

ОЦЕНКА КОНЦЕНТРАЦИИ ЭЛЕМЕНТАРНЫХ ИОНОВ ПРИ РАДИОАКТИВНОМ ЗАГРЯЗНЕНИИ ТРОПОСФЕРЫ

© К.А.Боярчук, Ю.П.Свирко

В основе ряда перспективных методик мониторинга радиоактивных загрязнений тропосферы лежит измерение концентрации заряженных частиц (ионов и электронов), образующихся в подверженном воздействию ионизирующего излучения воздухе $[1-3]$. Естественно, что кинетические процессы в атмосфере оказывают существенное влияние на соотношение между концентрациями заряженных частиц различных типов. Поэтому количественное измерение уровня радиационного фона предполагает детальный анализ процесса установления равновесных концентраций заряженных частиц в атмосфере.

Излучение продуктов ядерных реакций (γ , либо рентгеновское излучение, поток α - и β -частиц, протонов и нейтронов), происходящих в атмосфере при загрязнении ее продуктами топливного цикла атомных электростанций, приводит к ионизации и возбуждению молекул газов, входящих в состав воздуха. Вероятность ионизации молекулы в основном определяется энергией частицы и потенциалом ионизации, которая может быть как прямой, при которой образуется положительный молекулярный ион, так и диссоциативной, когда взаимодействие частицы с двухатомной молекулой кислорода или азота приводит к появлению атома и атомарного иона $[4]$. Экспериментальные данные по зависимости эффективности ионизации от энергии электронов для различных ионов указывают, что в нижних слоях атмосферы в основном происходит прямая ионизация — ее сечение почти на порядок выше сечения диссоциативной ионизации $[5]$. Таким образом, на первом этапе жесткое излучение приводит к появлению в атмосфере положительных ионов и свободных электронов. Дальнейшее развитие системы электроны-ионы зависит от состава, плотности, влажности, температуры воздуха и характера ионизирующего излучения.

Особого внимания заслуживают процессы взаимодействия ионов с молекулами воды. В обычных условиях молекулы H_2O за время менее 10^{-7} с образуют оболочку вокруг элементарного иона и в результате получают средние ионы типа $O_2^- \cdot (H_2O)_n$, $NO_3^- \cdot (HNO_3)_n$, $H_3O^+ \cdot (H_2O)_n$,

$H^+ \cdot (H_2O)_n$, которые затем формируются в сложные комплексы ионы или кластеры [5,6]. Подобные ионы оказывают существенное влияние на свойства атмосферы лишь в тех случаях, когда содержание элементарных ионов мало [7]. Ионные комплексы имеют значительное время жизни, и по мере роста интенсивности ионизирующего излучения их концентрация будет нарастать до тех пор, пока не будут связаны все молекулы воды. Концентрация же элементарных ионов будет увеличиваться. Так, согласно экспериментальным измерениям изменения концентрации ионов у поверхности земли под действием слабого радиоактивного источника, концентрация средних ионов не растет при усилении ионообразования, а поддерживается на определенном низком уровне $\sim 20 \text{ см}^{-3}$ при значительном повышении концентрации легких ионов (до 1500 см^{-3}) [8].

Целью настоящей работы является теоретическое исследование динамики элементарных ионов, образующихся в результате загрязнения тропосферы продуктами топливного цикла атомных электростанций. В качестве первого приближения можем пренебречь процессами взаимодействия ионов с молекулами воды и ее ионами (OH^+ , H^- , H_2O^+ , H_3O^+), а также с другими малыми составляющими компонентами воздуха. Не будем учитывать также изменение химического состава нейтральных компонент воздуха под действием радиоактивного излучения и ограничимся лишь ион-молекулярными реакциями, сечение которых обычно на несколько порядков превышает сечение реакций взаимодействия нейтральных молекул [9].

