

ІНСТИТУТ  
ФІЗИКИ  
КОНДЕНСОВАНИХ  
СИСТЕМ

ICMP-03-10U

А. А. Дувіряк, Ю. Г. Яремко

З'ЯСУВАННЯ МОЖЛИВИХ МЕХАНІЗМІВ ЗАРЯДКИ  
РАДІОАКТИВНИХ ПИЛОВИХ ЧАСТИНОК ОБ'ЄКТУ  
“УКРИТТЯ”

УДК: 532; 533; 533.9:530.182; 536.75

PACS: 05.60.+w, 05.70.Ln, 05.20.Dd, 75.50.Mm, 75.20.-g

**З'ясування можливих механізмів зарядки радіоактивних пилових частинок об'єкту “Укриття”**

А. А. Дувіряк, Ю. Г. Яремко

**Анотація.** Оцінено  $\beta$ - і  $\gamma$ -активність лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) на основі розрахунку кінетики реакцій спонтанного  $\beta$ -розпаду, захоплення нейтрона та вимушеного поділу ядер. Оцінено інтенсивність самозарядки мікронних та субмікронних пилових частинок внаслідок цих процесів. Аналізується можливість інтенсифікації зарядки частинок під дією рентгенівського опромінення.

**Study of possible mechanisms of charging of radioactive dust particles of “Shelter” object**

A. Duviryak, Yu. Yaremko

**Abstract.**  $\beta$ - and  $\gamma$ -intensity of lava-like fuel-containing materials (LFCM) are evaluated on the base of computation of kinetics of spontaneous  $\beta$ -decay, neutron capture and compulsory fission reactions. The self-charging rate of dust particles of micron and submicron size due to these processes is evaluated. The possibility of intensification of particle charging by means of X-ray irradiation is analyzed.

Подається в Проблеми Чорнобилю  
Submitted to Chernobyl problems



## Вступ

Утворення радіоактивного пилу у тілі зруйнованого реактора 4-го блоку ЧАЕС характеризується інтенсивними процесами переносу та накопичення електричних зарядів на пилових частинках. Такі ж процеси продовжуються і після утворення пилових частинок, коли вони розповсюджуються в повітряному середовищі. Ці процеси включають самозарядку при  $\beta$ -розпаді, біполярне породження йонів,  $\alpha$ -розпад, вторинну електронну емісію, дифузію йонів на частинку (нейтралізація) та ін. [1–6]; (див. Рис.1). Крім цього, емісія



Рис. 1. Процеси переносу та накопичення зарядів в околі радіоактивної частинки.

йонів може бути ініційована зовнішніми факторами, в першу чергу рентгенівським опроміненням пилу [7, 8]. Оцінка заряду та потенціалу мікро- і наночастинок, обумовлених радіоактивністю та опроміненням рентгенівськими променями, є важливою і складною проблемою, вирішення якої може допомогти створенню систем захисту навколишнього середовища від радіоактивного пилу ОУ. У даній роботі ми зосереджуємося на дослідженні моделей, в рамках яких ми оцінимо середній (рівноважний) заряд пилінки РАВ ОУ, зумовлений  $\beta$ -активністю та рентгенівським опроміненням.

## 1. Оцінка $\beta$ -активності пилової частинки.

$\beta$ -активність пилової частинки обумовлена спонтанним  $\beta$ -розпадом. В ході цієї ядерної реакції один з нейтронів ядра радіоактивного елемента перетворюється на протон (при цьому із ядра вилітає електрон):



Хід ядерної реакції такого типу визначається періодом піврозпаду  $T_p^A$  — інтервалом часу, за який кількість ізотопу  $X_p^A$  елемента з номером  $p$  та атомним числом  $A$  зменшується удвічі.

Імовірність  $\beta$ -розпаду ядра цього ізотопу за одиницю часу визначається константою розпаду

$$b_p^A := \frac{\ln 2}{T_p^A} . \quad (1.2)$$

Помноживши цю величину на кількість  $N_p^A(t)$  відповідного ізотопу та просумувавши за  $A$  та  $p$ , отримуємо загальну  $\beta$ -активність палива (інтенсивність випромінювання електронів) [9, 10]:

$$A^\beta(t) = \sum_{p,A} b_p^A N_p^A(t) . \quad (1.3)$$

У Japanese Evaluated Nuclear Data Library (JENDL-32) [11] міститься каталог актиноїдів, де наведено імовірнісні характеристики (періоди піврозпаду та ефективні перерізи) згаданих реакцій.

Таблиця 1

$p$	$A$	Період піврозпаду $Y$ –рік, $s$ – сек	Тип розпаду	Переріз $n$ –capture (барн)	Переріз fission (барн)
U	235	$703.8 \cdot 10^6 Y$	$\alpha$	98.81	584.4
	236	$2.342 \cdot 10^7 Y$	$\alpha$	5.295	$61.29 \cdot 10^{-3}$
	237	$583200s$	$\beta$	452.4	1.702
	238	$4.468 \cdot 10^9 Y$	$\alpha$	2.717	$10.46 \cdot 10^{-6}$
	239	$23.45 \text{ min}$	$\beta$	0	0
Np	237	$2.144 \cdot 10^6 Y$	$\alpha$	164.6	$22.49 \cdot 10^{-3}$
	238	$182908.8s$	$\beta$	450.1	2070
	239	$203602.6s$	$\beta$	37.0	0.0
	240	$1.6 \cdot 10^9 s$	$\beta$	0	0
Pu	238	$87.7Y$	$\alpha$	540.3	17.89
	239	$24110Y$	$\alpha$	270.3	747.4
	240	$6464Y$	$\alpha$	289.4	$58.77 \cdot 10^{-3}$
	241	$45.2 \cdot 10^7 s$	$\beta$	361.5	1012
	242	$3.733 \cdot 10^5 Y$	$\alpha$	18.79	$2.577 \cdot 10^{-3}$
	243	$1641s$	$\beta$	0	0
Am	241	$432.2Y$	$\alpha$	600.4	3.018
	242	$57762s$	$\beta$	5500	2100
	243	$7370Y$	$\alpha$	78.5	$116.1 \cdot 10^{-3}$
	244	$36360s$	$\beta$	600	2300
	244m	$1560s$	$\beta$	400	1600

