

ВИКОРИСТАННЯ ФОТОЕЛЕКТРИЧНОГО ЗАРЯДЖАННЯ ПИЛОВИХ ЧАСТИНОК ДЛЯ УТИЛІЗАЦІЇ РАДІОАКТИВНИХ ВІДХОДІВ ОБ'ЄКТА "УКРИТТЯ"

А. А. Дувіряк, Ю. Г. Яремко

Інститут фізики конденсованих систем НАН України, Львів

Оцінено інтенсивність самозарядки субмікронних паливних пилових частинок та частинок лавоподібних паливовмісних матеріалів (ЛПВМ) внаслідок β -активності. Аналізується можливість інтенсифікації зарядки частинок під дією ультрафіолетового та рентгенівського опромінення. Указано параметри опромінення, оптимальні для заряджання пилу. Моделюється динаміка заряджання субмікронних паливних пилових частинок та частинок ЛПВМ під дією ультрафіолетового лазерного опромінення. Оцінено час заряджання частинок. Показано, що сильне електростатичне поле може зробити заряджання ефективнішим. Досліджено коагуляцію із зарядженим рідинним аерозолем мікронного діапазону.

Вступ

Унаслідок радіоактивного руйнування паливовмісних матеріалів, зосереджених в об'єкті "Укриття", утворюється екологічно небезпечний радіоактивний пил з частинок субмікронного діапазону, що розповсюджується по усьому об'єкту й дифундує назовні [1]. Надзвичайно актуальною є проблема його фільтрування. Існуючі механічні фільтри навіть найвищого класу чистоти (Е-12) не здатні вловлювати цей пил. Нині досліджуються різні методи аналізу та вловлювання пилу, що складається з частинок діаметром кілька мікрон та менше, які ґрунтуються на маніпулюванні пиловими частинками зовнішніми електромагнітними полями та передбачають спонтанне або індукване заряджання цих частинок [2].

Специфічні фізичні характеристики пилових частинок об'єкта "Укриття" (радіоактивність, вміст важких елементів тощо) указують на додаткові механізми їх заряджання. Саме утворення радіоактивного пилу характеризується інтенсивними процесами переносу та нагромадження електричних зарядів на пилових частинках. Тому принаймні частина новоутвореного пилу може нести залишковий заряд.

Процеси заряджання продовжуються й після утворення пилових частинок, коли вони розповсюджуються в повітряному середовищі. Мова йде про самозарядку при β -розпаді, біполярне породження іонів, α -розпад, дифузію іонів на частинку, їх рекомбінацію тощо.

Якщо природна радіоактивність пилових частинок недостатня для їх ефективного заряджання, перспективним може бути заряджання ультрафіолетовим лазером або використання рентгенівського опромінення. Останнє особливо ефективно, коли у складі пилу є важкі ізотопи [3].

Самозаряджання та заряджання радіоактивних аерозолів суттєво впливає на їх коагуляцію та осаджування [4 - 10] – процеси, що можуть мати значення для утилізації пилу.

Для вивчення цих можливостей необхідно насамперед оцінити величину заряду, набутого частинками у згаданих процесах, беручи до уваги їх розмір та фізико-хімічні властивості, характеристики зовнішнього середовища, частоту та інтенсивності зовнішнього випромінювання тощо. Ці питання і є предметом даного дослідження.

Характеристика радіоактивного пилу в об'єкті "Укриття"

В об'ємі об'єкта "Укриття" розповсюджено пилові частинки двох типів [1]. Одні з них утворені внаслідок руйнування ядерного палива – двоокису урану із 2 %-ним збагаченням, густиною 11 кг/см³; інші – це частинки ЛПВМ густиною 4 - 5 кг/см³, що являють собою 5 - 10 %-ний розчин урану в силікатній матриці з домішками металів (в основному алюмінію) та інших елементів. Розміри основної маси паливних частинок UO₂ лежать у діапазоні 80 - 300 нм із максимумом 150 нм, який приймемо за середній розмір частинок. Розміри частинок