При ионизации атмосферы γ -квантами либо комптоновскими электронами на каждый 1 МэВ энергии первичной частицы приходится около 30 тысяч электрон-ионных пар. В результате актов ионизации образуются положительные ионы и свободные электроны. В таблице показаны основные ион-молекулярные реакции, определяющие кинетику малых ионов в нижних слоях атмосферы.

Электроны, у которых энергия близка к тепловой, могут захватываться положительными ионами, а также молекулами и атомами, обладающими сродством к электрону (прежде всего это молекулы кислорода). Обратной по отношению к реакциям ионизации является рекомбинация положительных ионов и электронов (реакции 1 и 2 в таблице). Важно, что у поверхности земли, т. е. при больших давлениях, наиболее вероятным каналом уменьшения числа свободных электронов оказывается прилипание электронов к молекулам кислорода с образованием отрицательных ионов O_2^- (реакция 3). Последние затем рекомбинируют с положительными ионами (реакции 6-а и 6-б).

Еще одним важным механизмом исчезновения отрицательных ионов в нижних слоях атмосферы является разрушение их путем отлипания электронов [10]. На этот процесс существенно влияет присутствие в газе возбужденных молекул, которые при столкновениях с отрицательными ионами освобождают электроны (реакция 4 в таблице). Поэтому радиоактивное загрязнение или частичное повышение интенсивности ультрафиолетового излучения может значительно увеличить концентрацию возбужденных молекул и привести к изменению картины ионного баланса тропосферы.

В нижних слоях атмосферы существенную роль играют процессы рекомбинации между положительными и отрицательными ионами (реакции 6-а, б) [10]. При высоких давлениях частые столкновения ионов с молекулами мешают приблизиться им друг к другу для взаимной нейтрализации, поэтому коэффициент ионной рекомбинации в воздухе сильно зависит от давления. Максимального значения $\alpha \sim 10^{-6} \text{ см} \cdot \text{с}^{-1}$ он достигает при $P \sim 1 \text{ атм.}$ [4,10]. Продукты реакции рекомбинации образуются, как правило, в возбужденном состоянии, что в свою очередь оказывает влияние на концентрацию свободных электронов через реакцию 4. Дополнительным каналом увеличения концентрации возбужденных молекул кислорода и уменьшения концентрации ионов азота является так называемый процесс перезарядки (реакция 5).

Воздействие ионизирующего излучения на молекулы кислорода и азота мы будем учитывать задавая число свободных электронов Q , образующихся в единице объема в секунду. В настоящее время детальные измерения этого параметра проведены в широком диапазоне и, что существенно для приложений, экспериментально установлено соответствие между значением Q и уровнем и характеристиками загрязнения атмосферы. Так, естественному фону в $20 \text{ мкР} \cdot \text{ч}^{-1}$ соответствует значение $Q_1 \sim 10 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ [5]. При штатном выбросе из вентиляционной трубы АЭС, при котором скорость поступления продуктов ядерного распада в атмосферу составляет около $10^{-4} \text{ Ки} \cdot \text{с}^{-1}$, $Q_2 \sim 5 \cdot 10^2 \text{ см} \cdot \text{с}^{-1}$ [11]. А в 30-километровой зоне вокруг Чернобыльской АЭС скорость образования электрон-ионных пар была на 3-5 порядков выше волнового значения [5]. Наконец, при аварийном выбросе (не путать с реальной аварией) $Q_3 \sim 2 \cdot 10^8 \text{ см}^{-3} \times \text{с}^{-1}$ [11].

