у воду.

Для опису процесів дифузії частинок із ядерної магми у воду ми представимо ядерну магму як модель кластерів  $M$  сортів по  $N_a$  частинок кожного сорту, що складаються з  $X_\alpha$  заряджених силових центрів (у кожному з яких знаходиться заряд  $ez_\alpha^a$ ) і взаємодіють між собою та з молекулами води. Підсистему “вода” з діелектричною сталою  $\varepsilon_v$  будемо розглядати як сукупність молекул води  $H_2O$  та іонних радикалів, зокрема, іонів водню  $H^+$  та групи  $OH^-$  і будемо позначати як частинки сорту  $s$ , що складаються із  $X_\alpha$  - заряджених силових центрів в об’ємі  $V_2$ . Очевидно, що у водному розчині можуть знаходитись інші іони або молекулярні комплекси, які будуть взаємодіяти з частинками ядерної магми. На певному етапі досліджень вони можуть бути враховані. Зміна густини заряджених силових центрів, якими ми будемо означати радіоактивні елементи (наприклад, в іонній формі  $UO_2^{2+}$ ,  $PuO_2^{2+}$  та інші) в силікатній матриці може бути описана узагальненими рівняннями дифузії для двофазної системи “ядерна магма – вода”. Подібні рівняння були отримані в наших роботах [33, 34]. У випадку слабонерівноважних процесів дифузії дана система рівнянь для двофазної системи “ядерна магма – вода” матиме вигляд:

а) для фази “ядерна магма”, об’єм  $V_1$ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_1^{\alpha a}(\mathbf{r}_1; t) = & \quad (2.1) \\ & - \sum_{\beta, b} \int_{V_1} d\mathbf{r}'_1 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_1} D_{11}^{\alpha a, \beta b}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_1; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_1} \delta n_1^{\beta b}(\mathbf{r}'_1; t') \\ & - \sum_{\beta, b} \int_{V_2} d\mathbf{r}'_2 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_1} D_{12}^{\alpha a, \beta b}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_2; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_2} \delta n_2^{\beta b}(\mathbf{r}'_2; t') \\ & - \sum_s \int_{V_2} d\mathbf{r}'_2 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_1} D_{12}^{\alpha a, \beta s}(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}'_2; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_2} \delta n_2^{\beta s}(\mathbf{r}'_2; t'), \end{aligned}$$

б) для фази “вода”, об’єм  $V_2$ :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_2^{\alpha s}(\mathbf{r}_2; t) = & \quad (2.2) \\ & - \sum_{\beta, b} \int_{V_1} d\mathbf{r}'_1 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_2} D_{21}^{\alpha s, \beta b}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'_1; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_1} \delta n_1^{\beta b}(\mathbf{r}'_1; t') \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} & - \sum_{\beta, b} \int_{V_2} d\mathbf{r}'_2 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_2} D_{22}^{\alpha s, \beta b}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'_2; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_2} \delta n_2^{\beta b}(\mathbf{r}'_2; t') \\ & - \sum_{s'} \int_{V_2} d\mathbf{r}'_2 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_2} D_{22}^{\alpha s, \beta s'}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'_2; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_2} \delta n_2^{\beta s'}(\mathbf{r}'_2; t'), \end{aligned}$$

і

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} n_2^{\alpha a}(\mathbf{r}_2; t) = & \quad (2.3) \\ & - \sum_{\beta, b} \int_{V_1} d\mathbf{r}'_1 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_2} D_{21}^{\alpha a, \beta b}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'_1; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_1} \delta n_1^{\beta b}(\mathbf{r}'_1; t') \\ & - \sum_{\beta, b} \int_{V_2} d\mathbf{r}'_2 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_2} D_{22}^{\alpha a, \beta b}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'_2; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_2} \delta n_2^{\beta b}(\mathbf{r}'_2; t') \\ & - \sum_s \int_{V_2} d\mathbf{r}'_2 \int_{-\infty}^t dt' e^{\varepsilon(t'-t)} \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}_2} D_{22}^{\alpha a, \beta s}(\mathbf{r}_2, \mathbf{r}'_2; t, t') \frac{\partial}{\partial \mathbf{r}'_2} \delta n_2^{\beta s}(\mathbf{r}'_2; t'), \end{aligned}$$

$\varepsilon \rightarrow +0$  після термодинамічного граничного переходу. У формулах (2.1)-(2.3)

$$\delta n_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi; t) = \langle \delta \hat{n}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi) \rangle^t, \quad (2.4)$$

$$\delta \hat{n}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi) = \hat{n}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi) - \langle \hat{n}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi) \rangle_0, \quad (2.5)$$

$$\hat{n}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi) = \sum_{j=1}^{N_a} \delta(\mathbf{r}_j^\alpha - \mathbf{r}_\xi). \quad (2.6)$$

