

ОСОБЛИВОСТІ ПЕРЕНОСУ РАДІОАКТИВНИХ ЧАСТИНОК В ПРОЦЕСАХ ПОЛЕГШЕНОЇ ДИФУЗІЇ

Представлено результати дослідження процесів дифузії радіоактивних частинок з урахуванням явища полегшеної дифузії (у тому числі й радіаційно-стимульованої) виходячи з фундаментальних співвідношень нерівноважної статистичної термодинаміки. Досліджено вплив ентропійних внесків, пов'язаних із появою нових радіоактивних частинок у системі, на характер дифузійних потоків. Визначено величину дифузійного потоку радіоактивних речовин для плоскопаралельного шару, обмеженого напівпроникними стінками, що може слугувати моделлю утворення радіоактивно-забруднених вод за рахунок дифузії радіоактивних нуклідів при їхньому вимиванні із твердих радіоактивних відходів та залишків пального. Проведено якісну оцінку можливого впливу радіаційно-індукованих змін рівноважних та нерівноважних властивостей рідинної системи у випадку зовнішнього інтенсивного радіаційного опромінення на коефіцієнт дифузії радіоактивних частинок та величину дифузійного потоку.

Ключові слова: дифузія радіоактивних частинок, полегшена дифузія, радіаційне опромінення.

Сьогодні актуальним питаннями є розробка нових технологій зберігання радіоактивних відходів [1, 2] та побудова захисних споруд (наприклад, нового безпечного конфайнмента [3] на ЧАЕС) для скупчень радіаційно-забруднених матеріалів. Проводяться інтенсивні роботи зі створення ядерних енергетичних установок нового покоління [4], зокрема рідкосольових ядерних реакторів [5]. Зазначені задачі вимагають подальшого розвитку радіаційної фізики й радіаційного матеріалознавства. Насамперед, це обумовлено іншими фізичними процесами, що відбуваються в рідинних системах у умовах радіаційного опромінення, і, як наслідок, необхідністю мати можливість передбачити поведінку рідин за наявності зовнішнього радіаційного опромінення та необхідністю використання якісно інших конструкційних матеріалів.

Задачі, що виникають при розробці нових технологій, пов'язаних із радіоактивними матеріалами, призводять до необхідності вивчення нерівноважних процесів, що відбуваються в рідинних системах, зокрема процесів стаціонарної та нестаціонарної дифузії радіоактивних матеріалів (наприклад, [6]). Важливо зазначити, що нерівноважні процеси є чутливими до наявності зовнішніх полів та радіаційного опромінення. Зокрема, радіаційне опромінення конденсованого середовища призводить до помітної зміни рівноважних і нерівноважних термодинамічних властивостей, а також структурних властивостей рідинних систем [7 - 9]. Таким чином, наявність інтенсивного радіаційного фону може суттєво вплинути на особливості динаміки дифузійних процесів.

У даній роботі проведено обчислення дифузійних потоків радіоактивних частинок з урахуванням явища полегшеної дифузії (у тому числі й радіаційно-стимульованої) у рамках моделі ідеального розчину. Вибір моделі обумовлений необхідністю виділення внеску ентропійних факторів, обумовлених саме появою нових компонентів розчину під впливом інтенсивного радіаційного опромінення.

Теоретична модель

Розглянемо рідку або газову n -компонентну систему, в якій можуть відбуватися процеси дифузії та хімічні реакції. Будемо вважати, що система знаходиться далеко від границь стійкості (тобто виключимо з розгляду область, в якій рівняння дифузії стають нелокальними з пам'яттю [10, 11]), крім того, припустимо, що на систему не діють зовнішні поля. У цьому випадку для обчислення потоку радіоактивної речовини \vec{J}_k необхідно записати загальне рівняння дифузії. Як відомо [12], воно базується на законі збереження маси, який має вигляд

$$\rho \frac{\partial c_k}{\partial t} = -\rho \vec{v} \vec{\nabla} c_k - \vec{\nabla} \vec{J}_k + \sum_{i=1}^r M_k \nu_{ki} J_i, \quad (1)$$

де $\vec{J}_k = \rho_k (\vec{v}_k - \vec{v})$ - дифузійний потік k -го компонента відносно центра мас; \vec{v} - масова швидкість; \vec{v}_k - масова швидкість k -го компонента; J_i - локальна швидкість i -ї хімічної реакції; ν_{ki} - стехіомет-

ричний коефіцієнт; r - кількість хімічних реакцій; $\mu_k = \mu_k(\rho, T, c_1, \dots, c_{n-1})$ - хімічний потенціал k -го компонента, який є функцією тиску, температури T та концентрацій $c_k = \frac{\rho_k}{\rho}$; ρ - повна масова густина системи; t - час; M_k - молярна маса k -го компонента.