На основі Таблиці 1 побудуємо схему перетворень актиноїдів (див. рис.2)

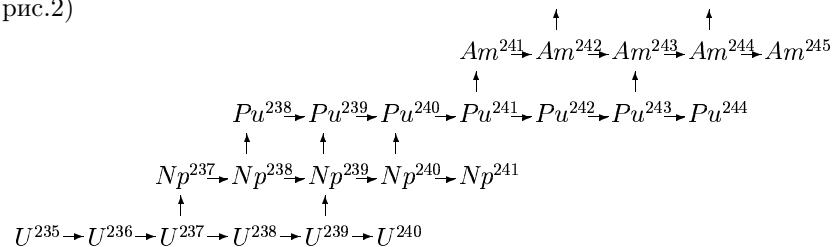


Рис. 2. Схема перетворень актиноїдів від  $U^{235}$  та  $U^{238}$  до Ам. Горизонтальні стрілки означають захоплення нейтронів, вертикальні –  $\beta$ –розпад.

Чисельно перетворення актиноїдів описуються наступною систе-

мою лінійних неоднорідних диференціальних рівнянь [9, 10]:

$$\frac{dN_i^j(t)}{dt} = b_{i-1}^j N_{i-1}^j(t) + c_i^{j-1} N_i^{j-1}(t) - k_i^j N_i^j(t) \quad (1.4)$$

де  $N_i^j(t)$  – кількість ізотопу  $X_i^j$  у момент часу  $t$ ,  $b_{i-1}^j$  – імовірність розпаду ядра ізотопу  $X_{i-1}^j$  за одиницю часу,  $c_i^{j-1} = n_v \sigma_i^{j-1}(c)$  – імовірність ініційованої потоком нейтронів  $n_v$  реакції захоплення нейтрона ядром ізотопу  $X_i^{j-1}$

$$X_p^A + n \mapsto X_p^{A+1} + \gamma, \quad (1.5)$$

а

$$k_i^j = b_i^j + c_i^j + f_i^j \quad (1.6)$$

імовірнісна характеристика, що описує втрати ізотопу  $X_i^j$  внаслідок  $\beta$ –розпаду, захоплення нейтрона та ініційованого потоком нейтронів  $n_v$  розпаду ядра (fission), що описується константою розпаду  $f_i^j = n_v \sigma_i^j(f)$ . (Ефективні перерізи  $\sigma_i^j(c)$  та  $\sigma_i^j(f)$  “вимушених” реакцій наведено в Табл.1).

Розв’язком системи рівнянь (1.4) є суперпозиція експонент [10]

$$N_i^j(t) = \sum_m \sum_n A_{im}^{jn} \exp(-k_{mn}t) \quad (1.7)$$

де для констант  $A_{im}^{jn}$  маємо систему рекурентних співвідношень

$$\begin{aligned}
 A_{im}^{jn} &= \frac{b_{i-1}^j}{k_i^j - k_m^n} A_{i-1,m}^{jn} + \frac{c_i^{j-1}}{k_i^j - k_m^n} A_{im}^{j-1,n} \\
 N_{ij}^0 &= \sum_m \sum_n A_{im}^{jn}.
 \end{aligned} \quad (1.8)$$

Індекси  $m = \overline{92, i}$  та  $i$  перелічують номери елементів таблиці Менделєєва (у нашому випадку  $i$  змінюється від 92 для U до 95 для Am), а  $n = \overline{\min(j), \max(j)}$  та  $j$  – номери ізотопів (див. Таблицю 1). Задавши кількість атомів  $N_{ij}^0$  ізотопу  $X_i^j$  у початковий момент часу, можемо прослідкувати, як змінюється кількість тих чи інших елементів з часом.

За даними [12] на момент аварії в робочій зоні реактора було  $\approx 231.5$  тонн ядерного пального. Його ізотопний склад змодельовано наступним чином. Покладемо, що 230 тонн  $U^{238}$  активованих 5 тоннами  $U^{235}$  впродовж 10 років опромінювалось потоком теплових

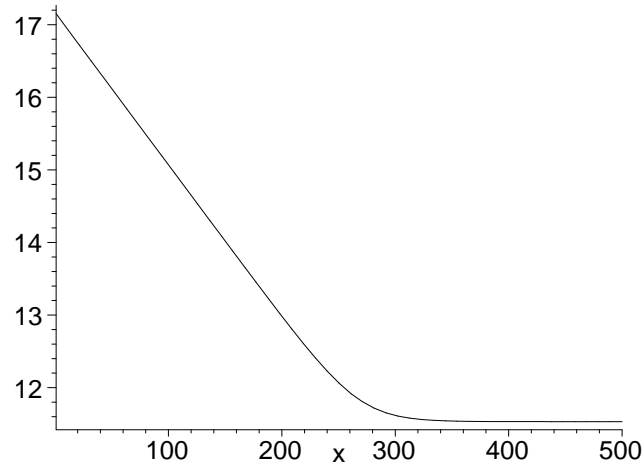


Рис. 3.  $\beta$ -активність ЛПВМ. По осі абсцис - час (у роках), по осі ординат - логарифм інтенсивності випромінювання.

