

Комп'ютерне моделювання дифузії домішкових речовин у середовищі з пастками за каскадного розпаду частинок

Ольга Чернуха¹, Юрій Білуцак²

¹ д. т. н., професор, Центр математичного моделювання ІППММ ім. Я. С. Підстригача НАН України, вул. Дж. Дудаєва, 15, 79005, Львів, e-mail: cher@cmm.lviv.ua

² к. т. н., Центр математичного моделювання ІППММ ім. Я. С. Підстригача НАН України, вул. Дж. Дудаєва, 15, 79005, Львів, e-mail: byixx13@gmail.com

За континуально-термодинамічним підходом запропонована математична модель масо-перенесення домішкових речовин у багатокомпонентному середовищі з пастками за каскадного розпаду домішок, в рамках якої концентрація частинок на певному кроці розпаду є джерелом маси розпадної речовини, яка дифундує і сорбується, на наступному кроці. Розв'язки крайових задач дифузії каскадного типу побудовані за ітераційною процедурою з використанням функцій Гріна. Отримано формули для знаходження потоків маси та кількості речовини, що пройшла через шар, на кожному етапі розпаду. Розроблений пакет програм для комп'ютерного моделювання дифузійних процесів у тілі з пастками за каскадного розпаду домішкових речовин.

Ключові слова: математичне моделювання; дифузія; сорбція-десорбція; середовище з пастками; каскадний розпад; функція Гріна; комп'ютерне моделювання

Вступ. Катастрофічні аварії на атомних станціях у Чорнобилі в 1986 р. та Фукусімі у 2011 р. спричинили необхідність вирішення проблеми всебічного вивчення поведінки та поширення техногенного забруднення, і в першу чергу радіонуклідів, в об'єктах природного середовища. При цьому відповідні фізико-механічні процеси можуть супроводжуватись ланцюговою ядерною реакцією, яка є послідовністю одиничних ядерних реакцій, кожна з яких спричинена частинкою, яка з'явилася як продукт реакції на попередньому кроці послідовності. Як один з прикладів ділення хімічних елементів можна навести промисловий плутоній, який отримують опроміненням урана-238 в ядерних реакторах, що послідовно перетворюється в уран-239 \Rightarrow нептуній-239 \Rightarrow плутоній-239 [1, 2].

Каскадні реакції достатньо поширені серед хімічних реакцій, де в якості частинок з невикористаними зв'язками виступають вільні атоми або радикали. Поява в середовищі необхідної частинки викликає каскад наступних реакцій, який продовжується до втрати частинки-носія реакції [1, 3]. Наприклад, розпад органічних азотовмісних речовин у ґрунтах в загальному вигляді подається наступною схемою: гумінові речовини, білки \Rightarrow амінокислоти, аміді \Rightarrow аміак \Rightarrow нітрити \Rightarrow нітрати \Rightarrow молекулярний азот [3].

Актуальність розгляду явища дифузії в середовищах пастками обумовлена його застосуванням в таких галузях як фізика кристалів та напівпровідників, біофізика, наноматеріали, економіка, екологія тощо [4, 5]. Особливо важливе значення дослідження моделей дифузії у середовищах з пастками набуває при розв'язанні задач, пов'язаних з міграцією домішкових речовин у геологічних

формаціях [6], оскільки на сьогодні ізоляцію найтоксичніших відходів вирішують шляхом глибинного підземного захоронення, а за великих часів можливий вихід радіоактивного забруднення за межі інженерних бар'єрів. При цьому основою математичного опису прогнозування перенесення домішок є модель дифузії у середовищах з пастками [6].

У даній роботі досліджується процес дифузії домішкових речовин у середовищі з пастками, який супроводжується каскадним розпадом мігруючих частинок.

1. Математична модель

Приймаємо, що довільно вибрана мала область середовища складається з твердої фази, в об'єм якої можуть проникати домішкові частинки, та порового простору, в якому дифундує домішкова речовина. Причому коефіцієнт дифузії домішки в об'ємі скелету настільки малий у порівнянні з коефіцієнтом дифузії у поровому просторі, що тверду фазу розглядаємо як пастки для домішкових частинок.

Домішкова речовина $K^{(0)}$ з поверхні поступає у тіло K^* і дифундує у поровому просторі, супроводжуючись процесами сорбції-десорбції. Частина $K^{(0)}$

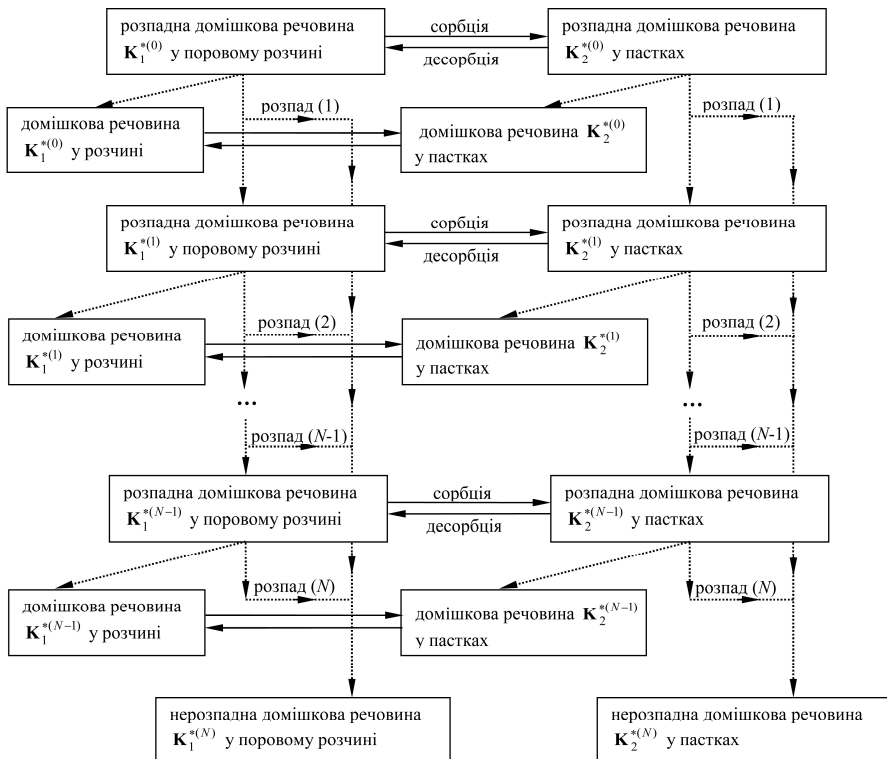


Рис. 1. Схема розпаду домішкової речовини та процесів переходу частинок між станами

розпадається і утворюються речовини $K^{(1)}$ і $K^{(N)}$ (рис. 1). Нехай частинки речовини $K^{(N)}$ є нерозпадними або нешкідливими ($N \in \mathbb{N}$ - кількість етапів каскад-

ного розпаду домішок; якщо $N = 1$ розпад відбувається один раз). Субстанція $\mathbf{K}^{(1)}$ теж розпадається і утворює речовину $\mathbf{K}^{(2)}$ (яка у свою чергу розпадається) та нерозпадні частинки, які відносно до $\mathbf{K}^{(N)}$, і т.п. Причому нова речовина на кожному етапі утворюється в обох станах — у поровому просторі і пастках з однаковим коефіцієнтом інтенсивності розпаду, вона дифундує, може сорбуватися і десорбуватися.