Це рівняння необхідно доповнити матеріальними рівняннями замикання, які за умови відсутності зовнішніх полів установлюють зв'язок між градієнтами хімічних потенціалів та породженими ними термодинамічними потоками. Їх, разом із рівнянням стану багатокомпонентного розчину, використовують для замикання системи рівнянь термодинаміки нерівноважних процесів. Виходячи з отриманої системи рівнянь, можливо коректним чином записати рівняння дифузії, яке б враховувало усі можливі чинники, що впливають на процес дифузії.

Для дифузійних потоків J_k можна використати емпіричний закон, який підтверджується методами нерівноважної статистичної механіки [12]:

$$\vec{J}_k = -\sum_{i=1}^n L_{ki} \vec{\nabla} \mu_i - L_{kq} \vec{\nabla} T, \quad (2)$$

де $\mu_i = \mu_i(\rho, T, c_1, \dots, c_{n-1})$ - хімічний потенціал i -го компонента; $L_{ki} = L_{ki}(\rho, T, c_1, \dots, c_{n-1})$ та $L_{kq} = L_{kq}(\rho, T, c_1, \dots, c_{n-1})$ - відповідні кінетичні коефіцієнти.

У змінних ρ, T, c_i вираз (2) можна подати у вигляді

$$\vec{J}_k = -D_k \vec{\nabla} c_k - \sum_{i=1}^n \sum_{\substack{j=1 \\ i \neq k}}^n L_{ki} \left[v_i \frac{\partial \rho}{\partial c_j} + kT \left(\frac{\delta_{ij}}{c_i} + \frac{1}{\gamma_i} \frac{\partial \gamma_i}{\partial c_j} \right) \right] \vec{\nabla} c_j - \sum_{i=1}^n L_{ki} v_i \frac{K_T}{\rho} \vec{\nabla} \rho - D_T \vec{\nabla} T. \quad (3)$$

У виразі (3) для потоку коефіцієнт, що стоїть перед градієнтом концентрації k -го компонента, є, за визначенням, коефіцієнтом дифузії D_k k -го компонента:

$$D_k = \sum_{\substack{j=1 \\ i \neq k}}^n L_{ki} \left[v_i \frac{\partial \rho}{\partial c_k} + kT \left(\frac{\delta_{ik}}{c_k} + \frac{1}{\gamma_i} \frac{\partial \gamma_i}{\partial c_k} \right) \right]. \quad (4)$$

При одержанні цих виразів було враховано, що залежність похідних термодинамічних величин у виразі (3) від польових змінних ρ, T, c_i визначається шляхом експериментальних досліджень чи теоретичних розрахунків. Так, $\frac{\partial \mu_i}{\partial \rho} = -v_i$ - парціальний мольний об'єм, який, наприклад, у бінар-

ній суміші можна визначити за відомим методом Розебома, а $\frac{\partial \mu_i}{\partial T} = -s_i$ - парціальна мольна ентропія

i -го компонента. Крім того, для визначення похідних $\frac{\partial \mu_i}{\partial c_j}$ було використано загальний вираз для хі-

мічного потенціалу

$$\mu_i = \mu_i(\rho, T, c_1, \dots, c_n) = \mu_{i0}(\rho, T) + kT \ln c_i \gamma_i(\rho, T, c_1, \dots, c_n), \quad (5)$$

де μ_{i0} - хімічний потенціал чистої речовини; γ_i - активність i -го компонента.

Очевидно, що у виразі (5) перший доданок відповідає закону Фіка з $D_k = D_k(T, \rho, c)$.

Підставляючи остаточний вираз для потоку (3) в закон збереження маси у вигляді (1), можна отримати загальне рівняння дифузії в системі з хімічними реакціями.

Отримане рівняння (3), записане для концентрації $x_k = \frac{N_A m}{M_k \sum_{i=1}^n N_i} c_k$, вираженої в мольних ча-

стках, є найбільш загальним виразом, що дозволяє розрахувати дифузійний потік радіоактивної речовини в загальному випадку за наявності хімічних реакцій та відсутності зовнішніх полів.