ЛПВМ охоплюють діапазон 25 - 150 нм з максимумом 50 нм. На сьогодні питома активність паливних частинок обумовлена ізотопами $^{238-240}\text{Pu}$ та ^{241}Am і сягає 60 ГБк/кг (α), 1000 ГБк/кг (β) і 10 ГБк/кг (γ). Активність частинок ЛПВМ сягає 20 ГБк/см³ (α) і 300 ГБк/см³ (β , ^{90}Sr). Звідси випливає, що середня β -активність окремих паливних частинок $\eta = 1,5 \cdot 10^{-4}$ Бк, а ЛПВМ – $\eta = 1,5 \cdot 10^{-7}$ Бк; α - та γ -активності значно менші й не є істотними в процесах заряджання.

Рівняння балансу зарядів

Процес заряджання пилових частинок у середовищі описується системою лінійних диференціальних рівнянь першого порядку на величину N_j – концентрацію пилових частинок, що несуть заряд j (позитивний чи негативний) [11, 12]:

$$\frac{dN_j}{dt} = \beta_{1j-1}n_+N_{j-1} - \beta_{1j}n_+N_j + \beta_{-1j+1}n_-N_{j+1} - \beta_{-1j}n_-N_j + \eta(N_{j-1} - N_j). \quad (1)$$

Останній доданок (пропорційний до кількості розпадів за одиницю часу η) описує вклад від радіоактивності. Ці рівняння доповнюються рівняннями на коефіцієнти концентрації додатних та від'ємних іонів, n_+ та n_- :

$$\frac{dn_+}{dt} = -n_+ \sum_j \beta_{1j}N_j + I\eta Z - \alpha n_+n_- + q, \quad (2)$$

$$\frac{dn_-}{dt} = -n_- \sum_j \beta_{-1j}N_j + (I+1)\eta Z - \alpha n_+n_- + q. \quad (3)$$

Тут α – коефіцієнт рекомбінації іонів; q – фонові інтенсивність виникнення біполярних іонів ($\alpha = 1,6 \cdot 10^{-6}$ см³/с; $q = 5$ пар/см³·с для сухого повітря за нормальних умов [13]); η – β -активність частинки; I – коефіцієнт каскадного розмноження іонів через механізм вторинної іонізації. Для β -частинок з енергією E він рівний

$$I = \frac{E}{3w_i}, \quad (4)$$

де $w_i = 35$ еВ – енергія, необхідна для породження однієї пари біполярних іонів. Коефіцієнти приєднання β_{1j} та β_{-1j} додатних та від'ємних іонів до частинок визначаються за формулами [11, 12]

$$\beta_{1j} = \frac{jeb_+}{\varepsilon_0[\exp(2\lambda j) - 1]}, \quad \beta_{-1j} = \frac{jeb_-}{\varepsilon_0[1 - \exp(-2\lambda j)]}, \quad (5)$$

де j – заряд пилової частинки; b_{\pm} – мобільності іонів ($b_+ = 1,14$ см²/(В·с), $b_- = 1,25$ см²/(В·с) для повітря за нормальних умов [11]). Коефіцієнт λ залежить від радіуса пилової частинки та температури [11]

$$\lambda = \frac{e^2}{8\pi\varepsilon_0 RkT} = \frac{8,531}{RT}, \quad (6)$$

де R у правій частині рівності (6) подається в нанометрах, а T – в градусах Кельвіна.

Система рівнянь типу (1) - (3) застосовна й до випадку фотоелектричної зарядки частинок. Тоді інтенсивність виникнення біполярних іонів $q = L\tau_{\text{п}}/\varepsilon$, де L – густина енергії потоку фотонів, ε – енергія фотона, $\tau_{\text{п}}$ – коефіцієнт ослаблення потоку фотонів у повітрі за рахунок фотоэффекту. Аналогічно, активність частинки $\eta = L\sigma_{\text{ч}}/\varepsilon$, де $\sigma_{\text{ч}}$ – фотоелектричний

перетин частинки. Коефіцієнт каскадного розмноження за порядком величини можна оцінити за формулою (4), де E – енергія фотона, однак при $E \leq 35$ eВ слід покласти $I = 0$.