(2.6) – густина заряджених силових центрів частинок сорту  $a$  у фазі  $\xi = 1, 2$ ;  $\langle \dots \rangle^t$  - засереднення з повною нерівноважною функцією розподілу частинок всієї системи, а  $\langle \dots \rangle_0$  - засереднення з повною рівноважною функцією розподілу  $\rho_0$ . Мікроскопічну густину числа частинок для радіоактивних елементів зручно означити наступним чином:

$$\hat{n}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi) = \sum_{j=1}^{N_a} \delta(\mathbf{r}_j^\alpha - \mathbf{r}_\xi) (1 - \lambda_a^*) \quad , \quad (2.7)$$

де  $\lambda_a^* = \lambda_a t$  - безрозмірна постійна спонтанного розпаду ядра, або  $\alpha$ -,  $\beta$ -розпаду для ізоотопів кюрію, плутонію, америцію. Очевидно, що

процеси захоплення нейтронів радіоактивними елементами (ураном, плутонієм, америцієм, кюрієм) та вимушеного поділу ядер у такий спосіб не можна врахувати, оскільки константи цих процесів у значній мірі залежать від функції розподілу нейтронів та їх потоків. Дані проблеми потребують детальнішого розгляду, який проведемо в наступних роботах. Відповідно

$$\hat{n}_\xi^{\beta s}(\mathbf{r}_\xi) = \sum_{l=1}^{N_s} \delta(\mathbf{r}_l^\beta - \mathbf{r}_\xi) \quad (2.8)$$

- мікроскопічна густина числа молекул води, а також можливих іонів ( $\text{H}^+$ ,  $\text{OH}^-$ ) та радикалів.

$$D_{\xi f}^{\alpha a, \beta b}(\mathbf{r}_\xi, \mathbf{r}'_f; t, t') = \sum_{\gamma, c} \sum_{f'} \int_{V_{f'}} d\mathbf{r}''_{f'} \langle (1 - P_M) \hat{\mathbf{J}}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi) \times \\ \times T(t, t') (1 - P_M) \hat{\mathbf{J}}_{f'}^{\gamma c}(\mathbf{r}''_{f'}) \rangle_0 \left( \tilde{F}^{-1}(\mathbf{r}'', \mathbf{r}') \right)_{f' f}^{\gamma c, \beta b} \quad (2.9)$$

- узагальнені коефіцієнти дифузії заряджених силових центрів, зокрема  $D_{11}^{\alpha a, \beta b}$  - в ядерній магмі,  $D_{12}^{\alpha a, \beta b}$  - описує дифузію з ядерної магми у воду;  $D_{22}^{\alpha a, \beta b}$  - у воді, де

$$\hat{\mathbf{J}}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}) = \sum_{j=1}^{N_a} \mathbf{p}_j^\alpha \delta(\mathbf{r}_j^\alpha - \mathbf{r}_\xi) \quad (2.10)$$

є густиною імпульсу заряджених силових центрів у відповідній фазі  $\xi$ ,

$$P_M A = \sum_{\alpha, a} \sum_{\xi, \beta, b, f} \int d\mathbf{r}_\xi \int_{V_f} d\mathbf{r}'_f \langle A \hat{n}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}_\xi) \rangle_0 \left( \tilde{F}^{-1}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') \right)_{\xi f}^{\alpha a, \beta b} \hat{n}_f^{\beta b}(\mathbf{r}'_f) \quad (2.11)$$

- проєкційний оператор Морі,  $T_0(t) = \exp\{(1 - P_M) i L_N t\}$  - оператор еволюції в часі,  $i L_N$  - оператор Ліувіля, що відповідає гамільтоніану системи

$$H = \sum_a \sum_{\alpha, j}^{N_a, X_a} \frac{(p_j^\alpha)^2}{2m_a} + \frac{1}{2} \sum_{a, b} \sum_{\alpha, \beta} \sum_{i, j} \Phi_{ab}(\mathbf{r}_{ij}^{\alpha\beta}) + \sum_s \sum_{i=1}^{N_s} \frac{p_i^2}{2m_s} \quad (2.12) \\ + \frac{1}{2} \sum_{s, s'} \sum_{i, l} \Phi_{ss'}(\mathbf{r}_{il}) + \sum_a \sum_{\alpha, j}^{N_a, X_a} \sum_s \sum_{l=1}^{N_s} \Phi_{as}(\mathbf{r}_{jl}^\alpha) + \sum_{a, \alpha, j}^{N_a, X_a} \varphi_a^{(1)}(z_j^\alpha),$$