Стаціонарна дифузія у плоскопаралельній порі

Застосуємо отримане загальне рівняння для опису процесу дифузії радіоактивної речовини у плоскопаралельному шарі речовини, обмеженому напівпроникними стінками. Така модель адекватно описує процеси утворення радіоактивно-забруднених вод за рахунок дифузії радіоактивних нуклідів при їхньому вимиванні із твердих радіоактивних відходів та залишків пального. У системі можливе протікання зворотних хімічних реакцій, інформацію про ці реакції врахуємо за допомогою коефіцієнта активності γ_i . Таке врахування хімічних реакцій дозволяє не розглядати в явному вигляді доданок

$$\frac{1}{T} \sum_{i=1}^r \sum_{k=1}^n J_i \nu_{ki} \mu_k. \quad (6)$$

Розглянемо процес дифузії у плоскопаралельній мембрані товщиною l , обмеженій напівпроникними стінками, між якими знаходиться n -компонентний розчин, в якому відсутній градієнт температури. Уведемо систему координат таким чином, щоб вісь OZ була перпендикулярна поверхням, що обмежують систему, причому ці поверхні мають координати 0 та l . У стаціонарному випадку

$$\frac{dJ_1}{dt} = 0. \quad (7)$$

Крізь мембрану дифундує лише одна речовина, позначимо її відповідні термодинамічні змінні індексом «1».

Оскільки всі інші речовини весь час залишаються в мембрані, то їхні потоки тотожно дорівнюють нулю. Крім того, вважатимемо, що в системі підтримується градієнт концентрації першої речовини, а саме на границях системи концентрація субстрату підтримуються сталою, і граничні умови мають вигляд

$$\begin{cases} x_1(z=0) = x_0 \\ x_1(x=l) = x_l \end{cases}, \quad (8)$$

причому $x_0 > x_l, x_l \neq 0$.

Стаціонарність процесу дифузії дозволяє коректним чином знизити порядок диференціального рівняння, що описує процес дифузії, на одиницю. Крім того, в запропонованій моделі можна не враховувати перехресні векторні ефекти, такі як термодифузія, оскільки для рідких систем вони на кілька порядків менші за прямі ефекти [13]. У цьому випадку процес дифузії йде виключно за рахунок градієнтів хімічних потенціалів компонентів, тому в матриці феноменологічних коефіцієнтів L_{ik} можна знехтувати всіма недіагональними елементами, а діагональні позначити L_i .

Оскільки дифузія розглядається на мембрані з напівпроникними стінками, то в такій системі обов'язково повинні виникати осмотичні явища, тобто необхідно враховувати зміну хімічних потенціалів залежно від тиску. Ці осмотичні явища (градієнт тиску, що виникає в системі) дозволяють пояснити механізм відсутності дифузії речовин, що знаходяться між напівпроникними стінками мембрани, за наявності між ними градієнту концентрації.

Таким чином, можна отримати систему рівнянь для потоків J_k , що описують процес дифузії в рамках запропонованої моделі. Її розв'язок за умови відомого зв'язку між хімічними потенціалами та концентраціями й тиском однозначно описує процес дифузії.

Розглянемо випадок, коли дифузія відбувається в бінарній системі. У цьому випадку всередині плоскопаралельного шару знаходяться тільки один тип радіонуклідів, що дифундує від твердих радіоактивних відходів до поверхні системи (резервуару), та носій, який зумовлює існування процесу так званої полегшеної дифузії. Тоді відповідну систему рівнянь можна остаточно записати у вигляді

$$\left\{ \begin{aligned} J_1 &= -2kL_1 \frac{dx_1}{dz} \left[\frac{1}{x_1} + \frac{\partial}{\partial x_1} \ln \gamma_1 \right] + \frac{\nu_{10} + kT \frac{\partial}{\partial p} \ln \gamma_1}{\nu_{20} + kT \frac{\partial}{\partial p} \ln \gamma_2} \left[\frac{1}{1-x_1} - \frac{\partial}{\partial x_1} \ln \gamma_2 \right] \\ \frac{dx_2}{dz} &= -\frac{dx_1}{dz} \\ \frac{dp}{dz} &= -\frac{2kT \left[\frac{\partial}{\partial x_1} \ln \gamma_2 - \frac{1}{1-x_1} \right]}{\nu_{20} + kT \frac{\partial}{\partial p} \ln \gamma_2} \frac{dx_1}{dz} \end{aligned} \right. , \quad (9)$$

де $\nu_{10} = \left(\frac{\partial \mu_{i0}}{\partial p} \right)_{T, x_1, \dots, x_n}$ – об’єм чистої рідини, що припадає на одну частинку.

Порівнюючи перше рівняння системи (9) із законом Фіка, для коефіцієнта дифузії $D(T, p, x_1)$ у даному випадку можна записати

$$D(T, p, x_1) = 2kL_1 \left\{ \left[\frac{1}{x_1} + \frac{\partial}{\partial x_1} \ln \gamma_1 \right] + \frac{\nu_{10} + kT \frac{\partial}{\partial p} \ln \gamma_1}{\nu_{20} + kT \frac{\partial}{\partial p} \ln \gamma_2} \left[\frac{1}{1-x_1} - \frac{\partial}{\partial x_1} \ln \gamma_2 \right] \right\}. \quad (10)$$

Отримана формула для коефіцієнта дифузії вказує на суттєву його залежність від термодинамічних параметрів системи та її термічного рівняння стану. Важливо відзначити, що ця залежність є суттєвою навіть у випадку врахування виключно ентропійних внесків у термодинамічний потенціал бінарної системи. Це добре видно, зокрема, з аналізу даних, наведених на рис. 1, де представлено концентраційну залежність безрозмірного коефіцієнта дифузії $\frac{D}{2kL_1}$ для ідеального розчину за різних

значень співвідношення $\frac{\nu_{10}}{\nu_{20}}$.