Системи еволюційних рівнянь типу (1) - (3) аналізувалися в багатьох роботах – як у спрощеному варіанті [14 - 16], так і в загальному вигляді [11]. Особливо важливими є стаціонарні розв'язки, для яких $dN_j/dt = 0$, $dn_{\pm}/dt = 0$, і система рівнянь (1) - (3) стає системою алгебричних рівнянь. Як правило, такі розв'язки збігаються з асимптотичними значеннями еволюційних розв'язків при $t \rightarrow \infty$ і мають важливе фізичне значення (оскільки часто асимптотика досягається дуже швидко). У загальному стаціонарні розв'язки розраховуються чисельно. Корисно, однак, розглянути кілька граничних випадків, для яких знайдено аналітичні розв'язки: 1) якщо радіоактивність настільки мала, що $q \gg I\eta Z$, то частинки набувають слабкого від'ємного заряду $\bar{j} = \frac{\ln(b_+/b_-)}{2\lambda + Z/\bar{n}}$, де $\bar{n} \approx n_+ \approx n_- \approx \sqrt{q/\alpha}$, якщо $\alpha q \gg \beta^2 Z^2$, і $\bar{n} \approx q/(\beta Z)$, якщо $\alpha q \ll \beta^2 Z^2$; тут $\beta \approx \beta_{\pm j}$ ($j = 0$); 2) якщо $Z > \alpha I \eta / \beta^2$, то велика концентрація біполярних іонів, породжених β -електронами, нейтралізує частинки внаслідок рекомбінації, так що $\bar{j} \approx 0$; 3) якщо концентрація аерозолі є меншою від так званої рекомбінаційної границі, тобто $Z < \alpha I \eta / \beta^2$, то рекомбінація переважає над поглинанням іонів, і основна маса частинок заряджається позитивно:

$$\bar{j} = \frac{\varepsilon_0}{e\mu_-} \left(\frac{\alpha\eta}{IZ} \right)^{1/2} \left[1 + \frac{1-b_+/b_-}{\exp(2\lambda\bar{j})-1} \right]^{-1} \left(\approx \frac{\varepsilon_0}{e\mu_-} \left(\frac{\alpha\eta}{IZ} \right)^{1/2} - \frac{1-b_+/b_-}{2\lambda}, \text{ якщо } \lambda\bar{j} < 1 \right). \quad (7)$$

При досить малій концентрації $Z \ll \alpha\eta/(2\lambda\beta)^2$ середній заряд частинок стає великим. В усіх випадках розподіл зарядів навколо середнього значення є майже гауссівський.

Фотоефект

Фотон ультрафіолетового чи рентгенівського діапазону може вибити з атомів частинки електрони з імовірністю, що характеризується сумарним фотоелектричним перетином частинки σ . Його можна оцінити наближено як фотоперетини всіх атомів, що можуть брати участь у реакції.

Коли випромінювання достатньо жорстке, то емітуються переважно К-електрони. Якщо при цьому енергія фотонів помітно менша за енергію спокою електронів, але більша від порогу поглинання, то перетин фотоефекту на К-оболонці одного атому є такий [17]:

$$\sigma_K = \frac{32\sqrt{2}\pi}{3 \cdot 137^4} r_0^2 Z^5 (mc^2/\varepsilon)^{7/2},$$

де $r_0 = 2,818 \cdot 10^{-15}$ м – класичний радіус електрона, а Z – порядковий номер елемента.

При м'якому випромінюванні важливі вклади вищих оболонок L, M, N, ... (та їх підоболонок), аж до валентної: у фотоперетин кожного атома дають внески ті оболонки, іонізаційні потенціали яких $\varphi_K, \varphi_L, \dots$ є меншими від енергії фотона ε : $\sigma = \theta(\varepsilon - \varphi_K)\sigma_K + \theta(\varepsilon - \varphi_L)\sigma_L + \theta(\varepsilon - \varphi_M)\sigma_M + \dots$; тут $\theta(x)$ – функція Гевісайда. Вклади оболонок $\sigma_K, \sigma_L, \dots$ можна наближено обчислити [18] або взяти з таблиць [19].