Вихідні співвідношення математичної моделі багатокомпонентної дифузії за каскадного розпаду мігруючих частинок у середовищі з пастками сформульовані з використанням континуально-термодинамічного підходу механіки твердих розчинів [7]. Кожній компоненті ставиться у відповідність континуум, з допомогою якого описуються кінематичні та деформаційні властивості компонент, а також формулюються балансові співвідношення, які відображають закони збереження маси, імпульсу, енергії та ентропії. З використанням концепції локальної термодинамічної рівноваги будуються рівняння стану та кінетичні рівняння. Вибравши в якості розв'язуючих функцій концентрації домішкових компонент, вектор переміщення, густину та температуру тіла, сформульовано ключову систему рівнянь, яка в подальшому лінеаризується.

У даному випадку деформація середовища і теплові процеси не розглядаються. За ізотермічних умов, нехтуючи конвективними складовими масоперенесення та деформацією [7], отримаємо наступні рівняння дифузії у середовищі з пастками за каскадного розпаду мігруючих частинок на i -му кроці розпаду:

для $i = 0$

$$\frac{\partial c_1^{(0)}}{\partial t} = D^{(0)} \Delta c_1^{(0)} - k_1^{(0)} c_1^{(0)} + k_2^{(0)} c_2^{(0)} - \lambda^{(1)} c_1^{(0)} - \lambda^{(0N)} c_1^{(0)},$$

$$\frac{\partial c_2^{(0)}}{\partial t} = k_1^{(0)} c_1^{(0)} - k_2^{(0)} c_2^{(0)} - \lambda^{(1)} c_2^{(0)} - \lambda^{(0N)} c_2^{(0)};$$

для $i = \overline{1, N-1}$

$$\frac{\partial c_1^{(i)}}{\partial t} = D^{(i)} \Delta c_1^{(i)} - k_1^{(i)} c_1^{(i)} + k_2^{(i)} c_2^{(i)} + \lambda^{(i-1)} c_1^{(i-1)} - \lambda^{(i+1)} c_1^{(i)} - \lambda^{(iN)} c_1^{(i)},$$

$$\frac{\partial c_2^{(i)}}{\partial t} = k_1^{(i)} c_1^{(i)} - k_2^{(i)} c_2^{(i)} + \lambda^{(i-1)} c_2^{(i-1)} - \lambda^{(i+1)} c_2^{(i)} - \lambda^{(iN)} c_2^{(i)};$$

для $i = N$

$$\frac{\partial c_1^{(N)}}{\partial t} = D^{(N)} \Delta c_1^{(N)} - k_1^{(N)} c_1^{(N)} + k_2^{(N)} c_2^{(N)} + \sum_{i=0}^{N-1} \lambda^{(iN)} c_1^{(i)},$$

$$\frac{\partial c_2^{(N)}}{\partial t} = k_1^{(N)} c_1^{(N)} - k_2^{(N)} c_2^{(N)} + \sum_{i=0}^{N-1} \lambda^{(iN)} c_2^{(i)}. \quad (1)$$

Тут $c_j^{(i)}$ — концентрація домішкової речовини, яка утворилася на i -му етапі розпаду, у стані j ($i = \overline{0, N}$; $j = 1, 2$); $D^{(i)}$ — коефіцієнт дифузії частинок для етапу

$i = \overline{0, N}$; $k_1^{(i)}$ і $k_2^{(i)}$ - коефіцієнти інтенсивності сорбції і десорбції, $\lambda^{(i+1)}$ і $\lambda^{(iN)}$ - коефіцієнти інтенсивності розпаду речовини на i -му кроці, що відповідають утворенню нової речовини на $(i+1)$ -му етапі та нерозпадної речовини для $i = N$. Зазначимо, що одиниці вимірювання коефіцієнтів інтенсивності розпаду та сорбції-десорбції співпадають [c^{-1}].

Приведемо системи рівнянь (1) до безрозмірного вигляду. З цією метою введемо нові змінні [8]

$$t = k_2^{(0)} \tau, \quad \xi^{(\alpha)} = \left(k_2^{(0)} / D^{(0)} \right)^{1/2} x^{(\alpha)}, \quad \alpha = \overline{1, 3}. \quad (2)$$

Тоді отримаємо

для $i = 0$

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1^{(0)}}{\partial \tau} &= d^{(0)} \Delta_\xi c_1^{(0)} - a_1^{(0)} c_1^{(0)} + a_2^{(0)} c_2^{(0)}, \\ \frac{\partial c_2^{(0)}}{\partial \tau} &= a_3^{(0)} c_1^{(0)} - a_4^{(0)} c_2^{(0)}; \end{aligned} \quad (3a)$$

для $i = \overline{1, N-1}$

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1^{(i)}}{\partial \tau} &= d^{(i)} \Delta_\xi c_1^{(i)} - a_1^{(i)} c_1^{(i)} + a_2^{(i)} c_2^{(i)} + a_{\lambda 1}^{(i-1)} c_1^{(i-1)}, \\ \frac{\partial c_2^{(i)}}{\partial \tau} &= a_3^{(i)} c_1^{(i)} - a_4^{(i)} c_2^{(i)} + a_{\lambda 2}^{(i-1)} c_2^{(i-1)}; \end{aligned} \quad (3б)$$

для $i = N$

$$\begin{aligned} \frac{\partial c_1^{(N)}}{\partial \tau} &= d^{(N)} \Delta_\xi c_1^{(N)} - a_1^{(N)} c_1^{(N)} + a_2^{(N)} c_2^{(N)} + \sum_{i=0}^{N-1} a_{\lambda 1}^{(iN)} c_1^{(i)}, \\ \frac{\partial c_2^{(N)}}{\partial \tau} &= a_3^{(N)} c_1^{(N)} - a_4^{(N)} c_2^{(N)} + \sum_{i=0}^{N-1} a_{\lambda 2}^{(iN)} c_2^{(i)}, \end{aligned} \quad (3в)$$

де $\Delta_\xi = \vec{\nabla}_\xi \cdot \vec{\nabla}_\xi$, $\vec{\nabla}_\xi = \vec{i}^{(\alpha)} \partial / \partial \xi^{(\alpha)}$; $d^{(i)} = D^{(i)} / D^{(0)}$, $a_1^{(i)} = \left(k_1^{(i)} + \lambda_1^{(i+1)} + \lambda_1^{(iN)} \right) / k_2^{(0)}$, $a_3^{(i)} = k_1^{(i)} / k_2^{(0)}$, $a_{\lambda j}^{(i-1)} = \lambda_j^{(i-1)} / k_2^{(0)}$, $a_{\lambda j}^{(iN)} = \lambda_j^{(iN)} / k_2^{(0)}$, $i = \overline{0, N}$, $j = 1, 2$.