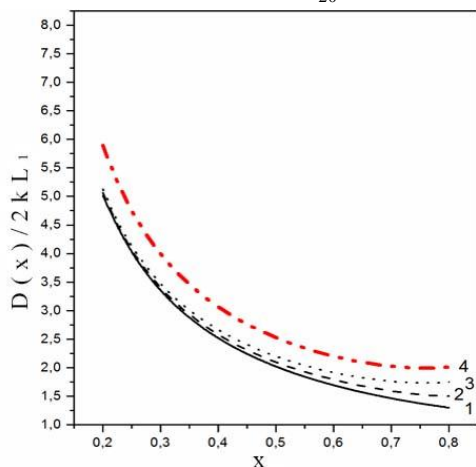


Рис. 1. Концентраційна залежність нормованого коефіцієнта дифузії для ідеального розчину за різних значень співвідношення $\frac{\nu_{10}}{\nu_{20}}$: 1 – $\frac{\nu_{10}}{\nu_{20}} = 10^{-2}$; 2 – $\frac{\nu_{10}}{\nu_{20}} = 5 \cdot 10^{-2}$; 3 – $\frac{\nu_{10}}{\nu_{20}} = 10^{-1}$; 4 – у випадку наявності радіаційного опромінення (якісна оцінка) для $\frac{\nu_{10}}{\nu_{20}} = 10^{-1}$.

Як можна бачити з наведених на рис. 1 даних, навіть для ідеального розчину спостерігається значна концентраційна залежність коефіцієнта дифузії (зменшення в обраному діапазоні концентрацій приблизно в 5 разів).

На рис. 2 наведено експериментальну концентраційну залежність коефіцієнта дифузії в бінарному розчині [14]. Порівняння наведених даних указує на якісний збіг концентраційної поведінки коефіцієнта дифузії, виміряного експериментально та обчисленого теоретично.

На рис. 3 наведено залежність коефіцієнта самодифузії води, що опромінюється потоком α -частинок, від енергії опромінення [15]. Аналіз наведених на рис. 3 даних свідчить про те, що радіаційно-індукована зміна рівноважних та нерівноважних властивостей рідинної системи призводить до зростання коефіцієнта самодифузії із збільшенням енергії α -частинок. Так, для енергій α -частинок

0,25 кеВ зростання становить порядку 20 %. Це дозволяє нам зробити припущення про те, що при дифузії радіоактивних частинок, особливо за наявності зовнішнього інтенсивного радіаційного опромінення, відповідний коефіцієнт дифузії може зростати. Якісна оцінка цієї зміни наведена на рис. 1 (крива 4).

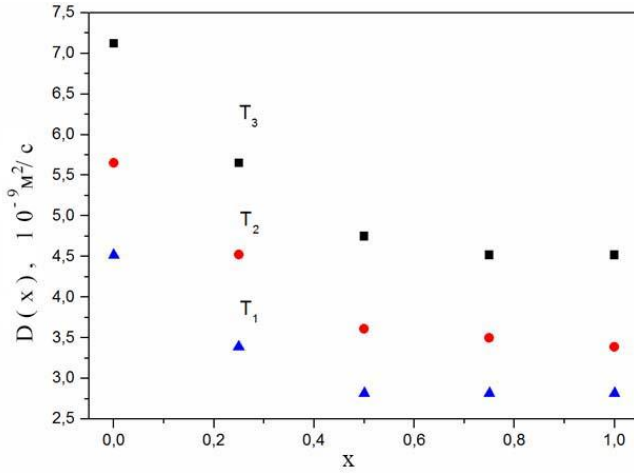


Рис. 2. Концентраційна залежність коефіцієнта дифузії в бінарному розчині толуол-н-гексан за різних температур.