де  $\Phi_{ab}(\mathbf{r}_{ij}^{\alpha\beta})$  - потенціал взаємодії між зарядженими силовими центрами,  $\Phi_{as}(\mathbf{r}_{jl}^\alpha)$  - потенціал взаємодії між зарядженими силовими центрами і молекулами води (чи іонами  $\text{H}^+$ ,  $\text{OH}^-$ , або радикалами  $\text{HO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{H}_2$ ),  $\varphi_a^{(1)}(z_j^\alpha)$  - потенціал поверхні розподілу двох фаз “ядерна магма – вода”. Функції  $(\tilde{F}^{-1}(\mathbf{r}, \mathbf{r}'))_{\xi f}^{\alpha a, \beta b}$  є елементами матриці  $\tilde{F}^{-1}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ , оберненої до матриці  $\tilde{F}(\mathbf{r}, \mathbf{r}')$ , елементами якої є парні рівноважні функції розподілу заряджених силових центрів:

$$F_{\xi f}^{\alpha a, \beta b}(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \langle \hat{n}_\xi^{\alpha a}(\mathbf{r}) \hat{n}_f^{\beta b}(\mathbf{r}') \rangle_0. \quad (2.13)$$

Відповідно у рівняннях (2.1)-(2.3)  $D_{21}^{\alpha s, \beta b}$ ,  $D_{22}^{\alpha s, \beta b}$ ,  $D_{12}^{\alpha a, \beta s}$  є коефіцієнтами взаємної дифузії заряджених силових центрів ядерної магми і молекул води, іонів  $\text{H}^+$ ,  $\text{OH}^-$  і радикалів  $\text{H}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}_2$ ,  $\text{HO}_2$ . В підсистемі “вода” важливим є дослідження коефіцієнтів взаємної дифузії заряджених силових центрів ( $\text{UO}_2^{2+}$ ,  $\text{PuO}_2^{2+}$  та інших іонів) і молекул води, іонів  $\text{H}^+$ ,  $\text{OH}^-$  та радикалів  $D_{22}^{\alpha a, \beta b}$ ,  $D_{22}^{\alpha a, \beta s}$ , які входять у відповідні константи хімічних реакцій. Це важливо з точки зору дослідження гідратації іонів  $\text{UO}_2^{2+}$ ,  $\text{PuO}_2^{2+}$  при їх виході з ядерної магми у воду, оскільки при зростанні концентрацій урану та плутонію у воді (а це відбувається [16]), ураніл та плутоніл утворюють полімерні структури. З точки зору динаміки поведінка таких полімерних утворень при подальшому збільшенні концентрації урану та плутонію невідома. Таку інформацію можна отримати із рівнянь (2.1)-(2.3), розраховуючи узагальнені коефіцієнти дифузії (2.3) для системи “ядерна магма – вода”, враховуючи специфіку взаємодії середовища з водними розчинами. Важливим моментом при дослідженні та числових розрахунках коефіцієнтів дифузії  $D_{\xi f}^{\alpha a, \beta b}$ ,  $D_{\xi f}^{\alpha a, \beta s}$  у підсистемі “вода” є врахування її радіолізу внаслідок  $\alpha$ -,  $\beta$ -розпадів та  $\gamma$ -випромінювання.

Далі проведемо розрахунок коефіцієнтів дифузії для іонів використовуючи гаусове наближення. Для спрощення запису індекси  $\alpha$ ,  $\beta$ , які визначають силові центри у частинках, опустимо. Тоді, враховуючи симетрію задачі,  $D^{ab}$  можна представити:

$$D^{ab}(z_\xi, z'_f; t, t') = \lambda_0^{ab}(z_\xi, z'_f) \exp \left\{ -\frac{\bar{\lambda}_2^{ab}(z_\xi, z'_f)}{2!} (t - t')^2 \right\}, \quad (2.14)$$

$$\bar{\lambda}_2^{ab}(z_\xi, z'_f) = \frac{\lambda_2^{ab}(z_\xi, z'_f)}{\lambda_0^{ab}(z_\xi, z'_f)}, \quad (2.15)$$

де  $\lambda_0^{ab}(z_\xi, z'_f)$ ,  $\lambda_2^{ab}(z_\xi, z'_f)$  - нульовий та другий моменти функцій  $D^{ab}$ .

$$\lambda_0^{ab}(z_\xi, z'_f) = \sum_{f'=1}^2 \sum_c \int_{V_{f'}} dz''_{f'} \langle (1 - P_0) \hat{\mathbf{J}}^a(z_\xi) (1 - P_0) \hat{\mathbf{J}}^c(z''_{f'}) \rangle_0 \times \left( \tilde{F}^{-1}(z'', z') \right)_{\xi f}^{cb} = \frac{1}{m_a} K_B T f_\xi^a(z) \left( \tilde{F}^{-1}(z, z') \right)_{\xi f}^{ab}, \quad (2.16)$$

$$\lambda_2^{ab}(z_\xi, z'_f) = \sum_{f'=1}^2 \sum_c \int_{V_{f'}} dz''_{f'} \langle (1 - P_0) \hat{\mathbf{J}}^a(z_\xi) [(1 - P_0) iL_N]^2 \times (1 - P_0) \hat{\mathbf{J}}^c(z''_{f'}) \rangle_0 \left( \tilde{F}^{-1}(z'', z') \right)_{f' f}^{cb}. \quad (2.17)$$