В нижних слоях атмосферы происходит преимущественно прямая ионизация с образованием молекулярных ионов азота или кислорода, скорости нарастания концентрации которых будут равны $0.72Q$ и $0.28Q$ соответственно. При ма-

№	Реакция	Скорость α , см ³ ·с ⁻¹	Ссылка
1	$O_2^+ + e \rightarrow O_2$	$2.2 \cdot 10^{-7}$	[9]
2	$N_2^+ + e \rightarrow N_2$	$2.9 \cdot 10^{-7}$	[9]
3	$e + O_2 + O_2 \rightarrow O_2^- + O_2$	$2.5 \cdot 10^{-30}$	[10], [4]
4	$O_2^- + O_2^* \rightarrow O_2 + O_2 + e$	$2.0 \cdot 10^{-10}$	[10]
5	$N_2^+ + O_2 \rightarrow O_2^+ + N_2$	$2.0 \cdot 10^{-11}$	[4], [5]
6-а	$N_2^+ + O_2^- \rightarrow O_2^* + N_2$	10^{-6}	[4], [5]
6-б	$O_2^+ + O_2^- \rightarrow O_2^* + O_2$	10^{-6}	[4], [5]

лой интенсивности ионизирующего излучения существенно изменения состава воздуха не происходит, поэтому мы будем считать концентрации молекул кислорода и азота постоянными.

Система уравнений для концентраций продуктов реакций, входящих в таблицу, имеет вид (N_L — число Лошмидта):

$$\begin{aligned} \frac{dN_0}{dt} &= Q - \alpha_1 N_0 N_1 - \alpha_2 N_0 N_2 - \alpha_3 (0.28 N_L)^2 N_0 + \alpha_4 N_4 N_3, \\ \frac{dN_1}{dt} &= 0.28Q - \alpha_1 N_0 N_1 + \alpha_5 (0.28 N_L) N_2 - \alpha_6 N_1 N_3, \\ \frac{dN_2}{dt} &= 0.72Q - \alpha_2 N_0 N_2 - \alpha_5 (0.28 N_L) N_2 - \alpha_6 N_2 N_3, \quad (1) \\ \frac{dN_3}{dt} &= \alpha_3 (0.28 N_L)^2 N_0 - \alpha_6 N_1 N_3 - \alpha_6 N_2 N_3 - \alpha_4 N_4 N_3, \\ \frac{dN_4}{dt} &= \alpha_3 (0.28 N_L)^2 N_0 + 2\alpha_6 N_1 N_3 + \alpha_6 N_2 N_3 - \alpha_4 N_4 N_3. \end{aligned}$$

Здесь N_{0-4} — количество свободных электронов, ионов O_2^+ , N_2^+ и O_2^- и молекул O_2^* в единице объема соответственно. Система уравнений (2) описывает временную эволюцию числа элементарных ионов, образующихся в атмосфере в результате первичных реакций. Нетрудно убедиться, что эта система удовлетворяет закону сохранения электрического заряда

$$N_0 + N_3 = N_1 + N_2.$$

На рис. 1 и 2 приведены зависимости концентраций электронов, отрицательных ионов O_2^- и положительных ионов N_2^+ ,

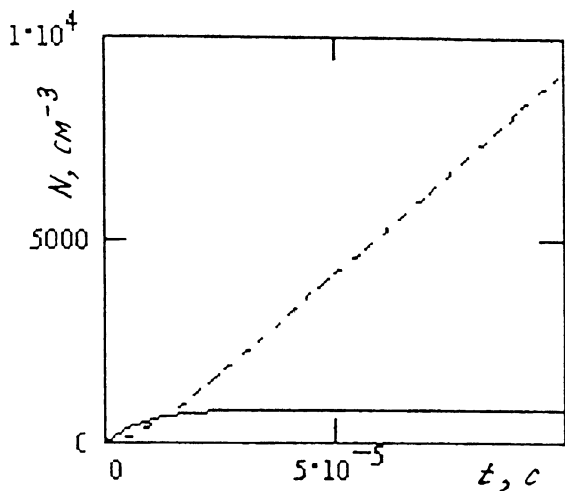


Рис. 1. Зависимость изменения концентрации N (cm^{-3}) электронов (сплошная линия) и ионов O_2^- (штриховая линия) от времени (с).