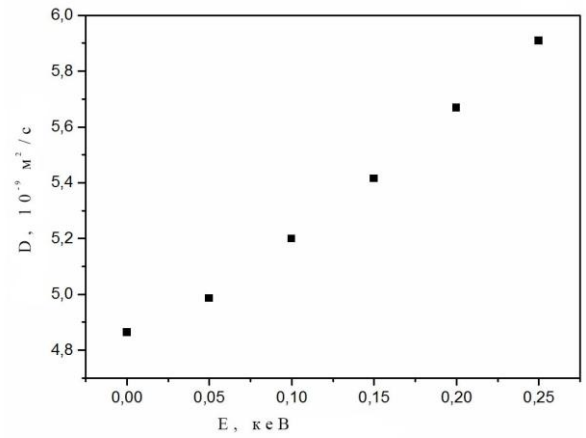


Рис. 3. Залежність коефіцієнта самодифузії води від енергії налітаючих α -частинок.

Отримана формула для коефіцієнта дифузії вказує на його суттєву залежність від концентрації розчину, яка визначається в основному термічним рівнянням стану системи. Крім того, використовуючи перше рівняння системи (9), можна проводити обчислення потоку речовини та виробництва ентропії в бінарному розчині у плоскопаралельній порі, конкретизувавши за допомогою коефіцієнта активності характер взаємодії між частинками розчину (тобто тип розчину) та характер можливих хімічних реакцій.

Стаціонарна дифузія в ідеальному розчині

Розглянемо випадок, коли розчин є ідеальним, тобто коефіцієнт активності тотожно дорівнює одиниці. У рамках цієї моделі вважається, що при змішуванні внесок ентропійних факторів у термодинамічні потенціали домінує над енергетичними, якими можна знехтувати. Тоді інтегрування системи рівнянь (9) з граничними умовами (8) дозволяє отримати вираз для стаціонарного потоку радіоактивних частинок J_1 :

$$J_1 = -\frac{2kL_1}{l} \left(\ln \frac{x_l}{x_0} - \frac{v_{10}}{v_{20}} \ln \frac{1-x_l}{1-x_0} \right). \quad (11)$$

На рис. 4 та 5 наведено залежності нормованого потоку радіоактивної речовини, що дифундує крізь систему, від різниці концентрацій на границях системи $x_0 - x_l$ за різних значень співвідношення парціальних об'ємів компонентів розчину та за двох різних значень x_l .

Наведені результати свідчать про значну нелінійність залежності потоку від величини $x_0 - x_l$. Нагадаємо, що ці результати було отримано у випадку ідеального розчину, тобто з урахуванням лише ентропійного внеску в зміну термодинамічного потенціалу при змішуванні. Підкреслимо, що отримане відхилення від лінійності зумовлене врахуванням залежності коефіцієнта дифузії від польових змінних.

Аналіз представлених результатів вказує на те, що за малих значень величини $x_0 - x_l$ ($x_0 - x_l < 0.01$ для даних, наведених на рис. 4, та $x_0 - x_l < 0.1$ для даних, наведених на рис. 5) спостерігається практично лінійна залежність потоку, але зі зростанням $x_0 - x_l$ залежність $J_1(x_0 - x_l)$ суттєво відхиляється від лінійної. При цьому має місце стабілізуючий ефект – потік починає слабко залежати від різниці концентрації на границях системи. Наведені дані свідчать про те, що при зменшенні величини відношення парціального мольного об'єму речовини, що дифундує через мембрану, до аналогі-

чної величини розчинника спостерігається суттєве посилення стабілізуючого ефекту за умови збільшення різниці концентрацій на границях мембрани.

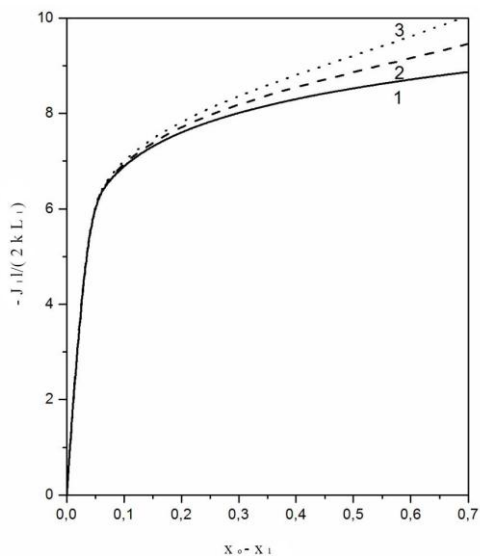


Рис. 4. Залежність нормованого потоку $-\frac{l}{2kL_1} J_1$ від величини $x_0 - x_l$ за різних значень відношення $\frac{v_{10}}{v_{20}}$ у рамках моделі ідеального розчину: 1 – $\frac{v_{10}}{v_{20}} = 0.01$; 2 – $\frac{v_{10}}{v_{20}} = 0.5$; 3 – $\frac{v_{10}}{v_{20}} = 1.0$. На правій границі мембрани задано $x_l = 10^{-4}$.

