

03;04;12

Особенности ионизации атмосферного воздуха при радиоактивном загрязнении

© К.А. Боярчук, А.В. Карелин, А.М. Ломоносов

Институт общей физики РАН,
117942 Москва, Россия

(Поступило в Редакцию 28 января 1999 г.)

Исследованы особенности процесса неоднородной ионизации при радиоактивном загрязнении нижних слоев атмосферы. Предложена модель трековой ионизации атмосферы, учитывающая элементарные процессы в треках: кинетику, молекулярную диффузию и дрейф ионов в электрическом поле. Определены границы применимости данной модели.

Атмосферный воздух, находящийся под воздействием жесткого ионизатора, является низкотемпературной рекомбинационно-неравновесной плазмой, в которой образуется большое количество различных заряженных и нейтральных компонентов с концентрациями, не характерными для обычных условий [1]. Считается, что по отношению к ион-молекулярным процессам газовые среды являются более простыми, чем жидкости и твердые тела, так как вследствие низкой удельной массы газов при прохождении сквозь них высокоэнергетичных частиц практически отсутствуют трековые эффекты и первичные продукты радиолитиза (электроны, ионы, свободные радикалы, возбужденные молекулы) распределены в объеме равномерно [2]. Это существенно упрощает теоретический анализ молекулярно-ионной кинетики газов. Поэтому при анализе закономерностей радиохимической конверсии атмосферной среды обычно предполагается равномерная по объему ионизация [3–5]. Однако при достаточно высоких давлениях 0.1–1 МПа в воздухе при комнатной температуре могут образовываться микрообласти с высокой концентрацией ионизированных частиц — так называемые треки высокоэнергетичных корпускулярных излучений (протонов, α - и β -частиц и др.), в которых в большинстве случаев локализованы продукты радиолитиза [1,2]. Следовательно, при изучении процесса образования отрицательных и положительных ионов в воздушной среде при радиоактивном загрязнении следует различать объемную ионизацию рентгеновскими или γ -лучами и локальную ионизацию высокоэнергетичными частицами с учетом трековой структуры.

Основное воздействие ионизирующих излучений на воздушную среду обусловлено вторичными электронами, возникающими при ионизации атомов и молекул. Энергия этих электронов находится в диапазоне от тепловой энергии до энергии быстрых первичных частиц. Структура трека зависит от вида и энергии частицы, которая расходует на образование вторичных электронов, разлетающихся в стороны от траектории частицы — основного трека и формирующих шпоры. В случае α -частицы или осколка деления шпоры расположены настолько близко друг к другу, что вокруг основного трека формируется сплошная ионизированная область.

Целью данной работы является исследование влияния трековой структуры на общие кинетические процессы, происходящие в ионизированной атмосфере.

Последовательной теории, описывающей процессы на следах ионизирующих частиц, в настоящее время нет. Поэтому экспериментальные результаты часто интерпретируют с помощью упрощенных теоретических моделей элементарных процессов в треках Онсагера и Яффе. Первая разрабатывалась для описания процессов рекомбинации на следах высокоэнергетичных частиц в плотных газовых средах при давлении ~ 20 МПа [6], вторая [7] была предназначена для описания процессов рекомбинации на следах α -частиц в газе при давлении ~ 1 МПа, поэтому она более удобна для описания процессов в тропосфере. Основное положение теории Яффе заключается в следующем: образовавшиеся в результате прохождения частиц ионы сосредоточены в цилиндре, построенном вокруг траектории частицы. Ион-молекулярные процессы в таких треках могут протекать по другим каналам, чем в случае объемной ионизации, осуществляемой рентгеновскими лучами или γ -квантами.

Для воздушной среды нижних слоев тропосферы будем считать, что положительные и отрицательные ионы одинаково распределены по объему цилиндра вокруг траектории частицы. Оценим поперечный размер трека, считая, что он определяется средней длиной шпор, ионизированных следов пробега вторичных электронов, формирующих ионизированную область вокруг основного трека.