Зазначимо, що безрозмірні змінні (2) стискають часову вісь і розтягують просторові. При цьому не залежать від геометричних розмірів тіла або характерних розмірів структурних неоднорідностей.

2. Крайова задача дифузії каскадного типу для тіла з пастками

Нехай домішкова речовина мігрує в шарі безрозмірної товщини ξ_0 , причому в тілі наявні пастки для домішкових частинок. Домішка може розпадатися, утворюючи нову речовину. Такі процеси описують рівняння (3) для одновимірного за просторовою координатою випадку.

Приймаємо, що в початковий момент в тілі відсутня домішкова речовина:

$$c_1^{(i)}(\xi, \tau) \Big|_{\tau=0} = c_2^{(i)}(\xi, \tau) \Big|_{\tau=0} = 0, \quad i = \overline{0; N}. \quad (4)$$

Для часів $\tau > 0$ на межі шару $\xi = 0$ діє стале джерело маси для речовини $\mathbf{K}^{(0)}$ і частинки з поверхні можуть попадати лише у поровий простір. На границі $\xi = \xi_0$ підтримується нульове значення концентрації $c_1^{(0)}$. Також приймаємо, що джерелом маси для речовини $\mathbf{K}^{(i)}$ ($i = \overline{1; N}$) є розпад речовини $\mathbf{K}^{(i-1)}$. Тоді маємо такі граничні умови:

$$c_1^{(0)}(\xi, \tau) \Big|_{\xi=0} = c_0 \equiv const, \quad c_1^{(0)}(\xi, \tau) \Big|_{\xi=\xi_0} = 0, \quad (5a)$$

$$c_1^{(i)}(\xi, \tau) \Big|_{\xi=0} = 0, \quad c_1^{(i)}(\xi, \tau) \Big|_{\xi=\xi_0} = 0, \quad i = \overline{1; N}. \quad (5b)$$

Таким чином ми отримали крайову задачу (3)-(5) каскадного типу.

Розв'язок крайової задачі для кроку $i = 0$ розпаду дифундуючої речовини, тобто задачі (3a), (4), (5a), знаходимо з допомогою інтегральних перетворень Лапласа за часом і Фур'є за просторовою координатою [8]. У результаті одержимо концентрацію домішок у поровому просторі

$$\begin{aligned} \frac{1}{c_0} c_1^{(0)}(\xi, \tau) = & 1 - \frac{\xi}{\xi_0} - \frac{2\tilde{B}_1^2}{\xi_0 a_4^{(0)} d^{(0)}} \left[1 - \frac{\xi}{\xi_0} - \frac{\text{sh} \eta^{(0)}(\xi_0 - \xi)}{\text{sh} \eta^{(0)} \xi_0} \right] + \frac{2}{\xi_0} \times \\ & \times \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\sin y_k \xi}{y_k (s_1 - s_2)} \left\{ \left(s_1 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}_1}{s_1} \right) e^{s_1 \tau} - \left(s_2 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}_1}{s_2} \right) e^{s_2 \tau} \right\}; \end{aligned} \quad (6a)$$

концентрацію частинок у пастках

$$\frac{1}{c_0} c_2^{(0)} = \frac{2a_3^{(0)} \tilde{B}_1}{\xi_0 a_4^{(0)2} d^{(0)2}} \frac{\text{sh} \eta^{(0)}(\xi_0 - \xi)}{\text{sh} \eta^{(0)} \xi_0} + \frac{2a_3^{(0)}}{\xi_0} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\sin y_k \xi}{y_k (s_1 - s_2)} \left\{ \left(\frac{\tilde{B}_2}{s_1} \right) e^{s_1 \tau} - \left(\frac{\tilde{B}_2}{s_2} \right) e^{s_2 \tau} \right\}; \quad (6b)$$

сумарну концентрацію частинок $\tilde{c}^{(0)}(\xi, \tau) = c_1^{(0)}(\xi, \tau) + c_2^{(0)}(\xi, \tau)$ у тілі з пастками

$$\frac{1}{c_0} \tilde{c}^{(0)}(\xi, \tau) = 1 - \frac{\xi}{\xi_0} - \frac{2\tilde{B}_1^2}{\xi_0 a_4^{(0)} d_0^{(0)}} \left[1 - \frac{\xi}{\xi_0} - \left(1 - \frac{a_3^{(0)}}{d^{(0)} a_4^{(0)} \tilde{B}_1} \right) \frac{\text{sh} \eta^{(0)}(\xi_0 - \xi)}{\text{sh} \eta^{(0)} \xi_0} \right] +$$

$$+ \frac{2}{\xi_0} \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\sin y_k \xi}{y_k (s_1 - s_2)} \left\{ \left(s_1 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}^{(0)}}{s_1} \right) e^{s_1 \tau} - \left(s_2 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}^{(0)}}{s_2} \right) e^{s_2 \tau} \right\}, \quad (6B)$$

де $s_{1,2} = 0,5 \left[-\zeta_1 \pm \sqrt{\zeta_1^2 - 4\zeta_2} \right]$, $\zeta_1 = d_0^{(0)} y_k^2 + a_1^{(0)} + a_4^{(0)}$, $\zeta_2 = a_1^{(0)} a_4^{(0)} - a_3^{(0)} a_2^{(0)} a_4^{(0)} d_0^{(0)} y_k^2$,
 $\tilde{B}^{(0)} = a_3^{(0)} \tilde{B}_2 - \tilde{B}_1$, $\tilde{A}_1 = a_1^{(0)} + a_4^{(0)}$, $\tilde{B}_1 = a_1^{(0)} a_4^{(0)} - a_3^{(0)} a_2^{(0)}$, $\tilde{B}_2 = d_0^{(0)} y_k^2$, $y_k = k\pi/\xi_0$,
 $\eta^{(0)} = \sqrt{\tilde{B}_1/a_4^{(0)} d_0^{(0)}}$.

Концентрація в пастках є пропорційною не тільки значенню концентрації частинок на границі шару c_0 , але й коефіцієнту інтенсивності сорбції $a_3^{(0)}$. Асимптотичні за часовою змінною складові функцій $c_1^{(0)}(\xi, \tau)$, $c_2^{(0)}(\xi, \tau)$, $\tilde{c}^{(0)}(\xi, \tau)$ є суттєво нелінійними.

Зауважимо, що в рамках моделі, яка розглядається, концентрація частинок у пастках на границі шару $\xi = 0$ не дорівнює нулю, і, відповідно, сумарна концентрація дифундуючої речовини на цій межі не дорівнює c_0 :

$$\frac{1}{c_0} c_2^{(0)}(\xi, \tau) \Big|_{\xi=0} = \frac{2a_3^{(0)} \tilde{B}_1}{\xi_0 a_4^{(0)2} d^{(0)2}}; \quad \frac{1}{c_0} \tilde{c}^{(0)}(\xi, \tau) \Big|_{\xi=0} = 1 + \frac{2\tilde{B}_1 a_3^{(0)}}{\xi_0 a_4^{(0)2} d^{(0)2}}.$$

Це означає, що домішкова речовина може накопичуватись у пастках і на границі шару $\xi = 0$. У той же час на границі $\xi = \xi_0$ концентрації розпадних частинок (6а) дорівнюють нулю.