нейтронів  $n_v = 10^{13}$  нейтр/см<sup>2</sup>с, характерним для робочої зони реактора. Спектр утворених внаслідок цього трансуранових елементів на момент аварії, порахований за формулами (1.7) та (1.8), наведено у Таблиці 2.

Таблиця 2. Спектр ізотопів актиноїдів на момент аварії 4-го енергоблоку (у графі  $N^0$  — число атомів відповідного елемента).

U	$N^0$	Np	$N^0$	Pu	$N^0$	Am	$N^0$
235	$1.485 \cdot 10^{27}$	237	$1.486 \cdot 10^{25}$	238	$2.009 \cdot 10^{24}$	241	$1.117 \cdot 10^{25}$
236	$1.619 \cdot 10^{27}$	238	$6.403 \cdot 10^{21}$	239	$1.481 \cdot 10^{27}$	242	$5.541 \cdot 10^{21}$
237	$7.181 \cdot 10^{22}$	239	$4.602 \cdot 10^{24}$	240	$6.571 \cdot 10^{26}$	243	$5.992 \cdot 10^{23}$
238	$5.767 \cdot 10^{29}$	240	$2.941 \cdot 10^{23}$	241	$9.641 \cdot 10^{25}$	244	$2.462 \cdot 10^{19}$
239	$3.181 \cdot 10^{22}$			242	$3.972 \cdot 10^{25}$		
				243	$1.767 \cdot 10^{20}$		

Зараз це паливо (вірніше, та його частина, яка залишилась у зруйнованих приміщеннях 4-го реактора) розчинене у силікатній матриці, яка зменшила нейтронний потік до  $n_{v1} = 10^5$  нейтр/см<sup>2</sup>с. Приймавши кількості ізотопів, наведені у Табл.2, як початкові дані, за формулою (1.3) порахуємо активність ЛПВМ. Результати рахунків наведено на рис.3.

За місяць вона падає до

$$A_5^\beta(1/12) = 1.543 \cdot 10^{17} \text{Бк} = 4.17 \cdot 10^6 \text{Кюрі}. \quad (1.9)$$

На кінець року маємо

$$A_5^\beta(1) = 1.42 \cdot 10^{17} \text{Бк} = 3.84 \cdot 10^6 \text{Кюрі}. \quad (1.10)$$

Через 10 років вона зменшиться у півтора рази:

$$A_5^\beta(10) = 9.148 \cdot 10^{16} \text{Бк} = 2.472 \cdot 10^6 \text{Кюрі}. \quad (1.11)$$

а ще через 300 років вийде на полицьку  $4.14 \cdot 10^{11} \text{Бк} = 11 \text{Кюрі}$  (див. рис.3).

### 1.1. Чисельна оцінка.

Оцінимо активність пилової частинки діаметром  $1 \mu\text{м}$ . Покладемо, що середня густина ЛПВМ  $2700 \text{кг/м}^3$  і що порядку 10% її маси складають атоми радіоактивних елементів [13]. їх кількість оцінимо, поділивши 10% маси частинки на масу атома  $U^{238}$ :

$$n = \frac{\pi \rho d^3}{6} \frac{1}{m(U^{238})} \approx 0.36 \cdot 10^9. \quad (1.12)$$

Сумарну активність, зображену на рис.3, створюють  $N \approx 5.82 \cdot 10^{29}$  атомів трансуранових елементів, перелічених у таблиці 2. Звідси  $\beta$ -активність пилової частинки

$$a_5^\beta(t) = \frac{n}{N} A_5^\beta(t). \quad (1.13)$$

У початковий момент часу  $a_5^\beta(0) = 1.95 \cdot 10^{-2} \text{Бк} = 0.53 \cdot 10^{-12} \text{Кюрі}$ . Через 10 років вона падає майже на три порядки:

$$a_5^\beta(10) = 5.6 \cdot 10^{-5} \text{Бк} = 1.5 \cdot 10^{-15} \text{Кюрі}. \quad (1.14)$$

## 2. Оцінка $\gamma$ -активності пилової частинки.

Для ядерних реакцій, ініційованих потоком нейтронів, (захоплення нейтрона (1.5) та вимушеного розпаду) константи, які характеризують інтенсивність цих реакцій, прямо пропорційні до потоку нейтронів:

$$c_i^j = n_v \sigma_i^j(c), \quad f_i^j = n_v \sigma_i^j(f). \quad (2.1)$$

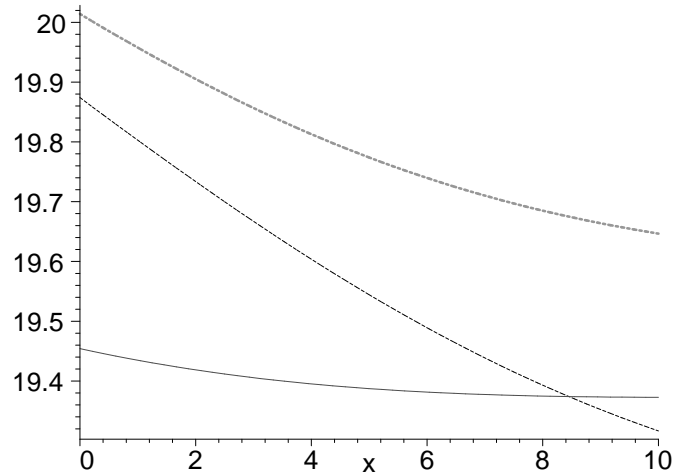


Рис. 4.  $\gamma$ -активність у робочій зоні реактора. По осі абсцис - час (у роках). Суцільна лінія зображає логарифм інтенсивності випромінювання  $\gamma$ -квантів внаслідок захоплення нейтрона ядром (n-capture), штрих-пунктирна — логарифм інтенсивності  $\gamma$ -випромінювання в ході вимушеного розпаду (fission), штрихована лінія — логарифм сумарної  $\gamma$ -активності.