Величина сечения ионизации воздуха α -частицей $\sigma \sim 5.1 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2$ [8]. Мы можем определить длину свободного пробега l α -частицы в воздухе $l = 1/(\sigma N_L) = 7.3 \cdot 10^{-5} \text{ cm}$, где N_L — число Лошмидта ($2.69 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$), т.е. среднее расстояние между шпорами. Полный пробег L α -частицы с энергией $E_\alpha \sim 5 \text{ MeV}$ в тропосферном воздухе не превышает 4 с тогда средняя потеря энергии ΔE на один акт ионизации будет равна $\Delta E = (L/l)^{-1} E_\alpha \approx 100 \text{ eV}$, это же значение будет соответствовать энергии вторичных электронов. Воспользовавшись бете-борновским приближением (для применения борновского приближения к электронам достаточно, чтобы скорость налетающего электрона была

велика по сравнению со скоростями атомных электронов), определим сечение ионизации вторичными электронами молекул воздуха согласно [9]

$$\sigma_2 = 4 \cdot 10^{-14} \xi \frac{\ln(\Delta E/I)}{\Delta E I} \approx 3 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2 \quad (1)$$

где $I = 15.58 \text{ eV}$ и $\xi = 6$ — потенциал ионизации и число эквивалентных электронов молекулы азота.

За минимальный радиус трека примем длину свободного пробега вторичного электрона $r = \frac{1}{(\sigma_2 N_L)} \approx 1.3 \cdot 10^{-4} \text{ cm}$. Объем трека соответственно будет $V = \pi r^2 L \approx 2 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3$.

Определим теперь концентрацию электрон-ионных пар, образованных частицей в этом объеме. Из формулы для кинетической энергии можно определить скорость α -частицы в воздухе $v = \sqrt{2E_\alpha/M} \approx 1.5 \cdot 10^9 \text{ cm/s}$, где M и E_α — масса и энергия α -частицы. Усредненная по времени пролета мощность энергоклада $w = E_\alpha/Vt \approx 3 \cdot 10^3 \text{ W/cm}^3$ при условии, что характерное время пролета частицы $t = L/v \approx 2 \cdot 10^{-9} \text{ s}$. Частота ионизации определяется следующим образом $\nu = \frac{w}{(N_L E_i)} \approx 11 \text{ s}^{-1}$, где E_i — энергия, необходимая для создания одной электрон-ионной пары в воздухе ($\sim 34 \text{ eV}$). В итоге начальная концентрация электронов в треке α -частицы в воздухе будет $N_e = \nu N_L t \approx 10^{12} \text{ cm}^{-3}$.

Вообще говоря, размер и время жизни трека определяются как амбиполярной диффузией ионов из первоначального объема трека, так и рекомбинацией первичных ионов в этом объеме. Следует заметить, что малый объем трека снижает практически до нуля вероятность участия в ион-молекулярных процессах малых газовых составляющих атмосферы, концентрация которых $\leq 10^8 \text{ cm}^{-3}$. Поэтому можно ограничить круг рассматриваемых молекул и ионов. В нашем приближении основные ион-молекулярные процессы за время, пока не размылся трек, можно рассматривать с достаточной степенью точности только с ионами основных составляющих воздуха N_2 и O_2 , концентрация которых стабильна и на несколько порядков превосходит концентрации других возможных малых газовых составляющих атмосферы, как было сделано в [3]. Так же следует учитывать влияние молекул водяного пара H_2O на ион-молекулярные процессы и формирование ионов.

В таблице представлены учтенные нами элементарные процессы с треке. Следует отметить, что в данной работе мы рассматриваем упрощенную кинетическую модель трека. В ситуации, более близкой к реальной, скорости электрон-ионной рекомбинации будут существенно зависеть от температуры электронов T_e , а так как электронная температура в треке может быть значительна, то величины скоростей рекомбинации могут оказаться ниже, чем представленные в таблице. Уравнения ионной кинетики в треке, учитывающие молекулярную диффузию и дрейф ионов в электрическом поле, записанные в цилиндрической системе координат, будут выглядеть

Основные элементарные ион-молекулярные процессы в ионизированной тропосфере ($T = 300 \text{ K}$, $T_e = T$)