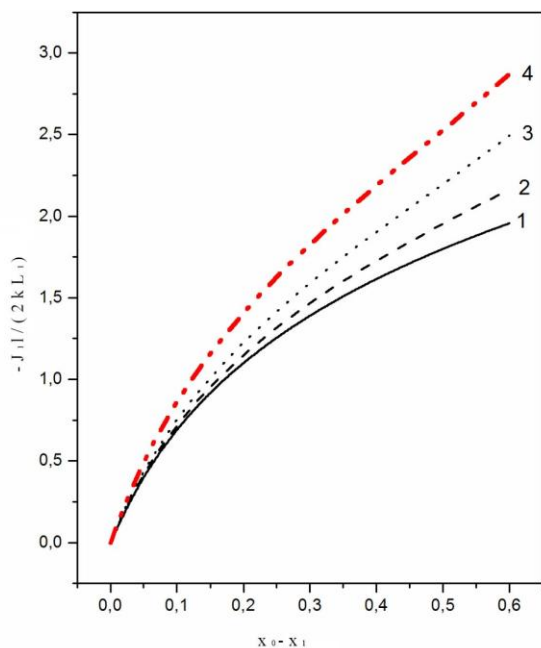


Рис. 5. Залежність нормованого потоку $-\frac{l}{2kL_1} J_1$ від величини $x_0 - x_l$ за різних значень відношення $\frac{v_{10}}{v_{20}}$ у рамках моделі ідеального розчину: 1 – $\frac{v_{10}}{v_{20}} = 0.01$; 2 – $\frac{v_{10}}{v_{20}} = 0.2$; 3 – $\frac{v_{10}}{v_{20}} = 0.5$; 4 – у випадку наявності радіаційного опромінення (якісна оцінка) для $\frac{v_{10}}{v_{20}} = 0.5$. На правій границі мембрани задано $x_l = 10^{-1}$.

Варто зазначити, що радіаційно-індукована зміна рівноважних та нерівноважних властивостей рідинної системи та зростання коефіцієнта самодифузії із збільшенням енергії зовнішнього радіаційного опромінення (наприклад, α -частинок на рис. 3) дозволяє зробити припущення про те, що при дифузії радіоактивних частинок за наявності зовнішнього інтенсивного радіаційного опромінення, можливе зростання відповідного дифузійного потоку. Якісна оцінка цієї зміни наведена на рис. 5 (крива 4).

Висновки

Розроблено обґрунтований теоретично підхід визначення дифузійного потоку для системи, в якій знаходиться тільки один тип радіонуклідів, що дифундує від твердих радіоактивних відходів до поверхні системи (резервуару), та носій, який зумовлює існування процесу так званої полегшеної дифузії.

Отримана формула для коефіцієнта дифузії радіоактивних частинок указує на його залежність від рівноважних та нерівноважних властивостей рідинних систем, які, у свою чергу, залежать від наявності радіаційного опромінення та його властивостей.

Отримані результати вказують на існування стабілізуючого ефекту в процесі дифузії, у результаті чого потік радіоактивних частинок змінюється в більш вузьких межах при зміні градієнта концентрації речовини, що дифундує, у порівнянні з результатами, отриманими для сталого коефіцієнта дифузії.

Ентропійні внески у зміну термодинамічних потенціалів при появі нових радіоактивних частинок відіграють важливу роль у зміні характеру дифузійного потоку, а саме призводять до появи стабілізаційного ефекту.