Для інших кроків каскадного розпаду мігруючих речовин ($i = \overline{1, N-1}$) розв'язок крайових задач (3б), (4), (5б) подамо через відповідні функції Гріна:

$$c_1^{(i)}(\xi, \tau) = a_{\lambda 1}^{(i-1)} \int_0^{\xi_0} \int_0^{\tau} G_1^{(i)}(\xi, \xi'; \tau, \tau') c_1^{(i-1)}(\xi', \tau') d\xi' d\tau';$$

$$c_2^{(i)}(\xi, \tau) = a_{\lambda 2}^{(i-1)} \int_0^{\xi_0} \int_0^{\tau} G_2^{(i)}(\xi, \xi'; \tau, \tau') c_2^{(i-1)}(\xi', \tau') d\xi' d\tau', \quad (7)$$

де $G_1^{(i)}(\xi, \xi'; \tau, \tau')$, $G_2^{(i)}(\xi, \xi'; \tau, \tau')$ - функції Гріна задачі (3б), (4), (5б) для $i = \overline{1, N-1}$, тобто є розв'язками наступних крайових задач

$$\frac{\partial G_1^{(i)}}{\partial \tau} - d^{(i)} \frac{\partial^2 G_1^{(i)}}{\partial \xi^2} + a_1^{(i)} G_1^{(i)} - a_2^{(i)} G_2^{(i)} = \delta(\tau - \tau') \delta(\xi - \xi');$$

$$\frac{\partial G_2^{(i)}}{\partial \tau} - a_3^{(i)} G_1^{(i)} + a_4^{(i)} G_2^{(i)} = \delta(\tau - \tau') \delta(\xi - \xi'), \quad (8)$$

за нульових крайових умов

$$G_1^{(i)} \Big|_{\tau=0} = G_2^{(i)} \Big|_{\tau=0} = 0; \quad G_1^{(i)} \Big|_{\xi=0} = G_1^{(i)} \Big|_{\xi=\xi_0} = 0, \quad i = \overline{1, N-1}, \quad (9)$$

Розв'язок крайової задачі (8), (9) також шукаємо з допомогою інтегральних перетворень Лапласа і Фур'є [9, 10]. Формули для визначення функцій Гріна $G_j^{(i)}$ на i -му кроці розпаду ($i = \overline{1, N-1}$) одержано у вигляді:

$$G_1^{(i)} = \theta(\tau - \tau') \frac{2}{\xi_0} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin(y_n \xi) \sin(y_n \xi')}{s_{1n} - s_{2n}} \left[(s_{1n} + \overline{A}_1^{(i)}) e^{s_{1n}(\tau - \tau')} - (s_{2n} + \overline{A}_1^{(i)}) e^{s_{2n}(\tau - \tau')} \right],$$

$$G_2^{(i)} = \theta(\tau - \tau') \frac{2}{\xi_0} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin(y_n \xi) \sin(y_n \xi')}{s_{1n} - s_{2n}} \left[(s_{1n} + \overline{A}_2^{(i)}) e^{s_{1n}(\tau - \tau')} - (s_{2n} + \overline{A}_2^{(i)}) e^{s_{2n}(\tau - \tau')} \right], \quad (10)$$

де $\overline{A}_1^{(i)} = a_{33}^{(i)} + a_{23}^{(i)}$, $\overline{A}_2^{(i)} = d_0^{e(i)} y_n^2 + a_{11}^{e(i)} + a_{31}^{e(i)}$, $\theta(\tau)$ - функція Хевісайда.

Отже, знайшовши функцію Гріна за формулою (10) і визначивши концентрацію розпадних домішок на кроці $i-1$, за співвідношеннями (7) ми знайдемо концентрацію розпадної речовини для $i = \overline{1, N-1}$.

Для випадку $i = N$ процес масоперенесення описується задачею (3в), (4), (5б). Її розв'язок також подамо через відповідні функції Гріна

$$c_1^{(N)}(\xi, \tau) = \int_0^{\tau} \int_0^{\xi_0} G_1^{(N)}(\xi, \xi'; \tau, \tau') \sum_{i=0}^{N-1} a_{\lambda 1}^{(iN)} c_1^{(i)}(\xi', \tau') d\xi' d\tau';$$

$$c_2^{(N)}(\xi, \tau) = \int_0^{\tau} \int_0^{\xi_0} G_2^{(N)}(\xi, \xi'; \tau, \tau') \sum_{i=0}^{N-1} a_{\lambda 2}^{(iN)} c_2^{(i)}(\xi', \tau') d\xi' d\tau', \quad (11)$$

де $G_j^{(N)}(\xi, \xi'; \tau, \tau')$ ($j = 1, 2$) — функції Гріна задачі (3в), (4), (5б) і задовольняють крайову задачу з точковим джерелом

$$\frac{\partial G_1^{(N)}}{\partial \tau} - d^{(N)} \frac{\partial^2 G_1^{(N)}}{\partial \xi^2} + a_1^{(N)} G_1^{(N)} - a_2^{(N)} G_2^{(N)} = \delta(\tau - \tau') \delta(\xi - \xi');$$

$$\frac{\partial G_2^{(N)}}{\partial \tau} - a_3^{(N)} G_1^{(N)} + a_4^{(N)} G_2^{(N)} = \delta(\tau - \tau') \delta(\xi - \xi'), \quad (12)$$

$$G_1^{(N)} \Big|_{\tau=0} = G_2^{(N)} \Big|_{\tau=0} = G_1^{(N)} \Big|_{\xi=0} = G_1^{(N)} \Big|_{\xi=\xi_0} = 0. \quad (13)$$

Розв'язок крайової задачі (12), (13) має вигляд

$$G_1^{(N)} = \theta(\tau - \tau') \frac{2}{\xi_0} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin(y_n \xi) \sin(y_n \xi')}{s_{1n} - s_{2n}} \left[(s_{1n} + \overline{A}_1^{(N)}) e^{s_{1n}(\tau - \tau')} - (s_{2n} + \overline{A}_1^{(N)}) e^{s_{2n}(\tau - \tau')} \right],$$

$$G_2^{(N)} = \theta(\tau - \tau') \frac{2}{\xi_0} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\sin(y_n \xi) \sin(y_n \xi')}{s_{1n} - s_{2n}} \left[(s_{1n} + \overline{A}_2^{(N)}) e^{s_{1n}(\tau - \tau')} - (s_{2n} + \overline{A}_2^{(N)}) e^{s_{2n}(\tau - \tau')} \right]. \quad (14)$$

Тоді, послідовно визначивши концентрації на кожному кроці $i = \overline{0, N-1}$ за формулами (11) з урахуванням виразів (14) знайдемо концентрації нерозпадних частинок у тілі.