№ реакции	Реакция	Скорость α , $\text{cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$	Источник
1	$\text{O}_2^+ + e \rightarrow \text{O} + \text{O}$	$2.2 \cdot 10^{-7}$	[4]
2	$\text{N}_2^+ + e \rightarrow \text{N} + \text{N}$	$2.9 \cdot 10^{-7}$	[4]
3	$e + \text{O}_2 + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^- + \text{O}_2^*$	$2.5 \cdot 10^{-30}$ ($\text{cm}^6 \cdot \text{s}^{-1}$)	[4]
4	$\text{O}_2^- + \text{O}_2^* \rightarrow \text{O}_2 + \text{O}_2 + e$	$2.0 \cdot 10^{-10}$	[4]
5	$\text{N}_2^+ + \text{O}_2 \rightarrow \text{O}_2^+ + \text{N}_2$	$2.0 \cdot 10^{-11}$	[4]
6	$\text{A}^+ + \text{B}^- \rightarrow \text{A}^* + \text{B}$	10^{-6}	[4]
7	$\text{H}_2\text{O}^+ + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{H}_3\text{O}^+ + \text{OH}$	$1.2 \cdot 10^{-9}$	[2]
8	$e + \text{H}_3\text{O}^+ \rightarrow \text{H}_2 + \text{O} + \text{H}$	$1.3 \cdot 10^{-6}$	[2]

следующим образом:

$$\frac{\partial n_i}{\partial t} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left[r \left(D_i \frac{\partial n_i}{\partial r} + \mu_i \frac{\partial}{\partial z} (E n_i) \right) \right] + \sum_{i \neq j}^N \alpha_{ij} n_i n_j \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (rE) = 4\pi\rho, \quad (2)$$

где n_i , D_i , μ_i — концентрации, коэффициенты диффузии и подвижности электронов, положительных и отрицательных ионов, а также возбужденных молекул $[e]$, $[\text{O}_2^+]$, $[\text{N}_2^+]$, $[\text{O}_2^-]$, $[\text{O}_2^*]$, $[\text{H}_2\text{O}^+]$, $[\text{H}_3\text{O}^+]$; α_{ij} — скорости реакций ион-молекулярных реакций; ρ — плотность заряда; E — электрическое поле, r — координата поперек трека.

На рис. 1 представлен результат численного решения данной системы уравнений. Видно, что основные процессы рекомбинации происходят между положительными и отрицательными ионами кислорода, так как все положительные ионы в результате реакции перезарядки 5 быстро переходят в положительные ионы кислорода. Электроны почти с той же скоростью прилипают к нейтральным молекулам кислорода. Формирование положительных ионов H_3O^+ происходит на несколько порядков медленнее и мало влияет на все ионные процессы. Эти процессы происходят в течение 1 ns, затем происходит падение концентрации отрицательных ионов за счет рекомбинации и молекулярной диффузии — ионы выводятся из объема реагирования. Для сравнения на рис. 2 представлена трехмерная зависимость концентрации отрицательных ионов кислорода от времени и расстояния от центра трека. Из этого рисунка можно оценить время существования элементарного объема однородной ионизации, созданного треком частицы, по уровню падения концентрации ионов в центре трека в e раз. За это время ($t_m \sim 125 \text{ ns}$) в результате диффузного размытия объем области однородной ионизации увеличится примерно в 2.5 раза до $V_m \sim 5 \cdot 10^{-7} \text{ cm}^3$.

Учет трековой структуры ионизации воздуха или газов атмосферного давления важен для решения некоторых специфических задач. Например, при анализе активных газовых сред для лазеров с ядерной на-

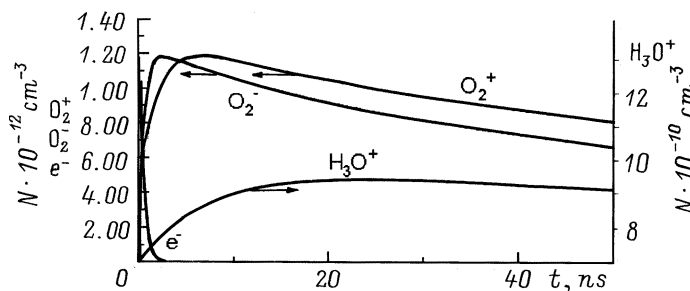


Рис. 1. Изменение во времени t (нс) концентраций N (cm^{-3}) электронов и основных ионов в объеме трека вследствие молекулярной диффузии и процессов рекомбинации. Концентрация иона оксония показана в $2 \cdot 10^2$ раз выше.