СПИСОК ВИКОРИСТАНОЇ ЛІТЕРАТУРИ

1. Berlin R. E. Radioactive waste management / R. E. Berlin, C. C. Stanton. – NY.: John Wiley and Sons Inc., 1988.
2. Ewing R. C. Radiation effects in nuclear waste forms for high-level radioactive waste / R. C. Ewing, W. J. Weber, Jr. F. W. Clinard // Prog. Nucl. Energy. – 1995. – Vol. 29. – P. 63.
3. Chernobyl - What Have We Learned? (Ed. Y. Onishi, O. V. Voitsekhovich, M. J. Zheleznyak). - Springer, 2007. – Vol. 12 (Environmental Pollution series). – 291 p.
4. Abram T. Generation-IV nuclear power: A review of the state of the science / T. Abram, S. Ion // Energy Policy. – 2008. – Vol. 36. – P. 4323.
5. The molten salt reactor (MSR) in generation IV: Overview and perspectives / J. Serpa, M. Allibertd, O. Beneš et al. // Prog. Nucl. Energy. – 2014. – Vol. 77. – P. 308.
6. Ritu D. Ambashita. Sillanpää Membrane purification in radioactive waste management: a short review / Ritu D. Ambashita, E. T. Mika // J. Env. Rad. – 2012. – Vol. 105. – P. 76.
7. Byung M. W. Ionization-induced surface tension reduction of water droplets / M. W. Byung, H. J. Jung // Applied Physics Letters. – 2008. – № 93. – P. 244105.
8. Radiation influence on the temperature-dependent parameters of fluids / L. A. Bulavin, K. V. Cherevko, D. A. Gavryushenko et al. // Phys. Rev. E. – 2016. – Vol. 93. – P. 032133.
9. γ -Radiation effect on ionic liquid [bmim][BF₄] / M. Qi, G. Wua, Q. Li, Y. Luo // Radiation Physics and Chemistry. – 2008. – № 77. – P. 877–883.
10. Sysoev V. M. Correlation functions and dynamical structure factor of a nonisotropic medium near the critical point / V. M. Sysoev, A. V. Chalyi // Theor. Math. Phys. – 1974. – Vol. 19. – P. 515 - 519.
11. Sysoev V. M. Correlation functions and dynamical structure factor of a nonisotropic medium near the critical point classical fluid in a gravitational field / V. M. Sysoev, A. V Chalyi // Theor. Math. Phys. – 1976. – Vol. 26. – P. 82 - 88.
12. de Groot S. R., Mazur P. Non-Equilibrium Thermodynamics. – Amsterdam: North-Holland Publishing Company, 1962. – 456 p.
13. Sundaram N. Friction coefficient analysis of multicomponent solute transport through polymer membranes / N. Sundaram, N. A. Peppas // J. Appl. Polym. Sc. – 1996. – Vol. 60. – P. 95 - 101.
14. Afzal Awan M. Transport Properties of Nonelectrolyte Liquid Mixtures. XI. Mutual Diffusion Coefficients for Toluene+n-Hexane and Toluene+Acetonitrile at Temperatures from 273 to 348 K and at Pressures up to 25 MPa / M. Afzal Awan, J. H. Dymond // Int. J. Thermophys. - 2001. - Vol. 22, № 3. - P. 679 - 699.
15. MD simulation of the radiation influence on the thermophysical properties and the structure of water / L. A. Bulavin, K. V. Cherevko, D. A. Gavryushenko et al. // [електронний ресурс] arXiv:1701.06965v1 [cond-mat.stat-mech]

Д. А. Гаврюшенко¹, В. М. Сысоев¹, К. В. Черевко¹, Т. С. Власенко²

¹Киевский национальный университет имени Тараса Шевченко, просп. академика Глушкова, 4, Киев, 03022, Украина

²Институт проблем безопасности АЭС НАН Украины, ул. Лысогорская, 12, Киев, 03028, Украина

ОСОБЕННОСТИ ПЕРЕНОСА РАДІОАКТИВНЫХ ЧАСТИЦ
В ПРОЦЕССАХ ОБЛЕГЧЕННОЙ ДИФФУЗИИ

Представлены результаты исследования процессов диффузии радиоактивных частиц с учетом явления облегченной диффузии (в том числе и радиационно-стимулированной) на основе фундаментальных соотношений неравновесной статистической термодинамики. Исследовано влияние энтропийных вкладов, связанных с появлением новых радиоактивных частиц в системе, на характер диффузионных потоков. Рассчитана величина диффузионного потока радиоактивных веществ для случая плоскопараллельного слоя, ограниченного полупроницаемыми стенками, что может служить моделью образования радиоактивно загрязненных вод за счет диффузии радиоактивных нуклидов при их вымывании из твердых радиоактивных отходов и остатков топлива. Проведена качественная оценка возможного влияния индуцированных облучением изменений равновесных и неравновесных свойств жидких систем в случае интенсивного внешнего радиационного облучения на коэффициент диффузии радиоактивных частиц и величину диффузионного потока.

Ключевые слова: диффузия радиоактивных частиц, облегченная диффузия, радиационное облучение.

D. A. Gavryushenko¹, V. M. Sysoev¹, K. V. Cherevko¹, T. S. Vlasenko²¹Taras Shevchenko National University of Kyiv, Glushkova av., 4, Kyiv, 03022, Ukraine²Institute for Safety Problems of Nuclear Power Plants NAS of Ukraine, Lysogirska str., 12, Kyiv, 03028, Ukraine