За хімічною будовою речовини можна оцінити коефіцієнт ослаблення е.-м.в. τ у ній.

Нехай матеріал частинки складається з суміші речовин, індекс s нумерує різні речовини суміші, а a – різносортні атоми атоми структурної одиниці речовини s . Нехай ξ_s – масова доля речовини сорту s у матеріалі частинки, n_{sa} – кількість атомів сорту a в структурній одиниці речовини s , Z_{sa} та A_{sa} – порядковий номер та атомна маса атома цього сорту, A_s – атомна маса структурної одиниці речовини s . Тоді коефіцієнт ослаблення за рахунок

фотоэффекту в речовині частинки або середовища рівний [3] $\tau = \rho \sum_{sa} n_{sa} \xi_s \sigma_{sa} / A_s$, де σ_{sa} – перетин фотоэффекту атома сорту a в структурній одиниці речовини s , N_A – число Авогадро, ρ – густина речовини.

Для UO_2 густина $\rho = 11 \text{ кг/м}^3$. Склад ЛПВМ наближено приймаємо як 90 % SiO_2 і 10 % U , з сумарною густиною $\rho = 5 \text{ кг/м}^3$. Для повітря з 80 % N_2 і 20 % O_2 густина за нормальних умов $\rho = 1,205 \text{ кг/м}^3$. Виходячи з цих даних і сумуючи фотоперетини оболонок усіх атомів, отримуємо коефіцієнти ослаблення для UO_2 , ЛПВМ і повітря як функції від ϵ .

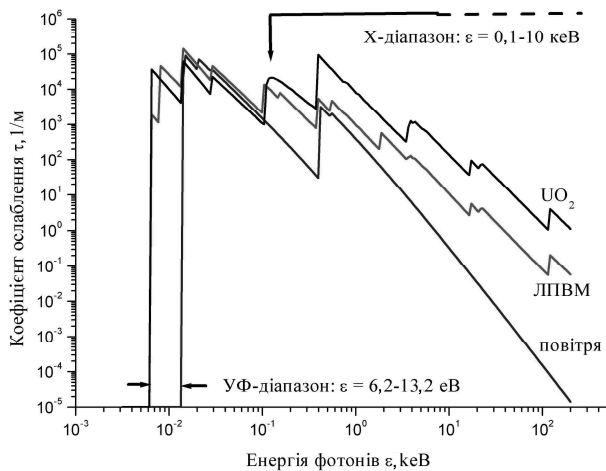


Рис. 1. Коефіцієнти ослаблення для UO_2 , ЛПВМ (пунктир) і повітря.

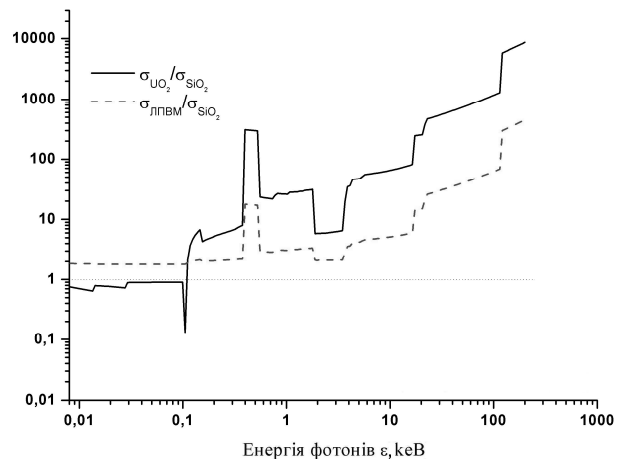


Рис. 2. Відношення перетинів фотоэффекту частинок у рентгенівському діапазоні.