(Ефективні перерізи  $\sigma_i^j(c)$  та  $\sigma_i^j(f)$  “вимушених” реакцій наведено в Табл.1). Зайва енергія “відводиться” через випромінювання  $\gamma$ -квантів. Помноживши константи  $c_i^j$  та  $f_i^j$  на кількість атомів  $N_i^j(t)$  відповідного ізотопу  $X_i^j$  та просумувавши за  $i$  та  $j$ , отримуємо загальну  $\gamma$ -активність палива (інтенсивність випромінювання  $\gamma$ -квантів) [10]:

$$A^\gamma(t) = \sum_{i,j} c_i^j N_i^j(t) + \sum_{i,j} f_i^j N_i^j(t). \quad (2.2)$$

На рис.4 зображено  $\gamma$ -активність палива у реакторі на теплових нейтронах при  $n_v = 10^{13}$ нейтр/см<sup>2</sup>с.

На даний момент паливо розчинене у силікатній матриці, яка зменшила нейтронний потік до  $n_v1 = 10^5$ нейтр/см<sup>2</sup>с. Зменшилась, відповідно, і інтенсивність вимушених ядерних реакцій у ЛПВМ. Рахунки для спектру трансуранових елементів з Табл.2, які опромінюються потоком нейтронів згаданої вище інтенсивності, показують,

що вона практично не змінюється з часом. Для пилової частинки діаметром 1 $\mu$ м вона становить  $2.7 \cdot 10^{-10}$ Бк або  $0.73 \cdot 10^{-20}$ Кюрі.

### 3. Аналіз балансу заряджених йонів у запиленому середовищі

#### 3.1. Рівняння балансу

Враховуючи складність усього комплексу процесів, спричинених радіоактивністю пилових частинок [3–6], ми робимо деякі цілком природні спрощення, допустимі для випадку частинок мікро- та нанометрового розміру. Вважаємо, що пил є монодисперсним. Вважаємо також, що розподіл електричного поля і концентрацій йонів біля пилової частинки визначається в основному електричним полем самої частинки, значенням концентрацій йонів далеко від неї (в нанометровому масштабі), і процесами народження йонів під дією радіоактивності. Крім цього, радіоактивність мікро- та наночастинок є достатньо малою, щоб знехтувати дифузійними потоками. Тоді вторинні йони не впливають на зарядку частинок, а оскільки  $\alpha$ -активність РАВ ОУ є малою у порівнянні з  $\beta$ -активністю, то нею можна знехтувати. Отже, система рівнянь, що описує баланс зарядів у запиленому повітрі має вигляд:

$$\frac{dn_-}{dt} = an_p + 4\pi b_- n_- n_p q - \alpha n_- n_+, \quad (3.1)$$

$$\frac{dn_+}{dt} = 4\pi b_+ n_+ n_p q - \alpha n_- n_+, \quad (3.2)$$

$$\frac{dq}{dt} = e(a + 4\pi[b_- n_- - b_+ n_+]q), \quad (3.3)$$

де  $n_-$ ,  $n_+$ ,  $n_p$  – концентрації від’ємно-заряджених йонів, додатньо-заряджених йонів, та частинок пилу відповідно,  $q$ ,  $a$  – середній заряд та активність частинки,  $b_+$ ,  $b_- = -|b_-|$  – рухливості додатніх та від’ємних йонів,  $\alpha$  – коефіцієнт рекомбінації. Система (3.1)-(3.3) допускає інтеграл руху - умову електронейтральності:

$$qn_p = e(n_- - n_+), \quad (3.4)$$

який дозволяє виключити  $q$  і звести систему до 2-х нелінійних рівнянь:

$$\frac{dn_-}{dt} = an_p - 4\pi|b_-|en_-(n_- - n_+) - \alpha n_- n_+, \quad (3.5)$$

$$\frac{dn_+}{dt} = 4\pi b_+ en_+(n_- - n_+) - \alpha n_- n_+. \quad (3.6)$$

Ця система у загальному випадку не є інтегрованою. Ми проаналізуємо фізично важливі часткові розв'язки, що дають достатнє уявлення про процес зарядки.

### 3.2. Асимптотична поведінка запиленого середовища

Розглянемо в першу чергу стаціонарні точки системи (3.5)-(3.6), для яких  $dn_{\pm}/dt = dq/dt = 0$ . Таких точок є дві: перша

$$n_- = \sqrt{\frac{an_p}{4\pi e|b_-|}}, \quad n_+ = 0, \quad q = \sqrt{\frac{ae}{4\pi|b_-|n_p}}, \quad (3.7)$$

і друга

$$n_- = \sqrt{\frac{an_p}{\alpha} \cdot \frac{4\pi eb_+}{4\pi e(b_+ + |b_-|) - \alpha}}, \quad n_+ = \frac{4\pi eb_+ - \alpha}{4\pi eb_+} n_-,$$

$$q = \frac{1}{4\pi b_+} \sqrt{\frac{a\alpha}{n_p} \cdot \frac{4\pi eb_+}{4\pi e(b_+ + |b_-|) - \alpha}}. \quad (3.8)$$

Аналіз стійкості за лінійним наближенням показує, що перша точка стійка, а друга – нефізична за умови  $\kappa_+ \equiv 4\pi eb_+/\alpha < 1$ . Навпаки, перша точка нестійка, а друга – стійка за умови  $\kappa_+ > 1$ . В обидвох випадках видно, що асимптотичний заряд частинок пропорційний не до їх активності (як можна було б сподіватися), а до кореня з цієї величини. Рівночасно, він обернено пропорційний до кореня з густини частинок.

