

МОДЕЛИРОВАНИЕ ПРОЦЕССОВ ИОНИЗАЦИИ В АТМОСФЕРЕ, ИНИЦИИРУЕМЫХ РАДИОАКТИВНЫМИ ВЫБРОСАМИ

В.П. Григорьев, О.В. Томашова

Томский политехнический университет

E-mail: am@am.tpu.ru

Представлена модель ионизации влажного воздуха, инициируемая радиоактивными выбросами в нижние слои атмосферы. Учитываются все основные плазмохимические реакции. Проведен предварительный анализ параметров нарабатываемой плазмы и оценка скорости образования отрицательных ионов.

Введение

Обнаружение и ликвидация радиоактивных загрязнений нижних слоев атмосферы представляет одну из наиболее важных экологических проблем. В связи с этим большое внимание уделяется разработке новых безопасных методов обнаружения радиоактивных выбросов в атмосферу. Перспективными являются методы дистанционного обнаружения, основанные на взаимодействии электромагнитных волн с ионизованными образованиями (облаками), которые формируются в атмосфере, подверженной радиоактивному загрязнению.

Первые экспериментальные и теоретические исследования [1, 2] указали на возможность обнаружения радиоактивных слоев в атмосфере по измерению реакции ионизованного атмосферного воздуха на электромагнитное излучение по радиолокационному отклику. Однако для получения надежных измерений на больших расстояниях (десятки километров) и идентификации радионуклидного состава загрязнений необходимо более полно знать структуру и ионный состав плазменных облаков, образующихся в результате радиоактивного распада. Существующие модели ионизации воздуха при радиоактивных распадах не учитывают основные плазмохимические процессы при атмосферном давлении – образование комплексных ионов [3] как положительных, так и отрицательных. Поскольку рекомбинация комплексных ионов происходит значительно быстрее, чем простых молекулярных ионов, то это существенно изменяет плазменный состав и характеристики плазмы.

Уравнения плазмохимических реакций

Нижние слои атмосферы, которые подвергаются радиоактивному загрязнению, в основном состоят из молекулярного азота N_2 , составляющего 78,09 % от объема сухого воздуха, и молекулярного кислорода O_2 – 20,95 %. Такой состав сохраняется вплоть до высот 90 км. Учитывая это, и выделяя плазмохимические реакции с наиболее высокими постоянными взаимодействия, запишем основные уравнения, описывающие наработку плазмы продуктами радиоактивных распадов радионуклидов во влажной атмосфере:

$$\begin{aligned} \partial[N_2^+]/\partial t = v_1[N_2] - n_e[N_2^+]\alpha_{r1}^{(2)} - \\ - [N_2^+X_4^+(N_2)[N_2]^2 - [O_2^-][N_2^+]\alpha_r^-, \end{aligned} \quad (1)$$

$$\partial[N_4^+]/\partial t = [N_2^+X_4^+(N_2)[N_2]^2 - n_e[N_4^+]\alpha_{r1}^{(4)}, \quad (2)$$

$$\begin{aligned} \partial[O_2^+]/\partial t = v_2[O_2] - n_e[O_2^+]\alpha_{r2}^{(2)} - \\ - [O_2^+X_4^+(O_2)[O_2] - [O_2^-][O_2^+]\alpha_r^-, \end{aligned} \quad (3)$$

$$\partial[O_4^+]/\partial t = [O_2^+X_4^+(O_2)[O_2]^2 - n_e[O_4^+]\alpha_{r2}^{(4)}, \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \partial[O_2^-]/\partial t = n_eK_{s1}[O_2][N_2] + n_eK_{s2}[O_2]^2 - [O_2^-X_4^- \\ (O_2)[O_2]^2 - [O_2^+][O_2^-]\alpha_r^- - [N_2^+][O_2^-]\alpha_r^- K_{d1}[O_2] \times \\ \times [N_2] - K_{d2}[O_2^-][O_2] + K_{s3}[O_2]n_e[H_2O] - \\ - K_{d3}[O_2^-][H_2O], \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \partial[H_2O]/\partial t = - n_e[H_2O]K_{дис} - n_e[H_2O]K_{дн}^{O^-} - \\ - n_e[H_2O]K_{дн}^{H^-} - K_4[O^-][H_2O], \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \partial[O^-]/\partial t = n_e[H_2O]K_{дн}^{O^-} - K_6n_e[O^-] - \\ - K_4[O^-][H_2O], \end{aligned} \quad (7)$$

$$\begin{aligned} \partial[H^-]/\partial t = n_e[H_2O]K_{дн}^{H^-} - \\ - K_8n_e[H^-] - K_7[H^-][O_2] - K_5[H^-][H_2O], \end{aligned} \quad (8)$$

$$\partial[O_4^-]/\partial t = [O_2^-X_4^-(O_2)[O_2]^2 - [O_4^-][N_2^+]\alpha_r^-, \quad (9)$$

$$\begin{aligned} \partial n_e/\partial t = v_1[N_2^+] + v_2[O_2^+] - n_e[N_2^+]\alpha_{r1}^{(2)} - \\ - n_e[O_2^+]\alpha_{r2}^{(2)} - n_e[N_4^+]\alpha_{r1}^{(4)} - \\ - n_e[O_4^+]\alpha_{r2}^{(4)} - n_eK_{s1}[O_2][N_2] - n_eK_{s2}[O_2]^2 + \\ + K_{d1}[O_2^-][N_2] + K_{d1}[O_2^-][O_2]. \end{aligned} \quad (10)$$