$P_0$  - проєкційний оператор Морі, який діє на динамічні змінні:

$$P_0 A = \langle A \rangle_0 + \sum_{ab} \int dz_\xi dz'_f \langle A \hat{n}^a(z_\xi) \rangle_0 \left( \tilde{F}^{-1}(z, z') \right)_{\xi f}^{ab} \hat{n}^b(z'_f),$$

$iL_N$  - оператор Ліувіля для системи частинок, яка розглядається. Стосовно першої фази модельної системи ( $\xi = f$  моменти  $\lambda_0^{ab}$  записуються наступним чином:

$$\lambda_0^{aa} = \frac{1}{m_a} K_B T f^a(z) \left( \tilde{F}^{-1}(z, z') \right)^{aa}, \quad (2.18)$$

$$\lambda_0^{ab} = \frac{1}{m_a} K_B T f^a(z) \left( \tilde{F}^{-1}(z, z') \right)^{ab}, \quad (2.19)$$

$$\lambda_0^{ba} = \frac{1}{m_b} K_B T f^b(z) \left( \tilde{F}^{-1}(z, z') \right)^{ba}, \quad (2.20)$$

$$\lambda_0^{bb} = \frac{1}{m_b} K_B T f^b(z) \left( \tilde{F}^{-1}(z, z') \right)^{bb}, \quad (2.21)$$

а моменти  $\lambda_2^{ab}$  мають вигляд:

$$\lambda_2^{aa} = \int_V dz'' \left( \langle J^a(z) iL_N iL_N J^a(z'') \rangle_0 + \langle iL_N J^a(z) P_0 iL_N J^a(z'') \rangle_0 \right) \left( \tilde{F}^{-1}(z'', z') \right)^{aa},$$

$$\lambda_2^{ab} = \int_V dz'' \left( \langle J^a(z) iL_N iL_N J^b(z'') \rangle_0 + \langle iL_N J^a(z) P_0 iL_N J^b(z'') \rangle_0 \right) \left( \tilde{F}^{-1}(z'', z') \right)^{ab},$$

$$\lambda_2^{ba} = \int_V dz'' \left( \langle J^b(z) iL_N iL_N J^a(z'') \rangle_0 + \langle iL_N J^b(z) P_0 iL_N J^a(z'') \rangle_0 \right) \left( \tilde{F}^{-1}(z'', z') \right)^{ba},$$

$$\lambda_2^{bb} = \int_V dz'' \left( \langle J^b(z) iL_N iL_N J^b(z'') \rangle_0 + \langle iL_N J^b(z) P_0 iL_N J^b(z'') \rangle_0 \right) \left( \tilde{F}^{-1}(z'', z') \right)^{bb}.$$

Очевидно, задача звелась до розрахунку унарних функцій розподілу  $f^a(z)$  та величин  $F^{ab}(z, z')$ , які є засередненими по поверхні ядерної магми  $S$  бінарними функціями:

$$F^{ab}(z, z') = \int_S \int_S ds ds' F^{ab}(r, r').$$

Безперечно, що на основі системи рівнянь дифузії (2.1)-(2.3) можна промоделювати процеси виходу урану із ядерної магми у воду і його поведінки в ній. Однак це буде теоретична оцінка. Тому важливо здійснити прямий експеримент на об'єкті “Укриття” з дослідження процесів дифузії паливомістких лав, які взаємодіють безпосередньо з водою. Такі експериментальні результати були б добрими початковими даними для системи рівнянь дифузії (2.1)-(2.3) при подальшому прогнозуванні незворотніх ядерно-фізико-хімічних явищ в системі “ядерна магма – вода”.

В наступній частині ми розглянемо наближений розрахунок унарних функцій розподілу для системи “водний розчин радіоактивних елементів – склоподібне середовище”.

### 3. Структурні функції розподілу іонів для двофазної системи “водний розчин радіоактивних елементів – склоподібне середовище”

Розрахунок унарних, парних та вищих функцій розподілу іонів і молекул в багатофазних системах є однією із складних проблем сучасної статистичної рівноважної механіки. Один з потужних методів рівноважної статистичної теорії – метод колективних змінних [35] – дав можливість із розрахунку статистичної суми послідовно визначити [36,37] унарні та парні функції розподілу іонів та молекул для двофазної просторово-неоднорідної системи у вигляді групових розкладів через екрановані потенціали.

У даній роботі для якісних оцінок ми розглянемо спрощену модель “водний розчин – склоподібне середовище”, яка може бути досліджена різними методами.