3. Потоки маси та кількість речовини, що пройшла через шар

В рамках моделі дифузії у середовищі з пастками потік маси враховується лише у стані 1. В об'ємі скелету (пастках) приймається, що дифузійний потік є нехтовно малим. Тому сумарний потік частинок за даною моделлю визначається потоком у поровому просторі. В одновимірному за просторовою координатою випадку потік частинок, що розпадаються, через переріз тіла $\xi = \xi_*$ знайдемо за формулою

$$J_{*p}^{(i)}(\tau) = -d_0^{(i)} \partial c_1^{(i)}(\xi, \tau) / \partial \xi \Big|_{\xi=\xi_*}, \quad i = \overline{0; N}. \quad (15)$$

Підставляємо вирази для концентрацій $c_1^{(i)}(\xi, \tau)$ (6в), (7), (11) у співвідношення (15). Тоді отримаємо

для $i = 0$

$$\begin{aligned} \frac{\xi_0}{c_0 d_0^{(0)}} J_{*p}^{(0)}(\tau) = & 1 + \frac{\tilde{B}_1^2 \eta^{(0)}}{a_4^{(0)} d_0^{(0)}} \left[\frac{1}{\xi_0} - \eta^{(0)} \frac{\text{ch } \eta^{(0)}(\xi_0 - \xi_*)}{\text{sh } \eta^{(0)} \xi_0} \right] - \\ & - 2 \sum_{k=1}^{\infty} \frac{\cos y_k \xi_*}{(s_1 - s_2)} \left\{ \left(s_1 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}_1}{s_1} \right) e^{s_1 \tau} - \left(s_2 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}_1}{s_2} \right) e^{s_2 \tau} \right\}, \quad i = \overline{0; N}; \end{aligned} \quad (16a)$$

для $i = 1, \dots, N-1$

$$\begin{aligned} J_{*p}^{(i)}(\tau) = & -a_{\lambda 1}^{(i-1)} d_0^{(i)} \int_0^{\tau} \int_0^{\xi_0} \frac{\partial G_1^{(i)}(\xi, \xi'; \tau, \tau')}{\partial \xi} \Big|_{\xi=\xi_*} c_1^{(i-1)}(\xi', \tau') d\xi' d\tau'; \\ \frac{\partial G_1^{(i)}}{\partial \xi} \Big|_{\xi=\xi_*} = & \theta(\tau - \tau') \frac{2}{\xi_0} \sum_{n=1}^{\infty} y_n \frac{\cos(y_n \xi_*) \sin(y_n \xi')}{s_{1n} - s_{2n}} \times \\ & \times \left[(s_{1n} + \bar{A}_1^{(i)}) e^{s_{1n}(\tau - \tau')} - (s_{2n} + \bar{A}_1^{(i)}) e^{s_{2n}(\tau - \tau')} \right], \quad i = \overline{0; N}; \end{aligned} \quad (16b)$$

для $i = N$

$$\begin{aligned} J_{*p}^{(N)}(\tau) = & -d_0^{(N)} \int_0^{\tau} \int_0^{\xi_0} \frac{\partial G_1^{(N)}(\xi, \xi'; \tau, \tau')}{\partial \xi} \Big|_{\xi=\xi_*} \sum_{i=0}^{N-1} a_{\lambda 1}^{(iN)} c_1^{(i)}(\xi', \tau') d\xi' d\tau'; \\ \frac{\partial G_1^{(N)}}{\partial \xi} \Big|_{\xi=\xi_*} = & \theta(\tau - \tau') \frac{2}{\xi_0} \sum_{n=1}^{\infty} y_n \cos(y_n \xi_*) \frac{\sin(y_n \xi')}{s_{1n} - s_{2n}} \times \\ & \times \left[(s_{1n} + \bar{A}_1^{(i)}) e^{s_{1n}(\tau - \tau')} - (s_{2n} + \bar{A}_1^{(i)}) e^{s_{2n}(\tau - \tau')} \right]. \end{aligned} \quad (16b)$$

Запишемо також вирази для потоків розпадних речовин через нижню границю шару $\xi = \xi_0$ як частковий випадок формул (16):

для $i = 0$

$$\frac{\xi_0}{c_0 d_0^{(0)}} J_{0p}^{(0)}(\tau) = 1 + \frac{\tilde{B}_1^2 \eta^{(0)}}{a_4^{(0)} d_0^{(0)}} \left[\frac{1}{\xi_0} - \frac{\eta^{(0)}}{\text{sh } \eta^{(0)} \xi_0} \right] - 2 \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(-1)^k}{(s_1 - s_2)} \left\{ \left(s_1 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}_1}{s_1} \right) e^{s_1 \tau} - \left(s_2 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}_1}{s_2} \right) e^{s_2 \tau} \right\}; \quad (17a)$$

для $i = 1, \dots, N-1$ справджується формула (16б), в якій

$$\left. \frac{\partial G_1^{(i)}}{\partial \xi} \right|_{\xi=\xi_0} = \theta(\tau - \tau') \frac{2}{\xi_0} \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n y_n \frac{\sin(y_n \xi')}{s_{1n} - s_{2n}} \left[(s_{1n} + \bar{A}_1^{(i)}) e^{s_{1n}(\tau - \tau')} - (s_{2n} + \bar{A}_1^{(i)}) e^{s_{2n}(\tau - \tau')} \right]; \quad (17б)$$

для $i = N$ справджується формула (16в), в якій

$$\left. \frac{\partial G_1^{(N)}}{\partial \xi} \right|_{\xi=\xi_0} = \theta(\tau - \tau') \frac{2}{\xi_0} \sum_{n=1}^{\infty} (-1)^n y_n \frac{\sin(y_n \xi')}{s_{1n} - s_{2n}} \left[(s_{1n} + \bar{A}_1^{(i)}) e^{s_{1n}(\tau - \tau')} - (s_{2n} + \bar{A}_1^{(i)}) e^{s_{2n}(\tau - \tau')} \right]. \quad (17в)$$

Зазначимо, що асимптотична за часовою частина виразів для потоків (16), зокрема і (16), є нелінійною, причому структура цих доданків є подібною до потоків домішки, знайдений за моделлю дифузії в середовищі з ефективними характеристиками [9].