Якщо припустити відсутність аніонів не тільки в околі асимптотичної стаціонарної точки (3.7), але й на початку (а отже, і на протязі усього) процесу, то система рівнянь (3.5)-(3.6) зводиться до одного рівняння:

$$\frac{dn_-}{dt} = an_p - 4\pi|b_-|en_-^2, \quad (3.9)$$

яке точно інтегрується. З врахуванням (3.4) і (3.7) отримаємо:

$$n_-(t) = n_- \text{th}(t/t_{\text{rel}}), \quad q(t) = q \text{th}(t/t_{\text{rel}}),$$

$$\text{де } t_{\text{rel}} = 1 / \sqrt{4\pi e|b_-|an_p}. \quad (3.10)$$

З цього розв'язку випливає, що густина катіонів та заряд пилинок експоненційно прямують до стаціонарних значень з часом релаксації  $t_{\text{rel}}$ .

### 3.3. Чисельні оцінки

Параметри  $b_+ = 1.3 \cdot 10^{-4} \frac{\text{м}^2}{\text{Вс}}$ ,  $b_- = -|b_-| = -1.8 \cdot 10^{-4} \frac{\text{м}^2}{\text{Вс}}$  і  $\alpha = 1.6 \cdot 10^{-12} \frac{\text{м}^2}{\text{с}}$  характерні для нижніх шарів атмосфери у хорошу погоду [6, 14]. Тоді  $\kappa_+ = 1.47 > 1$ , і реалізується випадок (3.8), згідно з яким

$$z \equiv q/e = 4.12 \cdot 10^5 \sqrt{a/n_p}, \quad (3.11)$$

де активність  $a$  вимірюється в Бк, а концентрація  $n_p$  – в  $\text{м}^{-3}$ . Зауважимо, що значення  $\kappa_+$  є близьким до 1, тому наближено можна прийняти, що  $n_- = 0$ , і оцінювати стаціонарний заряд згідно з випадком (3.7). Дійсно, у цьому разі отримуємо рівняння типу (3.11), лише з коефіцієнтом 7.91 замість 4.12. Це дає змогу оцінити час релаксації процесу згідно з (3.10):

$$t_{\text{rel}} = 7.91 \cdot 10^5 / \sqrt{an_p}. \quad (3.12)$$

Активність пилової частинки очевидно залежить від розміру та радіоактивного матеріалу. Для частинки ЛПВМ мікронного розміру вона оцінена в попередньому розділі:  $a = 5.6 \cdot 10^{-5}$  Бк. Якщо концентрацію частинок покладемо:  $n_p = 10^{12} \text{м}^{-3}$ , то  $z = 3.08 \cdot 10^{-3}$  і  $t_{\text{rel}} = 87.1$  с. Це означає, що лише 3 частинки з тисячі отримують по одному елементарному зарядові, причому цей процес триватиме біля півтори хвилини.

## 4. Зарядка рентгенівським опроміненням

З наведених вище оцінок випливає, що самозарядка пилових частинок внаслідок їх  $\beta$ -активності є недостатньою для ефективного пиловловлювання. Існуючі та вживані в промисловості методи зарядки, наприклад, у коронному розряді, також можуть виявитися неефективними для частинок мікро- та нанометрових розмірів. Заслуговує на увагу запропонований недавно метод електризації під дією рентгенівського опромінення [7, 8]. Він може виявитися особливо ефективним для пилу з високим вмістом важких елементів, оскільки перетин фотоефекту сильно залежить від заряду ядра атома.

### 4.1. Фотоелектричний перетин пилової частинки

Будемо вважати, що під дією рентгенівського випромінювання відбувається фотоефект в основному К-електронів. Якщо енергія фотонів помітно менша від енергії спокою електронів:  $\varepsilon = h\nu \ll mc^2 =$

0.511MeВ, але значно більша від порогу поглинання, то перетин фотоефекту на одному атомі речовини є такий [15]:

$$\sigma = \frac{4\sqrt{2}}{137^4} \sigma_0 Z^5 \left( \frac{mc^2}{\varepsilon} \right)^{7/2}, \quad (4.1)$$

де  $\sigma_0 = \frac{8\pi}{3} r_0^2$  – томпсонівський перетин розсіяння,  $r_0 = 2.818 \cdot 10^{-15} \text{м}$  – класичний радіус електрона, а  $Z$  – порядковий номер елемента.

Нехай матеріал частинки складається із суміші речовин. Нехай індекс  $i$  нумерує різні речовини суміші, а індекс  $\alpha$  – різносортні атоми структурної одиниці речовини  $i$ . Тоді загальна кількість атомів  $N_{i\alpha}$  сорту  $\alpha$  речовини  $i$  в частинці є така:

$$N_{i\alpha} = MN_A \frac{n_{i\alpha}}{A_i}, \quad A_i = \sum_{\alpha} A_{i\alpha} n_{i\alpha}; \quad (4.2)$$

тут  $N_A = 6.022 \cdot 10^{23} \text{моль}^{-1}$  – число Авогадро,  $M = \rho V$  – маса частинки,  $\rho$  – густина частинки,  $V$  – її об'єм,  $\xi_i$  – масова доля речовини сорту  $i$  у матеріалі частинки,  $n_{i\alpha}$  – кількість атомів сорту  $\alpha$  в структурній одиниці речовини  $i$ ,  $A_{i\alpha}$  – атомна маса цього атома,  $A_i$  – атомна маса структурної одиниці речовини  $i$ . Комбінуючи рівняння (4.1) і (4.2) легко отримати повний перетин  $\sigma_p$  фотоефекту К-електронів частинки:

$$\sigma_p = \sigma_{\text{eff}} M \Xi (mc^2/\varepsilon)^{7/2}, \quad (4.3)$$

де  $\sigma_{\text{eff}} = \frac{32\sqrt{2}\pi}{3 \cdot 137^4} N_A r_0^2 = 0.643 \cdot 10^{-12} \text{м}^2$  – стала розмірності площі, а

$$\Xi = \sum_{i\alpha} n_{i\alpha} \xi_i Z_{i\alpha}^5 / A_i, \quad (4.4)$$

де  $Z_{i\alpha}$  – порядковий номер атома сорту  $\alpha$  в структурній одиниці речовини  $i$ .