Будемо вважати, що у воді радіоактивні елементи знаходяться у невеликих кількостях. В цій моделі іони радіоактивних елементів ( $\text{UO}_2^{2+}$ ,  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Sr}^{2+}$ ) розглядаються як заряджені тверді сфери, сумарний заряд яких скомпенсований згідно з умовою електронейтраль-

ності негативними  $\text{OH}^-$ -групами у континуальному середовищі з діелектричною проникністю  $\varepsilon = 81$  (вода).

Радіоактивні водні розчини в об'єкті "Укриття" здебільшого знаходяться в контактi з ядерною магмою, бетоном, глиною та різними конструкційними матеріалами. Для прогнозування процесів руйнування та дослідження дифузії радіоактивних частинок необхідно знати структуру розчину біля цих середовищ. Ця задача зводиться до розгляду описаної вище моделі розчину біля твердої стінки, яка, як і розчинник, є континуальним середовищем з діелектричною проникністю  $\varepsilon = 1 \div 15$  (склоподібне середовище, глина, бетон). При такому підході на унарні функції розподілу чинять вплив як ефекти структурного впорядкування, зумовлені власними розмірами та наявністю поверхні, так і ефекти електростатичних відображень, які на близьких відстанях особливо інтенсивні. Проте послідовне їх врахування є досить складною задачею. Для цього було використано перше рівняння ланцюжка ББГКІ, модифіковане для опису зарядів-відображень. Останні вважаються фіктивними зарядженими частинками в середовищі стінки (склоподібне середовище, бетон, глина, об'єм  $V'$ ) з зарядами  $\frac{\varepsilon_p - \varepsilon_c}{\varepsilon_p + \varepsilon_c} Z_i e$  і розмірами  $\sigma_i$ , де  $Z_i e$  і  $\sigma_i$  - заряди й розміри іонів у розчині (об'єм  $V$ ). Застосувавши метод, викладений в [38], ми отримали таке рівняння:

$$\begin{aligned} & \frac{df_a(z_1)}{dz_1} + \frac{dU_1^a(z_1)}{dz_1} f_a(z_1) \\ & + \sum_c \rho_c \int_V d\mathbf{r}_{2c} \frac{\partial}{\partial z_1} (U_{\text{hs}}^{ac}(r_{12}) + U_C^{ac}(r_{12})) F_{ac}(z_{1a}, z_{2c}, r_{2c}) \\ & + \sum_c \rho'_c \int_{V'} d\mathbf{r}'_{2c} \frac{\partial}{\partial z_1} U_{\text{im}}^{ac}(r'_{12}) F'_{ac}(z_{1a}, z'_{2c}, r'_{2c}) = 0, \end{aligned} \quad (3.1)$$

де  $f_a(z_1)$ ,  $U_1^a(z_1)$  - унарна функція розподілу і потенціал взаємодії іона сорту  $a$  зі стінкою;  $F_{ac}$ ,  $U_{\text{hs}}^{ac}$ ,  $U_C^{ac}$ ,  $U_{\text{im}}^{ac}$  - бінарна функція розподілу для частинок сортів  $a$ ,  $c$ , а також потенціали твердих сфер, кулонівської взаємодії між іонами та між іонами й зображеннями відповідно;  $\rho_c$ ,  $\rho'_c$  - густина іонів сорту  $c$  та їхніх зображень. Легко бачити, що другий інтегральний доданок рівноправно враховує вплив зображень. Однак при невеликих концентраціях інтегральні доданки малі (парна кореляція незначна) і розподіл іонів біля поверхні визначається потенціалом  $U_1^a(z_1)$ , який доцільно вибрати як екранований потенціал. Для точкових частинок біля твердої поверхні проблема знаходження екранованого потенціалу розв'язана строго аналітично [49,50]. У випадку іон-іонної взаємодії результат

наступний:

$$g(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2) = \mp \frac{Z_1 Z_2 e^2}{\varepsilon_p} \left\{ \frac{e^{-\kappa r_{12}}}{r_{12}} + \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_c}{\varepsilon_p + \varepsilon_c} \frac{e^{-\kappa r'_{12}}}{r'_{12}} \right\}, \quad (3.2)$$

де  $r_{12}$  - віддаль між іонами,  $r'_{12}$  - між першим іоном та зображенням 2-го іона. Очевидно, що потенціал складається з об'ємної частини, залежної від  $r_{12}$ , і поверхневої. Задача знаходження об'ємного екранованого потенціалу для довільної кількості іонів різних розмірів і валентності розв'язана у [39]. Ми скористалися його результатом для невеликих концентрацій з огляду на те, що потенціал неоднорідної системи виражається через об'ємні, як це видно з (3.2). Отже

$$U_1^a(z_1) = \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_c}{\varepsilon_p + \varepsilon_c} \frac{(Z_1^a e)^2}{\varepsilon_p} \frac{1}{2z} \left[ \frac{2\Gamma}{\kappa} \right]^2 \exp\{-2\Gamma(2z - \sigma_a)\}, \quad z > \sigma_a/2, \quad (3.3)$$