Знайдемо кількість розпадної домішкової речовини, що за час τ_* пройшла через поверхню $\xi = \xi_0$ - нижню границю шару, за співвідношенням

$$Q_{0e}^{(i)} = \int_0^{\tau_*} J_{0e}^{(i)}(\tau) d\tau, \quad i = \overline{0, N},$$

підставляючи відповідні вирази для потоків маси (17). У результаті отримаємо для $i = 0$

$$\frac{\xi_0 Q_{0p}^{(0)}}{c_0 d_0^{(0)}} = \left(1 + \frac{\tilde{B}_1^2 \eta^{(0)}}{a_{33}^{(0)} d_0^{(0)}} \left[\frac{1}{\xi_0} - \frac{\eta^{(0)}}{\text{sh } \eta^{(0)} \xi_0} \right] \right) \tau_* + 2 \sum_{k=1}^{\infty} \frac{(-1)^k}{(s_1 - s_2)} \left\{ \left(s_1 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}_1}{s_1} \right) (1 - e^{s_1 \tau_*}) - \left(s_2 + \tilde{A}_1 + \frac{\tilde{B}_1}{s_2} \right) (1 - e^{s_2 \tau_*}) \right\}; \quad (18a)$$

для $i = 1, \dots, N-1$

$$Q_{0p}^{(i)} = -a_{\lambda 1}^{e(i-1)} d_0^{e(i)} \int_0^{\tau_*} \left(\int_0^{\xi_0} \frac{\partial G_1^{(i)}(\xi, \xi'; \tau, \tau')}{\partial \xi} \Big|_{\xi=\xi_0} c_1^{e(i-1)}(\xi', \tau') d\xi' d\tau' \right) d\tau; \quad (18б)$$

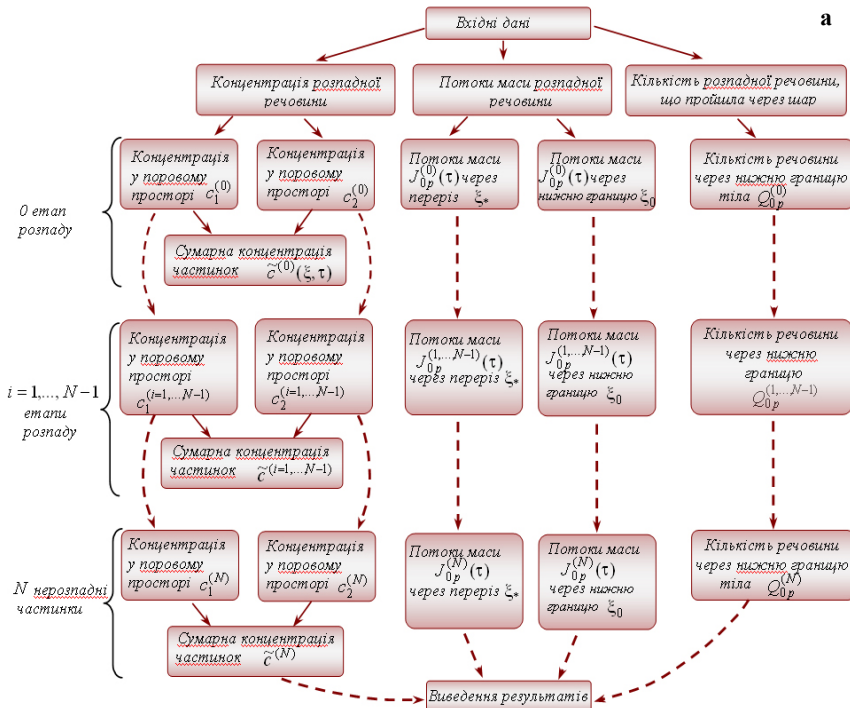
для $i = N$

$$Q_{0e}^{(N)} = -d_0^{e(N)} \int_0^{\tau_*} \left(\int_0^{\xi_0} \frac{\partial G_1^{(N)}(\xi, \xi'; \tau, \tau')}{\partial \xi} \Big|_{\xi=\xi_0} \sum_{i=0}^{N-1} a_{\lambda 1}^{(iN)} c_1^{e(i)}(\xi', \tau') d\xi' d\tau' \right) d\tau. \quad (18в)$$

Зауважимо, що вирази для потоків і кількості речовини, що за певний проміжок часу пройшло через шар, отримані в інтегральній формі.

4. Схема модуля пакету програм. Числовий аналіз

На основі формул (6), (7), (10), а також розв'язків задач (8), (9) і (12), (13) розроблений пакет програм для комп'ютерного моделювання процесів дифузії у тілі з пастками за каскадного розпаду мігруючих частинок. Схему алгоритму модуля пакету для розрахунку концентрацій розпадних мігруючих частинок для всіх $i = \overline{0, N}$ наведено на рис. 2. Модулі для обчислення дифузійних потоків та кількості речовини, що пройшла через шар, мають таку саму структуру. Зауважимо, що програмні модулі для потоків і кількості речовини містять тільки по одному циклічному процесу.



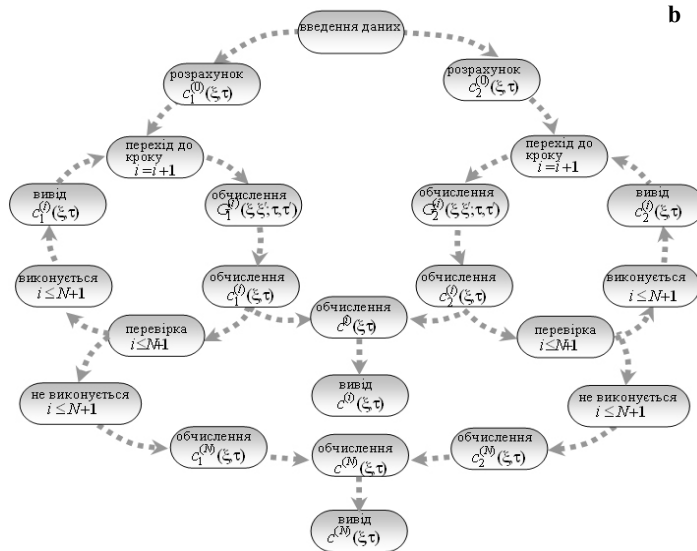
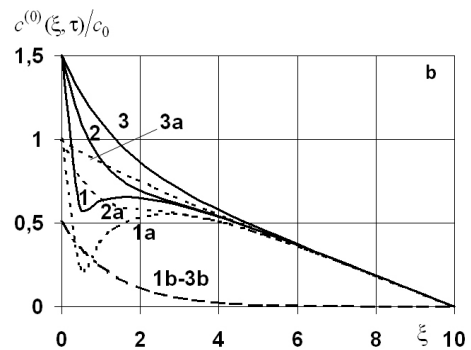
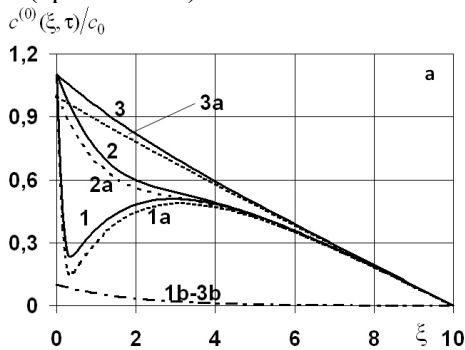


Рис. 2. Структура пакету програм (рис. а) та схема алгоритму модуля пакету для розрахунку концентрацій домішкових речовин за каскадного розпаду частинок у тілі з пастками (рис. б)

На рис. 3 показано розподіли концентрації домішок на етапах $i = 0$ (рис. 3а і 3б) та $i = 1$ (рис. 3с і 3д) у поровому просторі (криві а), у пастках (криві б) та сумарна концентрація частинок. Рис. 3а для $a_3^{(0)} = 5$ та рис. 3б для $a_3^{(0)} = 10$ ілюструють поведінку концентрації розпадної речовини у різні моменти безрозмірного часу $\tau = 0,01; 2; 20$ (криві — 1-3 відповідно). Рис. 3с для коефіцієнта дифузії речовини $K^{(1)}$ $d_0^{(1)} = 0,05$ та рис. 3д для $d_0^{(1)} = 20$ демонструють залежність сумарної концентрації, утвореної після розпаду домішки ($i = 1$), від різних значень коефіцієнта інтенсивності сорбції $a_3^{(1)} = 2; 3; 4$ (криві — 1-3).