На рис. 1 зображено $\tau(\epsilon)$ для UO_2 (суцільна лінія), ЛПВМ (пунктир) і повітря (крапки). Ми нехтуємо взаємодією атомів, тому в низькоенергетичній області ці результати відображають лише якісну поведінку $\tau(\epsilon)$. Тепер сумарний перетин частинки можна оцінити як $\sigma_{\text{ч}} = \tau_{\text{ч}} V$, де $V = (4/3)\pi R^3$ – об’єм частинки. Насправді ця формула годиться лише для об’ємного фотоэффекту, коли фотойонізація відбувається в усьому об’ємі частинки. Це має місце у випадку досить жорсткого ультрафіолетового випромінювання або рентгенівського, коли $R \ll 1/\tau$. Рис. 2 ілюструє зростання фотоперетину частинок у цій області за рахунок вмісту урану. У випадку м’якого ультрафіолету фотоэффект має поверхневий характер, і об’єм поверхневого шару (тобто його неекранована частина), в якому йде процес, можна оцінити як $V_{\text{еф}} = 2\pi R^2 d$, де d – товщина атомного (молекулярного) шару. Насправді перетин поверхневого фотоэффекту ще менший, оскільки ослаблюється поверхневим шаром частинки, дифракцією на ній та іншими чинниками.

Оцінки заряджання ультрафіолетовими та рентгенівськими променями

При врахуванні процесів іонізації в повітрі та відсутності зовнішнього поля самозарядка частинок ЛПВМ та палива внаслідок їх радіоактивності є мізерною [3]. Тому необхідно інтенсифікувати заряджання пилу, наприклад опроміненням ультрафіолетовими або рентгенівськими променями.

Проаналізуємо можливий діапазон енергій фотонів, придатних для зарядки частинок. Важливо, щоб фотоэффект відбувався якомога інтенсивніше на частинках і якомога слабше – у середовищі. З огляду на це можна виділити кілька можливих “вікон” у спектрі електромагнітного випромінювання (е.-м.в.).

У хорошому наближенні можна вважати, що пил складається з атомів урану, кремнію та кисню, середовище (повітря) – з атомів кисню та азоту. Розглянемо іонізаційні потенціали

валентних оболонки цих атомів: $\varphi_U = 6,194$, $\varphi_{Si} = 8,1517$, $\varphi_O = 13,618$ та $\varphi_N = 14,534$ еВ. Очевидно, що в діапазоні енергій $\varepsilon = 6,194 \div 13,618$ еВ іонізація відбувається на частинках обох сортів, але відсутня в повітрі. Цей діапазон визначає нижнє вікно у спектрі е.-м.в. Найінтенсивніший фотоефект у частинках ЛПВМ відбуватиметься біля порога $\varphi_{Si} = 8,1517$ еВ. Оскільки в частинках є домішки, такі як алюміній, титан, хром, цирконій, цей поріг може бути й нижчим. Трохи вище від цього значення слід орієнтувати характеристики ультрафіолетового лазера.

Розглянемо типовий напівпровідниковий лазер з енергією фотонів $\varepsilon \approx 8$ еВ, середньою потужністю $P \approx 0,1$ Вт і площею перетину розгортки пучка $S \approx 0,01$ м² [2].

Тоді густина потоку енергії $L = P/S = 10$ Дж/(с·м²). З рис. 1 випливає, що τ_{UO_2} може сягати значення $3,5 \cdot 10^4$ м⁻¹, а $\tau_{ЛПВМ} = 4,5 \cdot 10^4$ м⁻¹. Тоді, враховуючи $\sigma_{\eta} = \tau_{\eta} V$, оцінюємо максимальні фотоперетини частинок $\sigma_{UO_2} = 0,8 \cdot 10^{-17}$ м², $\sigma_{ЛПВМ} = 3,75 \cdot 10^{-19}$ м² і їх максимальні активності $\eta_{UO_2} = 63$ с⁻¹, $\eta_{ЛПВМ} = 3$ с⁻¹. Тепер з неявно заданої формули (7) можемо оцінити середнє значення заряду частинок при різних їх концентраціях та активностях. Для частинок UO₂ ці залежності дані на рис. 3, для ЛПВМ – на рис. 4. Для кожної концентрації існує невеликий поріг активності, нижче якого частинки не заряджаються. І навпаки, при заданих максимальних активностях існує максимальна концентрація, вище якої частинки не заряджаються. При вибраних вище параметрах лазера ця концентрація рівна $1,1 \cdot 10^{16}$ м⁻³ для UO₂, що відповідає запиленості $0,23$ кг/м⁻³, і $5,3 \cdot 10^{15}$ м⁻³ для ЛПВМ, що відповідає запиленості $1,7$ г/м⁻³.