де  $2\Gamma$ - новий радіус екранування, який визначається з наступної системи рівнянь:

$$\begin{aligned} 4\Gamma^2 &= \frac{e^2}{\varepsilon_p} \sum_a \rho_a X_a^2, \quad X_a = \frac{Z_a - \frac{\pi}{2} \frac{\sigma_a^2}{1-\eta} P_m}{1 + \Gamma \sigma_a}, \\ P_m &= \frac{\sum_a \frac{\rho_a \sigma_a Z_a}{1 + \Gamma \sigma_a}}{1 + \frac{\pi}{2(1-\eta)} \sum_a \frac{\rho_a \sigma_a^3}{1 + \Gamma \sigma_a}}, \quad \eta = \frac{\pi}{6} \sum_a \rho_a \sigma_a^3, \quad \rho_a = N_a/V, \end{aligned}$$

де  $a$  нумерує радіоактивні іони, включаючи сорт негативно заряджених  $\text{OH}^-$ -груп, густина яких вибирається згідно умови загальної електронейтральності системи

$$\sum_a \rho_a Z_a^2 = 0. \quad (3.4)$$

Тоді розв'язок (3.1) з умовою  $f_a(\infty) = 1$  буде:

$$f_a(z) = \exp(-U_1^a(z)). \quad (3.5)$$

На рисунках 1, 2, 3 наведено унарні функції для іонів  $\text{UO}_2^{2+}$ ,  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Sr}^{2+}$ , розраховані за формулою (3.5) для різних концентрацій. Бачимо, що при малих концентраціях радіоактивних елементів вплив стінки значний навіть на великих відстанях, в той час як при більших концентраціях завдяки укрануванню система швидше набуває



об'ємних властивостей. Крім того, у випадку малих концентрацій поведінка іонів визначається лише їхніми валентностями – криві для двовалентних уранілу й стронцію співпадають і відрізняються від одновалентного цезію. При вищих концентраціях суттєвими стають розміри іонів – ураніл і стронцій набувають індивідуальних рис розподілу на межі “водний розчин – склоподібне середовище”.

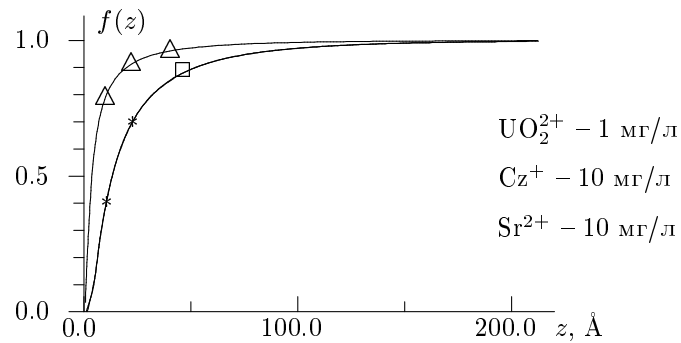


Рис. 1: Функції розподілу радіоактивних частинок біля межі “склоподібне середовище – ядерна магла”. Лінії позначені: \* для  $\text{UO}_2^{2+}$ ,  $\Delta$  для  $\text{Cs}^+$ ,  $\square$  для  $\text{Sr}^{2+}$ .

В наступних роботах ми проведемо розрахунки коефіцієнтів дифузії в системі “водний розчин радіоактивних елементів – склоподібне середовище”, використовуючи модельні розрахунки унарних функцій розподілу.

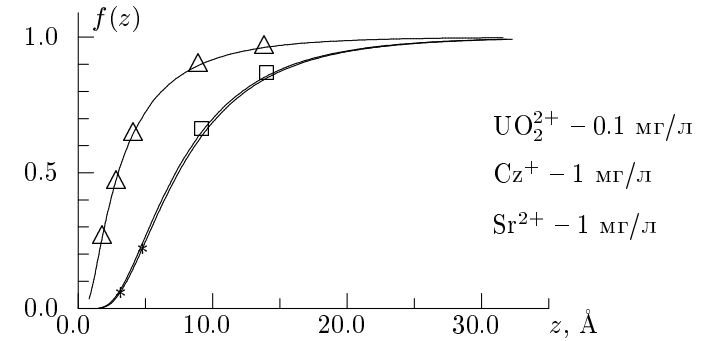


Рис. 2: Те ж саме, що й на рисунку 1, але для інших концентрацій.

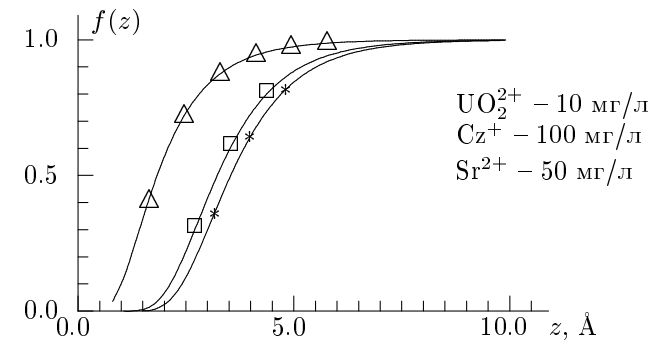


Рис. 3: Те ж саме, що й на рисунку 1, але для інших концентрацій.