## 4.2. Активність частинки

Для частинок сферичної форми об'єм  $V = \frac{\pi}{6} d^3$ , а площа проекції  $S = \frac{\pi}{4} d^2$ , де  $d$  – діаметр частинки. Відношення величин  $\sigma_p$  і  $S$  визначає глибину проникнення фотонів в об'єм частинки. Якщо  $\sigma_p \ll S$ , то частка поглинутих частинкою фотонів незначна, і фотоефект відбувається в усьому об'ємі частинки. В цьому випадку активність частинки можна обчислити за формулою:

$$a = n_{\gamma} c \sigma_p, \quad (4.5)$$

де  $n_{\gamma}$  – концентрація фотонів у потоці рентгенівського випромінювання.

Концентрацію фотонів можна обчислити за формулою:  $n_{\gamma} c = L/\varepsilon$ , де  $L$  – густина потоку енергії фотонів ( $[L] = \text{Вт}/\text{м}^2$ ). Тоді

$$a = L \sigma_p / \varepsilon. \quad (4.6)$$

## 4.3. Чисельні оцінки

Хоча хімічна будова ЛПВМ є досить складною [13, 16] для розрахунку фотоефекту можна виходити з простішої моделі, що враховує лише основні компоненти ЛПВМ. Будемо вважати, що ЛПВМ являє собою силікатну матрицю  $\text{SiO}_2$  з вкрапленими у неї атомами урану  ${}_{92}\text{U}^{238}$  (врахування фактичного палива  ${}_{92}\text{U}^{235}$  і  ${}_{94}\text{Pu}^{239}$  майже не впливає на висліди моделі). Отже  $\Xi_{\text{ЛПВМ}} = 2.78 \cdot 10^6$  тоді як для чистого силікату  $\Xi_{\text{SiO}_2} = 10056$ . Прийmemo також  $\rho_{\text{ЛПВМ}} \approx \rho_{\text{SiO}_2} \approx 2.5 \cdot 10^3 \text{Кг}/\text{м}^3$  [14, 16]. Тоді, згідно з результатами розділу 3, достатньо малі частинки ЛПВМ заряджатимуться під дією рентгенівського випромінювання в  $\sqrt{\Xi_{\text{ЛПВМ}}/\Xi_{\text{SiO}_2}} = 16.7$  ефективніше, ніж силікатні частинки такого ж розміру.

Надалі вважатимемо, що густина потоку енергії рентгенівського випромінювання  $L = 10^4 \text{Вт}/\text{м}^2$  (як і в [7]), а енергія фотонів  $\varepsilon = 10 \text{КеВ}$ . Тоді для мікронних частинок  $d = 10^{-6} \text{м}$  отримуємо  $\sigma_p = 2.23 \cdot 10^{-15} \text{м}^2 \ll S = 0.785 \cdot 10^{-12} \text{м}^2$ , що дає змогу використовувати формули (4.5), (4.6). При густині частинок  $n_p = 10^{12} \text{м}^{-3}$ , що відповідає вмісту ЛПВМ в повітрі  $\sim 1.3 \text{г}/\text{м}^{-3}$ , їх середній заряд досягне  $z = 49$  з часом релаксації  $t_{\text{rel}} = 0.67 \cdot 10^{-2} \text{с}$ . При зменшенні густини пилу до  $n_p = 10^{10} \text{м}^{-3}$  заряд зростає до  $z = 487$  (а  $t_{\text{rel}} = 0.67 \cdot 10^{-1} \text{с}$ ). Це майже відповідає критичному значенню заряду  $z_{\text{кр}} \approx 660$  вище якого відбувається розрядка частинки внаслідок електричного пробою повітря в її околі [17]. Тому подальше зменшення густини пилу, або збільшення потужності рентгенівського джерела не приведе до інтенсифікації зарядки. Навпаки, можна збільшити густину (або зменшити потужність) без втрати ефективності зарядки, якщо дещо зменшити енергію фотонів. Однак вже при  $\varepsilon = 2 \text{КеВ}$  для мікронних часток  $\sigma_p \approx S$ , тобто поглинання випромінювання зростає так, що фотоефект відбувається в основному у приповерхневому шарі частинки, а це значно зменшує ефективність зарядки.

Зменшення енергії фотонів до  $\varepsilon = 1 \text{КеВ}$  може бути корисним для зарядки субмікронних (нано) частинок. Для наночастинок розміром  $d = 3 \cdot 10^{-8} \text{м}$  маємо  $\sigma_p = 1.91 \cdot 10^{-16} \text{м}^2 < S = 7.07 \cdot 10^{-16} \text{м}^2$ , і зарядка усе ще іде в усьому об'ємі. При концентрації пилу  $n_p = 10^{15} \text{м}^{-3}$ ,



що відповідає вмісту ЛПВМ в повітрі  $35\text{мг}/\text{м}^3$ , їх середній заряд досягне  $z = 1.42$  за  $t_{\text{rel}} = 2.29 \cdot 10^{-4}\text{с}$ , тобто практично миттєво кожна частинка набуде елементарного заряду.