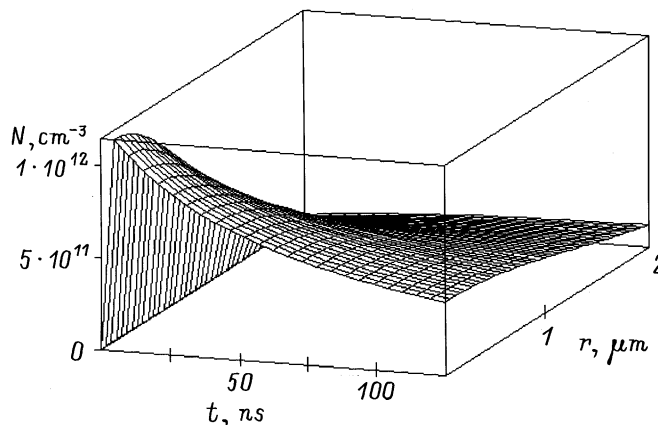


Рис. 2. Зависимость изменения концентрации N (cm^{-3}) отрицательных ионов молекулярного кислорода в треке от времени t (нс) и расстояния от центра трека r (μm).

качкой [10] или при анализе радиолокационного отражения от ионизированного облака радиоактивного выброса [11].

”Жестким” критерием для необходимости учета трековой структуры ионизации воздуха может служить момент их перекрытия. Если обозначить величину, характеризующую количество треков, рождающихся в единице объема в секунду, т.е. объемную плотность активности нуклидов, как $a_{\alpha,\beta}$, то условие перекрытия треков можно записать как $a_{\alpha,\beta} V_m t_m \ll 1$. Треки не перекрываются и $a_{\alpha,\beta} V_m t_m \gg 1$, треки перекрываются и влиянием трековой структуры можно заведомо пренебречь, т.е. при значительном увеличении степени ионизации трековые очаги могут сливаться и ионизация происходит равномерно во всем объеме. Так, нетрудно оценить, что для α -активного источника загрязнения граница критерия будет достигнута при концентрации радиоактивных веществ $a_{\alpha,\beta} \sim 500 \text{ Ci/cm}^3$, что соответствует скорости объемной ионизации $\sim 10^{18} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$. Такие уровни радиоактивного загрязнения могут наблюдаться только во время крупных аварий [12]. Следовательно, согласно жесткому критерию, при обычных уровнях радиоактивного загрязнения трековые очаги неоднородной ионизации в тропосфере будут наблюдаться всегда.

Эффект трековой неоднородности необходимо учитывать и при расчете кинетики ионов. С этой точки зрения критерием может быть тот уровень радиоактивного загрязнения атмосферы, после которого произойдут изменения в релаксационных кинетических процессах. Согласно предложенной нами трековой модели ионизации, в первый момент после начала акта ионизации все ион-молекулярные процессы с первичными элементарными ионами происходят с основными составляющими воздуха N_2 и O_2 в малых областях вокруг треков высокоэнергетичных частиц и продолжают в течение существования трека. Здесь преобладают реакции электрон-ионной и ион-ионной рекомбинации. Только через 10^{-7} s трек размывается, и образовавшиеся в нем ионы перемешиваются с основным объемом неионизированного воздуха, вступая в реакции с нейтральными молекулами малых газовых составляющих атмосферы, например азот- или углеродсодержащими соединениями. В зависимости от баланса концентраций наработанных в треках первичных ионов и малых газовых составляющих, присутствующих во всем объеме, преобладающими могут быть или процессы ион-ионной рекомбинации или реакции ионов с нейтральными молекулами. В каждом из этих случаев скорость наработки и конечная концентрация основных ионов атмосферы [1] будут различаться.