## Література

- [1] Боровой А.А., Галкин Б.Я. и др. Новообразованные продукты взаимодействия топлива с конструкционными материалами 4-го блока Чернобыльской АЭС. // Радиохимия, 1990, No 6, с. 103-113; 1991, No 4, с. 177-196.

- [2] Андерсон Е.Б., Бураков Б.Е., Пазухин Э.М. Вторичные изменение топливосодержащих масс (ТСМ) 4-го блока Чернобыльской АЭС. // Радиохимия, 1992, No 5, с. 135-138.
- [3] Андерсон Е.Б., Боровой А.А., Бураков Б.Е., Криницын А.П., Пазухин Э.М., Чечеров К.П. Техногенные продукты взаимодействия ядерного топлива и конструкционных материалов, образовавшиеся в результате аварии на Чернобыльской АЭС. // Радиохимия, 1992, No 5, с. 144-155.
- [4] Пазухин Э.М. Лавообразные топливосодержащие массы 4-го блока Чернобыльской АЭС: Топография, физико-химические свойства, сценарий образования. // Радиохимия, 1994, том 34, No 2, с. 97-142.
- [5] Абалін С.С., Бар'яхтар В.Г., Беляев С.Т., Боровой О.О. та інш. Забезпечення екологічної безпечності об'єкта "Укриття" (Дослідження 1990-1991 рр.). // ДАН України, 1994, No 1, с. 116-121.
- [6] Боровой А.А. Чернобыльский "Саркофаг". // Природа, 1994, No 4, с. 62-70.
- [7] Киселев А.Н., Ненагляднов А.Ю., Сурин А.И. и др. Экспериментальные исследования лавообразных топливосодержащих масс (ТСМ) на 4-м блоке ЧАЭС. Москва, 1992, 120 с. (Препринт ИЭА- 5533/3).
- [8] Киселев А.Н., Ненагляднов А.Ю., Сурин А.И. и др. Экспериментальные исследования лавообразных топливосодержащих масс (ТСМ) на 4-м блоке ЧАЭС. Москва, 1992, 120 с. (Препринт ИЭА- 5533/3).
- [9] Киселев А.Н., Сурин А.И., Чечеров К.П. Результаты дополнительных исследований мест скопления лавообразных топливосодержащих масс на 4-м блоке ЧАЭС. Москва, 1994, 59 с. (Препринт ИЭА-5783/3).
- [10] Юхновський І.Р., Токарчук М.В. Проблеми 4-го енергоблоку Чернобыльської АЕС. І. Огляд. Львів, 1995, 40с. (Препринт ІФКС-95-3У)
- [11] Отработка методик радиохимического выделения урана из образцов ТСМ и проведение масс-спектроэлектрических измерений изотопного состава урана с целью прямого определения выгорания ядерного топлива, содержащегося в ТСМ. Отчет. Инв. No 11.07/118 от 12.03.1991. Институт Атомной энергии им. И.В.Курчатова, 1991, 21 с.
- [12] Отчет о научно-исследовательской работе "Обоснование ядерной безопасности объекта "Укрытие" на основе исследования динамики аварийных процессов". Инв. No 1515, Минск, 1991.
- [13] Расчетно-экспериментальные исследования характеристик нейтронных полей в местах скопления лавообразных топливосодержащих масс в помещениях 305/2 и 304/2 объекта "Укрытие". Отчет. Минск, 1994, 77 с.
- [14] Годовой отчет отдела разработки методик и систем анализа отделения радиационных технологий и материаловедения. МНТЦ НАНУ "Укрытие", 1994, 44 с.
- [15] Результаты работ проведенных в отделе радиационного Мониторинга