## 5. Оцінки можливості відфільтрування пилових частинок РАВ ОУ

Для моделювання процесу відфільтрування пилу потрібно було б задатися конкретною конструкцією фільтру. Тут, однак, ми оцінюємо лише принципову можливість та орієнтовну ефективність цього процесу, виходячи з фізичних міркувань досить загального характеру.

Припускаємо, що в конструкцію електростатичного фільтру входить об'єм дециметрового або метрового розміру (за порядком величини), через який проганяється запилене повітря. В об'ємі створено електростатичне поле, під дією якого пилові частинки рухаються до пиловловлювачів (яка б конструкція їх не була). Очевидно, що для максимальної ефективності фільтру електричне поле повинно бути якомога сильнішим. Ми оцінимо напруженість поля в  $E = 10^6\text{В}/\text{м}$ , що є дещо нижче від електричної міцності повітря за нормальних умов [14]. Швидкість руху повітря через об'єм повинна бути за порядком величини рівною середній швидкості руху пилових частинок відносно повітря, інакше пиловловлювання буде неповним або неефективним.

Під час руху через об'єм фільтра на пилову частинку діють три основні сили:

сила тяжіння

$$F_g = Mg, \quad (5.1)$$

де  $g = 9.81\text{м}/\text{с}^2$  - прискорення земного тяжіння, електростатична сила

$$F_e = qE, \quad (5.2)$$

і сила опору середовища

$$F_s = 3\pi\eta dv, \quad (5.3)$$

де  $\eta = 1.86 \cdot 10^{-5}\text{Н}\cdot\text{с}^2/\text{м}$  - в'язкість повітря,  $v$  - швидкість частинки. Тут силу опору оцінено за формулою Стокса, справедливою для малих часел Рейнольдса (що і є у випадку малих розмірів частинок).

Оцінемо характер руху пилових частинок ЛПВМ під дією цих сил. Розглянемо спочатку частинку мікронного розміру. Для оціненого вище заряду  $z = 487$  отримуємо:  $F_e = 0.78 \cdot 10^{-10}\text{Н}$ ,  $F_g =$

$1.28 \cdot 10^{-12}\text{Н}$ , тобто  $F_e \gg F_g$ , і силою тяжіння можна знехтувати. Під дією електростатичної сили частинка швидко розганяється (або гальмується) до швидкості  $v = F_e/(3\pi\eta d)$ , при якій  $F_e$  зрівноважується силою Стокса:  $F_e = F_s$ ; далі частинка рухається практично з цією постійною швидкістю. В даному випадку  $v = 0.48\text{м}/\text{с}$ , і у фільтрі метрового розміру частинка досягає пиловловлювача за  $t_{\text{mov}} \approx 2.1\text{с}$ . Приблизно з такою ж швидкістю  $v$  повинно рухатися повітря через фільтр, що дає продуктивність очистки  $0.48\text{м}^3/\text{с}$ .

Для наночастинки розміру  $d = 3 \cdot 10^{-8}\text{м}$  з середнім зарядом  $z = 1.42$  отримуємо  $F_e = 2.27 \cdot 10^{-13}\text{Н}$ ,  $F_g = 3.46 \cdot 10^{-19}\text{Н}$ , тобто знову  $F_e \gg F_g$ . В цьому випадку  $v = 0.047\text{м}/\text{с}$ , і у фільтрі дециметрового розміру частинка досягає пиловловлювача за ті ж  $t_{\text{mov}} = 2.1\text{с}$ . Очевидно, що продуктивність очистки від наночастинок падає до  $0.47 \cdot 10^{-3}\text{м}^3/\text{с}$ . Тому тонку очистку повітря слід здійснювати у кілька етапів, або використовувати кількоступеневі фільтри.

Очевидно, що тут представлено лише оцінки за порядками величин. У дійсності продуктивність фільтрів може виявитися вищою завдяки їх конструктивним особливостям. Наприклад, вдала конструкція фільтру запропонована в [17]. У ньому зарядка частинок також здійснюється внаслідок фотоефекту, однак під дією ультрафіолетового лазера, і тому у приповерхневому шарі частинок. За рахунок великої інтенсивності лазерного пучка і вдалої конфігурації значення зарядів частинок у такому фільтрі досягаються навіть більші, ніж отримані тут оцінки. Однак зазначимо одну особливість зарядки рентгенівським (X) випромінюванням у порівнянні з зарядкою ультрафіолетовим (УФ) випромінюванням, важливу при очистці від РАВ ОУ. УФ-промені вибивають зовнішні електрони, що рухаються в екранованому полі ядра. Тому фотоефект слабо залежить від хімічного елемента. X-промені вибивають К-електрони, які безпосередньо відчавать поле ядра, а інтенсивність фотоефекту сильно залежить від заряду ядра. Тому фільтри з X-зарядкою є селективні до частинок із вмістом важких елементів. Наприклад, заряд частинки ЛПВМ з 10%-вмістом урану набуває заряду в 16.7 разів більшого, ніж така ж частинка кварцового піску ( $\text{SiO}_2$ ). Відфільтрування високорадіоактивних компонентів РАВ від неактивних може спростити проблему їх захоронення.

## 6. Висновки.

Запропоновано модель для оцінки зумовленого  $\beta$ -активністю середнього заряду пилових мікрочастинок РАВ ОУ. Виявилось, що при-

родня  $\beta$ - і  $\gamma$ -активність пилових частинок ЛПВМ не достатня для їх спонтанного заряджання до величин, достатніх для ефективного маніпулювання ними з допомогою електромагнітних полів. Так  $\beta$ -активність мікронної частинки ЛПВМ на чотири порядки менша за порогове значення  $10^{-11}$ Кюрі, вище якого бета-активні частинки прийнято вважати “гарячими” з біологічної точки зору [2]. У [2] встановлено, що при пороговій активності мікронна пилова частинка набуває 10 елементарних зарядів.