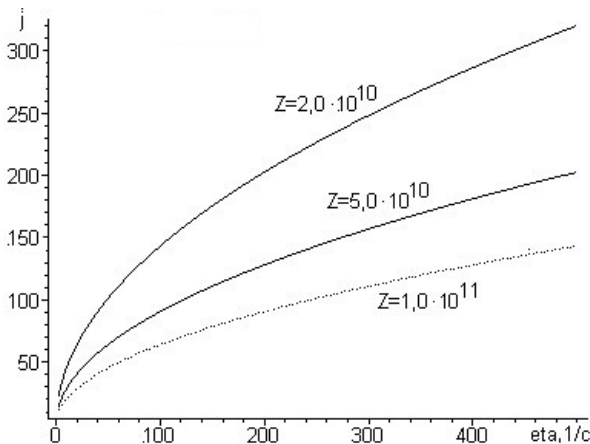


Рис. 3. Заряд j частинок UO₂ при різних концентраціях пилу Z та активностях частинок η .

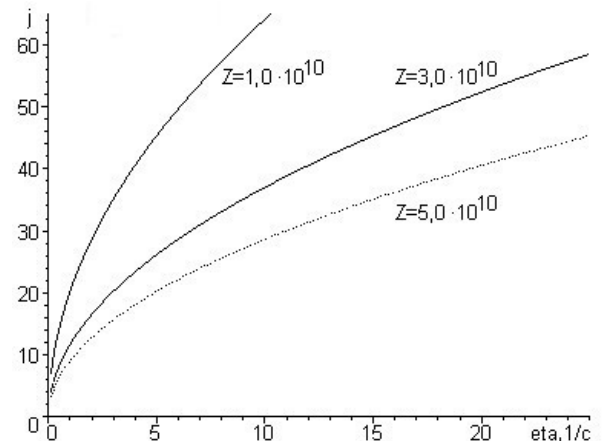


Рис. 4. Заряд j частинок ЛПВМ при різних концентраціях пилу Z та активностях частинок η .

Вище $\varphi_O = 13,618$ еВ, і особливо вище $\varphi_N = 14,534$ еВ, починається інтенсивна іонізація повітря. Від цих енергій до $\varepsilon \approx 0,1$ кеВ коефіцієнти ослаблення для пилу обох сортів і повітря співмірні, що подавляє зарядження частинок пилу. При $\varepsilon \approx 0,1$ кеВ з'являється скачок в τ_{UO_2} і $\tau_{ЛПВМ}$ такий, що $\tau_{UO_2} / \tau_{нов.} \approx 20$, $\tau_{ЛПВМ} / \tau_{нов.} \approx 13,5$, і ці відношення збільшуються, досягаючи значень $\tau_{UO_2} / \tau_{нов.} \approx 300$, $\tau_{ЛПВМ} / \tau_{нов.} \approx 30$ при $\varepsilon \approx 10$ кеВ та $\tau_{UO_2} / \tau_{нов.} \approx 4 \cdot 10^4$, $\tau_{ЛПВМ} / \tau_{нов.} \approx 2 \cdot 10^3$ при $\varepsilon \approx 120$ кеВ. Тому інший можливий діапазон зарядки починається з $\varepsilon \approx 0,1$ кеВ і лежить в області рентгенівських променів. З огляду на

технічні труднощі та радіаційну безпеку варто обмежитися кількома кеВ, орієнтуючись на існуючі джерела, наприклад фірми Hamamatsu Photonics Ltd (3,5 - 9,5 кеВ) [20, 21]. Верхня межа визначається ефективністю самого фотоефекту: значення τ_{UO_2} і $\tau_{ЛПВМ}$ швидко