- "Укрытие" в 1994 году. Отчет ОЯРБ. Чернобыль, 1994, 149 с.
- [16] Основные научно-технические результаты, полученные в ОЯРБ в 1994 г. Чернобыль, 1994, 137 с.
- [17] О работе отдела аварийных процессов (ОАП) ОРТИМ МНТЦ НАНУ "Укрытие". Отчет за 1994 г. Чернобыль, 1994, 134 с.
- [18] Обзор свойств ТСМ в "Укрытии". Отчет ОРТИМ ОРТ МНТЦ "Укрытие". НАНУ-Чернобыль, 1994, 100 с.
- [19] Результаты обследования скоплений воды в помещениях объекта "Укрытие". Предложения контрмер. Отчет. Чернобыль, 1993, 16 с.
- [20] Сбор, обработка и обобщение данных по сценарию процесса образования лавообразных топливосодержащих масс 4-го блока ЧАЭС. Заключительный отчет по договору 180/94 от 09.94. НПО "Радиового института им. В.Г.Хлопина". Санкт-Петербург-Чернобыль, 1995, 160 с.
- [21] Бадовський В.П., Дубар Л.В., Шевченко С.В. Про проблему ядерної небезпеки ПВМ при перетворенні об'єкту "Укриття". МНТЦ НАНУ "Укриття", 1995, 17 с.
- [22] Моделирование химического взаимодействия топливосодержащих масс с водой и атмосферой в объекте "Укрытие". Аннотированный отчет. Чернобыль, 1994, 6 с.
- [23] Акт об определении радионуклидного состава проб воды из помещений объекта "Укрытие" 23.02.1995. Чернобыль, 1995, 2 с.
- [24] Техническое обоснование ядерной безопасности объекта "Укрытие". Под ред. С.Т.Беляева, А.А.Борового, К.Г.Волкова и др. М., Чернобыльская КЭ при ИАЭ им. И.В.Курчатова, 1990, 160 с.
- [25] Оценка вклада ( $\alpha, n$ ) реакций в интенсивность нейтронов, генерируемых в ЛТСМ в помещениях 305/2 объекта "Укрытие". Техническая справка. Минск, 1995, (НПЦ "Камертон"), с. 1-6.
- [26] Расчет характеристик нейтронных полей для моделей ТСМ в Центральном зале объекта "Укрытие" и их изменений при заливе ТСМ водой. Минск, 1995, (НПЦ "Камертон"), 5с.
- [27] Гегузин Я.Е., Кривоглаз М.А. Движение макроскопических включений в твердых телах. - М., Металлургия, 1971, 344 с.
- [28] Давыдов Ю.П. Состояние радионуклидов в растворах. Минск, Наука, техника, 1978, 223 с.
- [29] Сиборг Г.Т., Кац Дж.Дж. Химия актинидных элементов. М., Атомиздат, 1960, 541 с.
- [30] Фельц А. Аморфные и стеклообразные неорганические твердые тела. М., Мир, 1986, 556 с.
- [31] Белоусов Ю.А., Пушкарев М.В. О расчете вязкости стеклообразующих силикатных материалов в широких диапазонах составов. // Физ. и хим. стекла, 1994, том 20, No 3, с. 349-360.
- [32] Стефановский С.В., Иванов И.А., Гулин А.Н. Структура стекол на алюмофосфатной основе, имитирующих остеклованные радиоактивные отходы по данным ИК и ЭПР спектроскопии. // Физ. и хим.

- стекла, 1994, том 20, No 2, с. 154-162.
- [33] Куриляк І.Й., Токарчук М.В. Статистична теорія процесів переносу розчинів електролітів крізь мембранні структури. // Укр. фіз. журн., 1991, том 36, No 8, с. 1179-1185.
- [34] Токарчук М.В., Омелян І.П., Желем Р.І. До статистичної теорії процесів переносу розчинів електролітів крізь мембранні структури. Коefіцієнти дифузії. // Фізика конд. сист., 1993, No 2, с. 94-102.
- [35] Юхновский И.Р., Головкин М.Ф. Статистическая теория классических равновесных систем. К., Наукова думка, 1980, 372 с.
- [36] Курьяк И.И. Равновесная статистическая теория и мембранные процессы разделения электролитов. Киев, 1983, 26 с. (Препринт института теоретической физики АН Украины, ИТФ-82-130Р).
- [37] Юхновский И.Р., Головкин М.Ф., Савьяк Н.Е. Экранированные потенциалы пространственно-неоднородных ионно-молекулярных систем. Киев, 1982, 18 с. (Препринт института теоретической физики АН Украины, ИТФ-82-159Р).
- [38] Боголюбов Н.Н. Проблемы динамической теории в статистической физике. В кн.: Боголюбов Н.Н. Избранные труды в трех томах, том 2. Киев, Наукова думка, 1970, с. 99.
- [39] Blum L. Mean spherical model for asymmetric electrolytes I. Method of solution. // Mol. Phys., 1975, vol. 30, No 5, p. 1529-1535.
-

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/>)

Ігор Рафаїлович Юхновський  
Ростислав Іванович Желем  
Ігор Петрович Омелян  
Євген Миколайович Сов'як  
Михайло Васильович Токарчук

ПРОБЛЕМИ ОПИСУ ЯДЕРНО-ФІЗИКО-ХІМІЧНИХ ПРОЦЕСІВ У ЯДЕРНІЙ  
МАГМІ В ОБ'ЄКТІ “УКРИТТЯ” II. ОПИС ПРОЦЕСІВ ДИФУЗІЇ В  
СИСТЕМІ “ЯДЕРНА МАГМА – ВОДА”.

Роботу отримано 24 квітня 1996 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