Здесь квадратными скобками обозначены концентрации соответствующих частиц.

n_e – концентрация электронов плазмы и ионизирующих частиц, v_1, v_2 – частота ионизации молекул азота и кислорода воздуха [2, 3], $[N_2]=2,1 \times 10^{19} \text{ см}^{-3}$ – плотность молекул азота, $[O_2]=5,6 \cdot 10^{18} \text{ см}^{-3}$ – плотность молекул кислорода.

Постоянные взаимодействия плазмохимических реакций в уравнениях (1–10) описываются выражениями [3–5]:

$K_{s1}=1,6 \cdot 10^{-31} \text{ см}^6/\text{с}$ – скорость тройного прилипания электрона к молекулам кислорода с участием молекул азота;

$K_{s2}=1,4 \cdot 10^{-29}(0,026/T_e)\exp[-0,052/T_e] \text{ см}^6/\text{с}$ – скорость тройного прилипания электрона с участием двух молекул кислорода;

$K_{d1}=1,9 \cdot 10^{-12}(T_g/300)^{3/2}\exp[-4990/T_g] \text{ см}^3/\text{с}$,
 $K_{d2}=2,7 \cdot 10^{-10}(T_g/300)^{1/2}\exp[-5590/T_g] \text{ см}^3/\text{с}$ – скорости разрушения отрицательных ионов O_2^- ;
 $X_4^+(N_2)=5,0 \cdot 10^{-29} \text{ см}^6/\text{с}$, $X_4^+(O_2)=2,5 \cdot 10^{-30} \times$

$\times (300/T_e)^{0,75} \text{ см}^6/\text{с}$ — скорость конверсии молекулярных ионов N_2^+ и O_2^+ в сложные ионы;

$X_4(\text{O}_2^-) = 0,4 \cdot 10^{-30} \text{ см}^6/\text{с}$ — скорость преобразования молекулярных отрицательных ионов в O_4^- ;

$\alpha_{r1}^{(2)} = 2,0 \cdot 10^{-7} (0,026/T_e)^{0,39} \text{ см}^3/\text{с}$, $\alpha_{r2}^{(2)} = 2,1 \cdot 10^{-7} (0,026/T_e)^{0,56} \text{ см}^3/\text{с}$ — скорость диссоциативной рекомбинации ионов N_2^+ и O_2^+ ;

$\alpha_{r1}^{(4)} = 2,0 \cdot 10^{-6} (0,026/T_e)^{0,5} \text{ см}^3/\text{с}$, $\alpha_{r2}^{(4)} = 1,4 \times 10^{-7} (0,026/T_e)^{0,5} \text{ см}^3/\text{с}$ — скорость рекомбинации комплексных ионов N_4^+ и O_4^+ ;

$\alpha_r \approx 2,0 \cdot 10^{-6} \text{ см}^3/\text{с}$ — коэффициент рекомбинации отрицательных ионов кислорода с положительными ионами N_2^+ и O_2^+ ;

$K_{\text{дис}} \approx (10^{-17} \dots 10^{-18}) \text{ м}^3/\text{с}$ — скорость изменения концентрации паров воды за счет процесса распада молекул H_2O ;

$K_{\text{дн}}^{\text{O}^-} = 1,3 \cdot 10^{-16} \text{ м}^3/\text{с}$, $K_{\text{дн}}^{\text{H}^-} = 5,0 \cdot 10^{-16} \text{ м}^3/\text{с}$ — скорость диссоциативного прилипания электронов к молекулам воды;

$K_{\text{д3}} = 1,6 \cdot 10^{-40} \text{ м}^6/\text{с}$ — скорость гибели ионов O_2^- при столкновении с молекулами воды;

$K_{\text{с3}} = 1,4 \cdot 10^{-41} \text{ м}^6/\text{с}$ — скорость тройного прилипания электрона к молекулам кислорода с участием молекул воды;

$K_4 = 1,4 \cdot 10^{-15} \text{ м}^3/\text{с}$, $K_5 = 3,8 \cdot 10^{-15} \text{ м}^3/\text{с}$ — скорости реакции ионно-молекулярной конверсии, ведущей к образованию устойчивого отрицательного иона гидроксила и молекулярного водорода;

$K_6 = 5,0 \cdot 10^{-14} \text{ м}^3/\text{с}$ — скорость гибели ионов O^- в результате их разрушения электронным ударом;

$K_7 = 1,2 \cdot 10^{-15} \text{ м}^3/\text{с}$ — скорость ассоциативного отрыва электрона;

$K_8 = 4,0 \cdot 10^{-15} \text{ м}^3/\text{с}$ — скорость гибели H^- в результате их разрушения электронным ударом;

T_e — температура электронов;

T_g — температура газа.