Условие такого "мягкого" критерия можно записать в следующем виде:

$$X = N_i^2 \alpha_6 - \alpha N_i N_{\text{NO}}, \quad (3)$$

где N_i — концентрация ионов, полученных в треке, по отношению ко всему объему; N_{NO} — концентрация основных малых газовых составляющих атмосферы: например, типичная концентрация нитритов в тропосфере $\sim 10^{10} \text{ cm}^{-3}$; α_6 — коэффициент ион-ионной рекомбинации (см. таблицу); α — скорость реакций ионов с нейтральными молекулами $\sim 10^{-10} \text{ cm}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ [1].

Если $X > 0$, то учитывать трековую структуру не следует, так как почти весь релаксационный поток идет сначала по каналу ион-ионной рекомбинации и не возникает никаких новых особенностей в кинетике релаксации среды. Если $X < 0$, то трековая ионизация в принципе может повлиять на результат релаксации, так как основными процессами релаксации ионов будут их реакции с нейтральными молекулами, в результате которых быстро нарабатываются, например, устойчивые и характерные для тропосферы ионы NO_3^- . Однако последнее предположение требует еще дополнительных исследований. Возможно, и этот критерий окажется слишком жестким.

В случае α -активного выброса критическое значение плотности активности в этом случае, согласно (3), будет соответствовать величина $\sim 10^{-2} - 10^{-3} \text{ Ci/cm}^3$, что соответствует объемной скорости ионообразования $\sim 10^{12} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$. Легко провести вышеизложенные оценки и для β -частиц, тогда при β -активном выбросе эти величины будут соответственно $\sim 10^{-4} \text{ Ci/cm}^3$ и $10^9 \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$. Так как при реальном радиоактивном загрязнении в выбросе присутствуют одновременно источники α -, β -, γ - и других видов излучений, то целесообразно усреднить наши оценки и границей "мягкого" критерия считать скорость ионообразования в пределах $10^9 - 10^{12} \text{ cm}^{-3} \cdot \text{s}^{-1}$, или в единицах мощности поглощенной дозы радиоактивного излучения $\sim 4.2 \cdot 10^{-3} \text{ Jy/s}$.

Таким образом, в данной работе нами проведен анализ особенностей процессов неоднородной ионизации при радиоактивном загрязнении нижних слоев атмосферы, предложена модель трековой ионизации атмосферы, определены границы применимости данной модели.

Список литературы

- [1] Смирнов В.В. Ионизация в тропосфере. СПб.: Гидрометеоиздат, 1992. 312 с.
- [2] Пикаев А.К. Современная радиационная химия. Радиолиз газов и жидкостей. М.: Наука, 1986. 440 с.
- [3] Боярчук К.А., Свирко Ю.П. // Письма в ЖТФ. 1996. Т. 22. Вып. 14. С. 47–52.
- [4] Боярчук К.А. // Изв. АН. Физика атмосферы и океана. 1997. Т. 33. № 2. С. 236–240.
- [5] Boyarchuk K.A., Karelin A.V. // BRAS Physics / Supplement. Physics of Vibrations. 1997. Vol. 61. N 4. P. 249–259.
- [6] Onsager L. // Phys. Rev. 1938. Vol. 54. N 8. P. 554–557.

- [7] Jaffe G. // Ann. Phys. Leipzig. 1913. Vol. 42. P. 313.
- [8] Физические величины. Справочник / Под ред. И.С. Григорьева, Е.З. Мейлихова. М.: Энергоатомиздат, 1991. 1232 с.
- [9] Гудзенко Л.И., Яковленко С.И. Плазменные лазеры. М.: Атомиздат, 1978. 112 с.
- [10] Будник А.П., Добровольская И.В. // Квантовая электроника. 1997. Т. 24. № 6. С. 506–510.
- [11] Боярчук К.А., Ляхов Г.А., Суязов Н.В. // ЖТФ. 1997. Т. 67. Вып. 2. С. 76–82.
- [12] Израэль Ю.А. Радиоактивные выпадения после взрывов и аварий. СПб.: Прогресс-погода, 1996. 355 с.