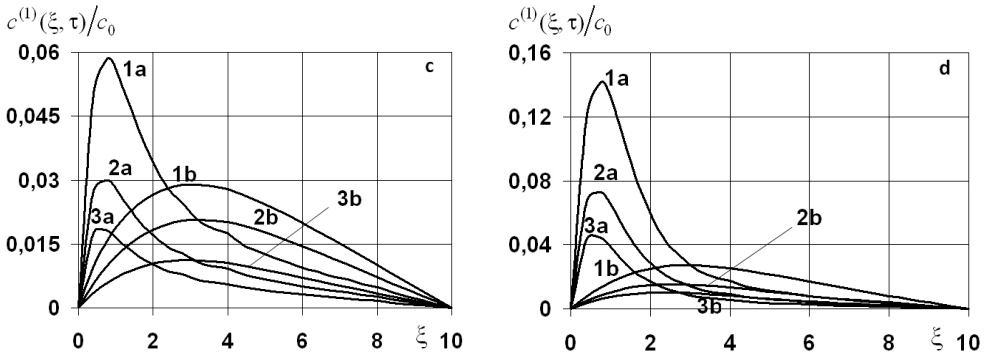
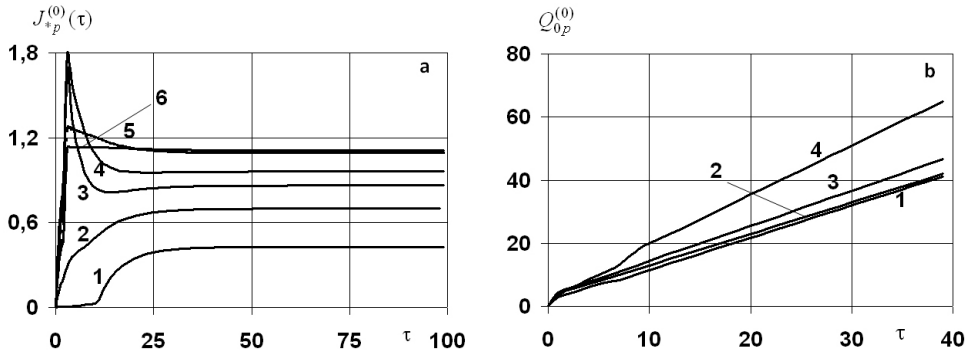


Рис. 3. Розподіли концентрацій $c_1^{(0)}$, $c_2^{(0)}$ та $\tilde{c}^{(0)}$ в різні моменти часу (рис. а, б) і концентрації $\tilde{c}^{(1)}$ при різних значеннях $a_3^{(1)}$

На рис. 4 показано розподіли потоків маси $\xi_0 J_{0p}^{(0)}(\tau)/c_0 d_0^{(0)}$ (рис. 4а) та кількість розпадної домішкової речовини $\xi_0 Q_{0p}^{(0)}(\tau)/c_0 d_0^{(0)}$, що за час τ_* пройшла через одиницю площі поверхні $\xi = \xi_0$ (рис. 4б) на 0-му етапі розпаду; дифузійних потоків $\xi_0 J_{0p}^{(1)}(\tau)/c_0 d_0^{(0)}$ на 1-му етапі розпаду (рис. 4с-д). На рис. 4а криві 1-6 відповідають потокам розпадної домішки через перерізи тіла $\xi_* = 0,5, 1, 1.5, 2, 4, 6$. На рис. 4б криві 1-4 для функції $\xi_0 Q_{0p}^{(0)}(\tau)/c_0 d_0^{(0)}$ наведені різних значеннях коефіцієнта інтенсивності сорбції $a_3^{(0)} = 1, 5, 10, 20$. Рис. 4с-д ілюструють поведінку функції $\xi_0 J_{0p}^{(1)}(\tau)/c_0 d_0^{(0)}$ на 1-му етапі розпаду залежно від інтенсивності проходження домішки через перерізи $\xi_* = 6, 7, 8, 9$ (криві 1-4) при значеннях коефіцієнта інтенсивності сорбції $a_3^{(0)} = 5$ (рис. 4с) та 20 (рис. 4д).



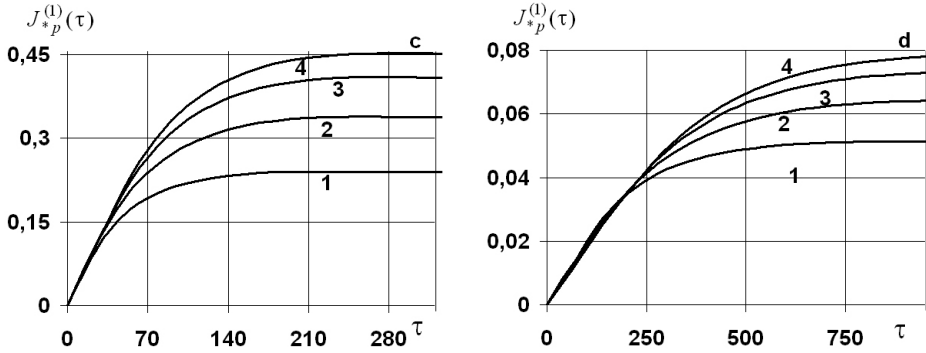


Рис. 4. Потоки маси через різні перерізи тіла (рис. а) та кількість розпадної домішкової речовини, що за час τ_* пройшла через поверхню $\xi = \xi_0$ (рис. б) на 0-му етапі розпаду, потоки маси на 1-му етапі розпаду через різні переріз тіла $\xi = \xi_*$ при значеннях коефіцієнта $a_3^{(0)} = 5$ (рис. с) та 20 (рис. д).

Зазначимо, що для етапу $i = 0$ характерне суттєве при поверхневе зменшення сумарної концентрації $\tilde{c}^{(0)}$ для малих часів (крива 1, рис. 3а-б). З часом сумарна концентрація у приповерхневій області зростає (крива 2, рис. 3) і виходить на усталений режим (крива 3, рис. 3), набуваючи монотонно спадного характеру.

Найбільше накопичення частинок у пастках спостерігається в околі границі шару $\xi = 0$ (криві 2б, рис. 3а-б). Причому функція $c_2^{(0)}$ є монотонно спадною, на її значення суттєво впливає коефіцієнт інтенсивності сорбції $a_3^{(0)}$, проте зміна концентрації в часі є незначною, оскільки задіюється механізм розпаду речовини.