**PECULIARITIES OF THE RADIOACTIVE PARTICLES TRANSPORT PHENOMENA
IN THE FACILITATED DIFFUSION PROCESSES**

The work is devoted to the up to date problem that is the description of the radioactive particle diffusion processes. One of the aims of the present study is to estimate the effects caused by the irradiation of the liquid systems on the ongoing transport processes. That can allow predicting the behavior of the liquid systems in the presence of the radioactive sources. The main objective of the present work is studying the radioactive particles diffusion phenomena with the possible facilitated diffusion processes being considered. The phenomena are studied based on the fundamental relations of the nonequilibrium statistical thermodynamics. The diffusive flows are evaluated with the special attention given to the accounting of the entropy effects due to the appearance of the new radioactive particles in the system. The developed approach is used to estimate the diffusive flow of the radioactive particles for the case of the plane-parallel pore with the semi-transparent walls. The choice of a model can be justified as it might be used to describe the production of the radioactive contaminated water when the radionuclide face the diffusion process after being washed from the radioactive wastes and the rests of the nuclear fuel. Within the suggested model it is shown that the diffusion coefficient depends on the structural properties of the liquid systems that might be changed under the influence of the irradiation. The obtained equations for calculating the diffusive flows show the definite stabilizing effect in respect to the concentration difference in between the boundaries of the plane-parallel pore. It leads to the decreased changes of the diffusive flow when the concentrations of the radioactive particles at the boundaries are changed in comparison with those observed for the constant diffusion coefficient. The observed behavior for the ideal solution model is explained by the entropy effects. The qualitative analysis of the possible influence of the changes in the equilibrium and non-equilibrium properties of the water systems under irradiation on the radioactive particles diffusion coefficient and the diffusive flow is presented in the work.

Keywords: radioactive particles diffusion, facilitated diffusion, irradiation.

REFERENCES

1. Berlin R. E. Radioactive waste management / R. E. Berlin, C. C. Stanton. – NY.: John Wiley and Sons Inc., 1988.
2. Ewing R. C. Radiation effects in nuclear waste forms for high-level radioactive waste / R. C. Ewing, W. J. Weber, Jr. F. W. Clinard // Prog. Nucl. Energy. – 1995. – Vol. 29. – P. 63.
3. Chernobyl - What Have We Learned? (Ed. Y. Onishi, O. V. Voitsekhovich, M. J. Zheleznyak). - Springer, 2007. – Vol. 12 (Environmental Pollution series). – 291 p.
4. Abram T. Generation-IV nuclear power: A review of the state of the science / T. Abram, S. Ion // Energy Policy. – 2008. – Vol. 36. – P. 4323.
5. The molten salt reactor (MSR) in generation IV: Overview and perspectives / J. Serpa, M. Allibertd, O. Beneš et al. // Prog. Nucl. Energy. – 2014. – Vol. 77. – P. 308.
6. Ritu D. Ambashta. Sillanpää Membrane purification in radioactive waste management: a short review / Ritu D. Ambashta, E. T. Mika // J. Env. Rad. – 2012. – Vol. 105. – P. 76.
7. Byung M. W.. Ionization-induced surface tension reduction of water droplets / M. W. Byung, H. J. Jung // Applied Physics Letters. – 2008. – № 93. – P. 244105.
8. Radiation influence on the temperature-dependent parameters of fluids / L. A. Bulavin, K. V. Cherevko, D. A. Gavryushenko et al. // Phys. Rev. E. – 2016. – Vol. 93. – P. 032133.
9. α -Radiation effect on ionic liquid [bmim][BF₄] / M. Qi, G. Wua, Q. Li, Y. Luo // Radiation Physics and Chemistry. – 2008. – № 77. – P. 877–883.
10. Sysoev V. M. Correlation functions and dynamical structure factor of a nonisotropic medium near the critical point / V. M. Sysoev, A. V. Chalyi // Theor. Math. Phys. – 1974. – Vol. 19. – P. 515 - 519.
11. Sysoev V. M. Correlation functions and dynamical structure factor of a nonisotropic medium near the critical point classical fluid in a gravitational field / V. M. Sysoev, A. V Chalyi // Theor. Math. Phys. – 1976. – Vol. 26. – P. 82 - 88.
12. de Groot S. R., Mazur P. Non-Equilibrium Thermodynamics. – Amsterdam: North-Holland Publishing Company, 1962. – 456 p.
13. Sundaram N. Friction coefficient analysis of multicomponent solute transport through polymer membranes / N. Sundaram, N. A. Peppas // J. Appl. Polym. Sc. – 1996. – Vol. 60. – P. 95 - 101.
14. Afzal Awan M. Transport Properties of Nonelectrolyte Liquid Mixtures. XI. Mutual Diffusion Coefficients for Toluene+n-Hexane and Toluene+Acetonitrile at Temperatures from 273 to 348 K and at Pressures up to 25 MPa / M. Afzal Awan, J. H. Dymond // Int. J. Thermophys. - 2001. - Vol. 22, № 3. - P. 679 - 699.
15. MD simulation of the radiation influence on the thermophysical properties and the structure of water / L. A. Bulavin, K. V. Cherevko, D. A. Gavryushenko et al. // [електронний ресурс] arXiv:1701.06965v1 [cond-mat.stat-mech]

Надійшла 23.11.2017

Received 23.11.2017