Нелинейная система уравнений (1–10) описывает наработку основных частиц в плазменном облаке. Плотность нарабатываемых частиц зависит от времени и координат и определяется распределением радиоактивных выбросов в пространстве и времени, их качественным составом и уровнем активности.

Так как скорости плазмохимических процессов и параметры образующейся плазмы (например: проводимость, коэффициенты диффузии и др.) существенно зависят от температуры плазменных электронов, то для полноты дополним систему (1–10) уравнением для T_e . Используя известные уравнения [6] и, в общем случае предполагая наличие внешней электромагнитной волны с амплитудой E_0 и частотой ω , запишем уравнение для T_e в виде:

$$\partial T_e / \partial t = \frac{1}{3} \frac{e^2 E_0^2 c^2 v_m}{mc^2 (v_m + w^2)} - \aleph_{ek} v_m (T_e - T_g). \quad (11)$$

Здесь $\aleph_{ek}$ — средний коэффициент передачи энергии от плазменных электронов тяжелым частицам, зависящий от T_e и связанный с упругим и неупругим столкновениями, v_m — эффективная частота столкновений плазменных электронов, равная

суммарной частоте упругих v_i и неупругих v_i столкновений.

В широкой области низкотемпературной плазмы в плотном газе v_m определяется упругими столкновениями плазменных электронов с нейтральными частицами и равна [6]

$$v_m \approx v_{ea} = 0,63 \cdot 10^{-8} N_g (T_e/0,026)^{1/2}, \quad (12)$$

где N_g — концентрация нейтральных частиц.

В сильных электрических полях и условиях, близких к стационарным, для определения T_e удобно использовать эмпирическую зависимость от параметра (E_0/N_g) [7]

$$T_e = 0,026 \cdot [10^{20} (E_0/N_g)]^{0,6}, \text{ эВ.}$$

Поле E_0 берется в В/см, N_g в см^{-3} .

Приведенная выше система уравнений совместно с учетом состава и интенсивности радиоактивных выбросов в атмосферу позволяет определять параметры плазмы, включая ее ионный состав, в атмосфере. Решение этой системы уравнений в общем случае требует применения численных методов. Однако для оценки влияния отдельных механизмов взаимодействия на ионный состав плазмы можно использовать некоторые упрощения. В частности, для оценки роли одного из главных взаимодействий — прилипания электронов к нейтральным молекулам кислорода можно рассмотреть сухой воздух и ограничиться уравнением (10) в виде

$$dn_e / dt = J - \alpha_r n_e^2 - n_e v_s + J_d, \quad (13)$$

где $v_s = K_{s2} [\text{O}_2]^2$ — частота прилипания низкоэнергетичных электронов в воздухе, J — скорость наработки электронов, α_r — коэффициент рекомбинации электронов с положительными ионами, $J_d = [\text{O}_2^-] \times (K_{d1} [\text{N}_2] + K_{d2} [\text{O}_2])$ — удельная скорость отлипания электронов.

В установившемся режиме решение уравнения (13) имеет вид

$$n_e = -\frac{v_s}{2\alpha_r} + \left(\frac{v_s^2}{4\alpha_r^2} + \frac{J_1}{\alpha_r} \right)^{1/2}, J_1 = J + J_d. \quad (14)$$

В предельных случаях из (14) получим:

$$a) \frac{v_s^2}{4\alpha_r^2} \ll \frac{J_1}{\alpha_r} \text{ — основные потери электронов}$$

обусловлены рекомбинацией.

$$n_e \cong \left(\frac{J_1}{\alpha_r} \right)^{1/2}; \quad (15)$$

$$b) \frac{v_s^2}{4\alpha_r^2} \gg \frac{J_1}{\alpha_r} \text{ — основным процессом гибели}$$

электронов является их прилипание к нейтральным частицам.