Поведінка функції сумарної концентрації на етапі розпаду $i = 1$ суттєво залежить від значення відносного коефіцієнта дифузії $d_0^{(1)} = D_1 / D_0^{(0)}$ (рис. 3с). При цьому для великих $d_0^{(1)}$ характерно повільне зростання концентрації $\tilde{c}^{(1)}$ від поверхні з виходом на максимальне значення в середині тіла (криві б, рис. 3с). У той же час для $D_1 < D_0$ спостерігається значне накопичення домішкової речовини $\mathbf{K}^{(1)}$ в околі поверхні тіла $\xi = 0$, де діє максимальне джерело маси для речовини $\mathbf{K}^{(0)}$ (криві а, рис. 3), що спричинене поведінкою функції концентрації розпадних частинок, які мігрують у поровому просторі. Далі відбувається зростання функцій $c_1^{(1)}$ і $\tilde{c}^{(1)}$, які досягають локального максимуму на проміжку $\xi \in [2; 4]$.

Зазначимо, що для етапу $i = 0$ характерне суттєве зростання потоку розпадної речовини (крива 4-6, рис. 5а) для малих часів $\tau \in [5; 10]$, причому в середині тіла спостерігається різке зменшення $\xi_0 J_{0p}^{(0)}(\tau) / c_0 d_0^{e(0)}$ (криві 3-4, рис. 4а). Час виходу на усталений режим потоку маси для різних перерізів є приблизно однаковим, хоча значення функції $\xi_0 J_{0p}^{(0)}(\tau) / c_0 d_0^{e(0)}$ в стаціонарному режимі різняться від 0,42 для $\xi_* = 2$ до 1,11 для $\xi_* = 6$ (рис. 4а). Кількість розпадної домішкової речовини, що за час $\tau_* = 30$ пройшла через нижню поверхню шару

$\xi = \xi_0$, при значеннях коефіцієнта інтенсивності сорбції на першому етапі розпаду $a_3^{(0)} = 1$ в порівнянні з $a_3^{(0)} = 20$ (криві 1 та 5, рис. 4b) зростає на 65 %.

Зазначимо, що поведінка функції дифузійного потоку речовини $\mathbf{K}^{(1)}$ є монотонно зростаючою в часі для всіх перерізів $\xi = \xi_*$ і фізично обґрунтованих параметрів задачі. При цьому чим ближче до нижньої границі тим більшого значення набуває потік маси на 1-му етапі розпаду часу виходу на усталений режим є пропорційний коефіцієнту інтенсивності сорбції (рис. 4c-d). Тобто, якщо значення коефіцієнта інтенсивності сорбції збільшується в чотири рази, то і час виходу потоку маси на 1-му етапі розпаду на усталений режим збільшується в стільки ж разів.

Висновки. Таким чином для опису процесів масоперенесення домішкових речовин за їх каскадного розпаду у середовищі з пастками сформована математична модель за континуально-термодинамічним підходом. Сформульовані зв'язані крайові задачі дифузії для тіла з пастками, коли концентрація частинок на певному кроці розпаду є джерелом маси розпадної речовини на наступному кроці, яка теж дифундує, сорбується, десорбується і розпадається. Розв'язки відповідних крайових задач каскадного типу побудовані за ітераційною процедурою з використанням функцій Гріна. Таке подання розв'язків дозволяє не тільки проводити кількісний та якісний аналіз концентрацій розпадних домішок, а й знайти їхні потоки маси, як і визначити кількість відповідних речовин, що за певний проміжок часу пройшли через одиницю площі деякої поверхні, наприклад, через нижню границю шару. На основі отриманих формул розроблений пакет програм для комп'ютерного моделювання процесів дифузії у тілі з пастками за каскадного розпаду домішкових речовин. Встановлено вплив вхідних даних на поведінку і значення сумарних концентрацій частинок на всіх етапах каскадного розпаду.

Література

- [1] Бекман И. Н. Радиоактивность и радиация. Радиохимия. Том 1.- МО, Щёлково: Издатель Мархотин П.Ю. 2011. - 398 с.
- [2] Колобашкин В., Рубцов П., Ружанский П., Сидоренко В. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива. — М., Энергоатомиздат, 1983. - 384 с.
- [3] Середина В. П. Загрязнение почв. — Томск : Издательский Дом Томского государственного университета, 2015. — 346 с.
- [4] Большов А., Головизнин В., Дыхне А., Киселев В., Кондратенко П., Семенов В. Новые подходы к оценке безопасности захоронений радиоактивных отходов // Извест. РАН. Энергетика. -2004. - №4. - С. 99-108.
- [5] Головизнин В., Киселев В., Короткин И., Юрков Ю. Прямые задачи неклассического переноса радионуклидов в геологических формациях // Известия РАН. Энергетика. - 2004. - №4. — С. 121-130.
- [6] Моисеев М., Завершинский И. Диффузия в среде со случайно распределенными ловушками // Матем. моделирование и краев. задачи. - 2005, часть 2. — С. 185-187.
- [7] Бурак Я., Чапля С., Чернуха О. Континуально-термодинамічні моделі механіки твердих розчинів. — Київ, Наукова думка. - 2006. - 272 с.
- [8] Чапля С.Я., Чернуха О.Ю. Фізико-математичне моделювання гетеродифузного масопереносу. — Львів: СПОЛОМ. — 2003. — 128 с.

- [9] Chaplya Y., Chernukha O., Bilushchak Y. Contact initial boundary-value problem of the diffusion of admixture particles in a two-phase stochastically inhomogeneous stratified strip // Journal of Mathematical Sciences. — 2012. — Vol. 183, No 1. — P. 83-99.
- [10] Снеддон И. Преобразования Фурье. - М: Изд-во иностр. лит-ры, 1955. - 667 с.

Simulation of admixture diffusion in a medium with traps under cascade decay of particles

Olha Chernukha, Yuri Bilushchak

By the continuum-thermodynamic approach it is proposed the mathematical model of mass transfer of admixture in a multicomponent medium with traps under cascade decay of admixture. Within scope of the model the admixture concentration on certain step of decay is the source of the mass of the decaying substance, that diffuses and can be sorbed, on the next step. Solutions of the initial-boundary value problems of the cascade type are constructed by the iteration procedure with using Green's functions. The formulae are obtained for finding the mass flows, as well as admixture quantity pass through the layer, at each stage of decay. Software for simulation of the diffusion processes in the body with traps under cascade decay of admixture substances is designed.

Компьютерное моделирование диффузии примесных веществ в среде с ловушками при каскадном распаде частиц

Ольга Чернуха, Юрий Билушчак

Согласно континуально-термодинамическому подходу предложена математическая модель массопереноса примесных веществ во многокомпонентной среде с ловушками при каскадном распаде примесей, в рамках которой концентрация частиц на некотором шаге распада является источником массы распадающегося вещества, которое диффундирует и сорбируется, на следующем шаге. Решения краевых задач диффузии каскадного типа построены по итерационной процедуре с использованием функций Грина. Получены формулы для нахождения потоков массы и количества вещества, прошедшего через слой, на каждом этапе распада. Разработан пакет программ для компьютерного моделирования диффузионных процессов в теле с ловушками при каскадном распаде примесных веществ.

Отримано 14.04.17