У зв'язку з цим перспективним є використання квазіелектростатичного повітряного фільтра, описаного у [17], або інших пристроїв такого типу. У ньому передбачено заряджання пилових частинок лазером ультрафіолетового діапазону. Конструкція цього фільтра є тим більш перспективною, що знижує до мінімуму ризику, пов'язані з його обслуговуванням.

Використання рентгенівського (замість ультрафіолетового) опромінення в повітряних фільтрах може ще збільшити ефективність пиловловлювання, особливо за наявності важких ізотопів у складі пилу. Рентгенівське опромінення частинок ЛПВМ може генерувати потік електронів з поверхні частинки, який перевищує відповідне значення для “гарячих” частинок. Мікронні частинки при цьому можуть набувати заряду біля 500 зарядів електрона, а наночастинки - порядку елементарного заряду і більше, що виявляється достатнім для ефективного пиловловлювання. Характерною рисою фільтра з рентгенівською зарядкою є селективність щодо вмісту важких елементів (у випадку РАВ ОУ - актиноїдів).

## Література

1. Иванов В. Д., Кириченко В. Н., Петрянов И. В. О зарядке альфа-активных аэрозолей за счет вторичной электронной эмиссии. ДАН СССР, Т. 182 (1968), 307-309.
2. Иванов В. Д., Кириченко В. Н. Самопроизвольная униполярная зарядка бета-активных “горячих” аэрозольных частиц. ДАН СССР, Т. 188 (1969), 65-68.
3. Clement C. F., Clement R. A., Harrison R. G. Charge distribution and coagulation of radioactive aerosols. J. Aerosol Sci., V. 26 (1995), 1207-1225.
4. Clement C. F., Harrison R. G. Enhanced localized charging of radioactive aerosols. J. Aerosol Sci., V. 31 (2000), 363-378.
5. Васильева Н. Л., Седова Г. Л., Черный Л. Т. Зарядка бета-

- активных капель в слабоионизированном высокоактивном аэрозоле. Коллоидный журнал, Т. 61 (1999), 180-183.
6. Васильева Н. Л., Седова Г. Л., Черный Л. Т. Модель бета-активных аэрозолей и методы расчета их электризации и ионизации. Коллоидный журнал, Т. 63 (2001), 161-164.
  7. Ковалев А. Т. Возможность использования радиационной электризации для электрического разделения измельченной минеральной смеси. Физ.-тех. пробл. разработки полезных ископаемых, №2 (1999), 100-104.
  8. Дувіряк А. Про можливість електростатичної та діелектричної сепарації радіоактивних відходів об'єкту “Укриття”. Препринт ICMP-01-25U, Львів, 2001, 8 с.
  9. Колобашкин В. М., Рубцов П. М., Ружанский П. А., Сидоренко В. Д. Радиационные характеристики облученного ядерного топлива: Справочник. М.: Энергоатомиздат, 1983, 384 с.
  10. Кривохатский А. С., Романов Ю. Ф. Получение трансурановых и актиноидных элементов при нейтронном облучении. М.: Атомиздат, 1970, 320 с.
  11. Japanese Evaluated Nuclear Data Library (JENDL-32) [www.ndc.tokai.jaeri.go.jp/nucldata](http://www.ndc.tokai.jaeri.go.jp/nucldata)
  12. Абалін С. С., Бар'яхтар В. Г. та ін. Забезпечення екологічної безпеки об'єкту “Укриття” (дослідження 1990-91 рр.). Доп. АН України №1 (1992), 116-121.
  13. Бар'яхтар В. Г., Гончар В. В., Жидков А. В., Ключников А. А. Радиационные повреждения в лаваобразных топливосодержащих материалах объекта “Укрытие”. Препринт НАН Украины, Межотрасл. Науч.-техн.центр “Укрытие”, 98-12, Чернобыль, 1988, 18 с.
  14. Енохович А. С. Краткий справочник по физике. М.: Высшая школа, 1976.
  15. Колпаков П. Е. Основы ядерной физики. М.: Просвещение, 1969.
  16. Электродисперсионные и теплофизические характеристики ЛТ-СМ объекта “Укрытие” и возможные технологии управляемого разрушения их скоплений. Отчет МНТЦ “Укрытие” НАН Украины. Арх. No 3724, Чернобыль, 1998.
  17. Zhongyi Gu, Robert A.Schill Jr. Novel quasi-electrostatic air filter: a single-particle study. Journal of Electrostatics, V. 39 (1997), 203-230.



Препринти Інституту фізики конденсованих систем НАН України розповсюджуються серед наукових та інформаційних установ. Вони також доступні по електронній комп'ютерній мережі на WWW-сервері інституту за адресою <http://www.icmp.lviv.ua/>

The preprints of the Institute for Condensed Matter Physics of the National Academy of Sciences of Ukraine are distributed to scientific and informational institutions. They also are available by computer network from Institute's WWW server (<http://www.icmp.lviv.ua/>)

Аскольд Андрійович Дувіряк  
Юрій Григорович Яремко

З'ясування можливих механізмів зарядки радіоактивних пилових частинок об'єкту "УКРИТТЯ"

Роботу отримано 21 травня 2003 р.

Затверджено до друку Вченою радою ІФКС НАН України

Рекомендовано до друку семінаром відділу теорії металів та сплавів

Виготовлено при ІФКС НАН України

© Усі права застережені