$$n_e \cong \frac{J_1}{v_s}. \quad (16)$$

Для плотности положительных ионов n^+ в установившемся режиме справедлива оценка

$$n^+ = \left(\frac{J}{\alpha_r} \right)^{1/2}. \quad (17)$$

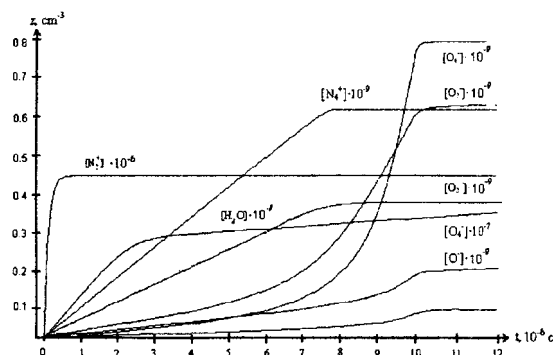


Рисунок. Зависимости концентраций ионов z от времени t при $T_g = 300$ К, $T_e = 1$ эВ

Учитывая молекулярный состав воздуха при давлении $\sim 10^5$ Па в области температур плазменных электронов $1 \dots 10$ эВ, получим, что частота прилипания электронов $\nu_s \sim 3 \cdot 10^7 \dots 2 \cdot 10^6$ с $^{-1}$, а коэффициент рекомбинации лежит в пределах $\alpha_r \approx (0,48 \dots 0,2) \cdot 10^{-7}$ см 3 /с.

Отсюда следует, что для существования электронной компоненты плазмы с $n_e \sim 10^6$ см $^{-3}$ при атмосферном давлении воздуха необходимо, чтобы скорость наработки электронов была не меньше $J_1 \sim 10^{12}$ см $^{-3}$ с $^{-1}$. В обычных условиях это возможно только при достаточно высоком уровне активности выбросов. При наличии внешнего электрического

поля (электромагнитный импульс локатора или дополнительная подсветка) эта задача существенно облегчается, так как в этом случае сильно возрастает скорость реакции разрушения отрицательных ионов кислорода. Так, при $E_0 \sim 10$ кВ/см, что ниже предела пробоя воздуха, $K_{d1} \sim K_{d2} \sim 10^{12}$ см $^{-3}$ с $^{-1}$, и равновесие между процессами образования ионов O_2^- и их разрушением стабилизируется при $[O_2^-] \ll n_e$. В результате можно получить плазму с высокой концентрацией электронов.

В общих предположениях на основе уравнений (1–10) были проведены расчеты по ионизации воздуха радиоактивными загрязнениями. Результаты моделирования приведены на рисунке.

Заключение

Представленная в работе модель ионизации воздуха при радиоактивных загрязнениях атмосферы позволяет определить ионный состав и плотность нарабатываемой плазмы в зависимости от состава радионуклидных выбросов в атмосферу.

Естественным развитием данной модели является учет влияния внешнего электромагнитного поля на процессы ионизации и влияние ионизационных процессов на стимулирование конденсации и выпадение осадков с загрязнениями.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Боярчук К.А., Кононов Е.Н., Ляхов Г.А. Радиолокационное обнаружение областей локальной ионизации в приземных слоях атмосферы // Письма в ЖТФ. — 1993. — Т. 19, вып. 6. — С. 67–72.
2. Диденко А.Н., Усов Ю.П., Юшков Ю.Г., Григорьев В.П. и др. Использование импульсных радиолокаторов СВЧ диапазона для контроля радиоактивных выбросов в атмосферу // Атомная энергия. — 1996. — Т. 80, вып. 1. — С. 47–53.
3. Смирнов Б.М. Ионы и возбужденные атомы в плазме. — М.: Атомиздат, 1974. — 456 с.
4. Александров Н.Л. Трехчастичное прилипание электронов к молекуле // Успехи физических наук. — 1988. — Т. 154, вып. 2. — С. 177–122.
5. Елецкий А.В., Смирнов Б.М. Диссоциативная рекомбинация электрона и молекулярного иона // Успехи физических наук. — 1982. — Т. 136, вып. 1. — С. 25.
6. Гинзбург В.Л. Распространение электромагнитных волн в плазме. — М.: Наука, 1967. — 684 с.

УДК 541.123.012:546.79:661.879.402

ФТОРИДЫ ГАЛОГЕНОВ В ТЕХНОЛОГИИ ЯДЕРНОГО ТОПЛИВА. СИНТЕЗ И ПРИМЕНЕНИЕ

И.И. Жерин

Томский политехнический университет
E-mail: gerin_i@phtd.tpu.edu.ru

Приведен обзор результатов экспериментальных исследований синтеза галогенфторидов, их физико-химических свойств, кинетики фторирования галогенфторидами некоторых урансодержащих соединений. Показано что фторирование подчиняется закономерностям диффузионной кинетики.

Фторидные методы играют важную роль в современной технологии ядерных материалов и являются перспективными при переработке облученного ядерного топлива. Применение этих методов позво-

ляет не только сократить технологическую схему переработки отработанного топлива, но и существенно уменьшить объемы радиоактивных отходов, особенно жидких [1–4]. Процессы фторирова-