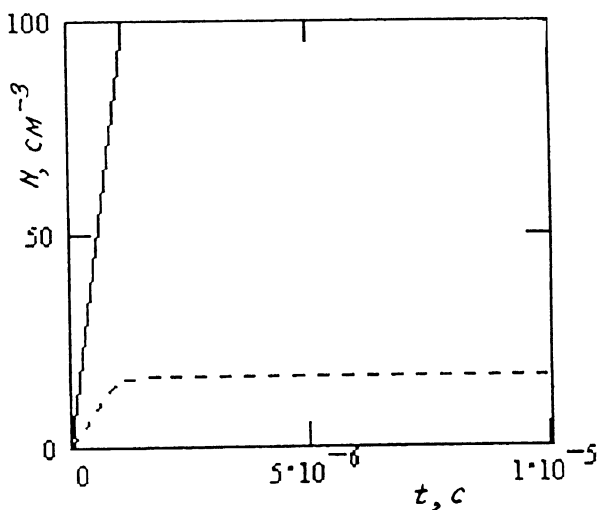


Рис. 2. Зависимость изменения концентрации N (cm^{-3}) положительных ионов O_2^+ (сплошная линия) и N_2^+ (штриховая линия) от времени (с).

O_2^+ , полученные в результате решения системы при значении $Q = 10^8 \text{ см}^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$. Концентрация же возбужденных молекул кислорода не превысила значения 10^{-5} см^{-3} . Основной вывод состоит в том, что концентрация положительных молекулярных ионов азота быстро достигает насыщения за время порядка 10^{-6} с и концентрация их существенно меньше концентрации положительных и отрицательных молекулярных ионов кислорода. Поэтому методы дистанционного мониторинга радиоактивного загрязнения атмосферы [11] должны базироваться в основном на определении концентрации молекулярных ионов кислорода. Это представляется особенно существенным для методов, основанных на эффекте СВЧ-управляемого вынужденного рассеяния Мандельштама-Бриллюэна в ионизированном газе [2].

Работа поддержана Российским фондом фундаментальных исследований, проект № 95-02-16540.

Список литературы

- [1] Боярчук К.А., Кононов Е.А., Лятов Г.А. // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. В. 6. С. 67-72.
- [2] Боярчук К.А., Лятов Г.А., Свирко Ю.П. // ЖТФ. 1992. Т. 62. С. 95-102.
- [3] Потапов А.И., Черкасов В.Н. Лазерные методы дистанционного контроля атмосферы, СПб.: СЗПИ, 1992. 127 с.
- [4] Пшежецкий С.Я., Дмитриев М.Т. Радиационные физико-химические процессы в воздушной среде. М.: Атомиздат, 1978. 182 с.
- [5] Смирнов В.В. Ионизация в тропосфере. СПб.: Гидрометеиздат, 1992. 312 с.
- [6] Сальм Я.Й., Лутс А.М. // Учен. зап. Тарт. гос. ун-та. 1988. Т. 809. С. 64-70.
- [7] Елецкий А.В., Смирнов Б.М. // УФН. 1989. Т. 159. В. 1. С. 45-81.
- [8] Таммет Х.Ф., Итер Х.Р., Сальм Я.Й. // Учен. зап. Тарт. гос. ун-та. 1987. В. 755. С. 29-44.
- [9] Медведев Ю.А., Степанов Б.М., Федорович Г.В. Физика радиационного возбуждения электромагнитных полей. М.: Атомиздат, 1980. 103 с.
- [10] Райзер Ю.П. Физика газового разряда. Изд. 2-е. М.: Наука, 1992. 536 с.
- [11] Boyarchuk K.A., Lyakhov G.A., Svirko Yu.P., Suyazov N.V., Didenko A.N., Yushkov Yu.G. // Bull. Russ. Acad. Sci. Physics. Suppl. Phys. of Vibrations. 1995. V. 59. N 4. P. 222-236.

Институт общей физики
РАН

Поступило в Редакцию
1 апреля 1996 г.