спадають із ростом ε , особливо вище порога фотоемісії електронів із К-оболонки, для іонізації яких потрібна енергія $Ry(Z-1)^{2/2}$ [17], що для урану становить > 100 кеВ. Тому верхня межа – не більше 100 - 200 кеВ. Слід вибирати енергію фотонів якомога ближче (зверху) до енергії іонізації однієї з нижніх оболонок урану або кремнію. Тоді енергія фотоелектронів буде недостатньою для породження біполярних іонів у повітрі (I – мале), що збільшує зарядку частинок. В іншому разі необхідно усувати біполярні іони з області зарядки, наприклад за допомогою сильного електричного поля. Воно ж може використовуватися для вловлювання самих заряджених частинок аерозолі. Для цього, зокрема, можна використати різницю в характерних періодах утворення біполярних іонів та зарядки аерозолі.

Вплив однорідного електростатичного поля на баланс зарядів

При включенні електростатичного поля втрата іонів та заряджених частинок буде відбуватися також і на електродах. Щосекунди струм виносить з прямокутної камери об'ємом $V = S \times l$ на електроди (площею S) Si_{\pm}/e іонів; тут $i_{\pm} = en_{\pm}v_{\pm} = en_{\pm}b_{\pm}E$ – густина струму додатних (від'ємних) іонів, v_{\pm} – їхня швидкість, а E – напруженість поля. Отже, рівняння балансу іонів (2), (3) модифікуються як

$$\frac{dn_{+}}{dt} = -n_{+} \sum_j \beta_{1j} N_j + I\eta Z - \alpha n_{+} n_{-} + q - n_{+} b_{+} E/l, \quad (8)$$

$$\frac{dn_{-}}{dt} = -n_{-} \sum_j \beta_{-1j} N_j + (I+1)\eta Z - \alpha n_{+} n_{-} + q - n_{-} b_{-} E/l, \quad (9)$$

де l – відстань між електродами. Аналогічно певна кількість заряджених пилових частинок також може розрядитись на електродах; вона рівна Si_j/e для частинок заряду j , де $i_j = eN_j v_j$ – густина створюваного ними струму, а v_j – їхня швидкість. Цю швидкість можна визначити із закону Стокса: $F = jeE = 6\pi\mu R v_j$, де $\mu = 1,86 \cdot 10^{-5} \text{ Н} \cdot \text{с}^2 / \text{м}$ – динамічна в'язкість повітря. Тоді рівняння балансу заряджених частинок (1) стають

$$\frac{dN_j}{dt} = \beta_{1j-1} n_{+} N_{j-1} - \beta_{1j} n_{+} N_j + \beta_{-1j+1} n_{-} N_{j+1} - \beta_{-1j} n_{-} N_j + \eta(N_{j-1} - N_j) - N_j b_j E/l, \quad (10)$$

де $b_j = je/(6\pi\mu R)$ – рухливість наночастинок заряду j . Чисельно $b_j \approx j \cdot 6 \cdot 10^{-5} \text{ см}^2 / (\text{В} \cdot \text{с})$ і $b_j \approx j \cdot 2 \cdot 10^{-4} \text{ см}^2 / (\text{В} \cdot \text{с})$ для частинок палива та ЛПВМ відповідно, що на кілька порядків менше від рухливостей іонів. Тому останнім доданком у рівнянні (10) можна знехтувати.

Процес втрати іонів та заряджених частинок на електродах робочої камери сепараційного пристрою при включенні електростатичного поля приводить до зменшення концентрації пилу з часом до нуля. Щоб забезпечити стаціонарність процесу заряджання, можна допустити дві можливості: 1) частинки пилу після розрядки на електродах повертаються у камеру або 2) втрачені на електродах частинки компенсуються потоком такої ж кількості нейтральних частинок, що надходять у камеру. Обидві можливості враховуються рівнянням (10), яке для нейтральних частинок ($j = 0$) набуває вигляду

$$\frac{dN_0}{dt} = \beta_{1-1} n_{+} N_{-1} - \beta_{10} n_{+} N_0 + \beta_{-11} n_{-} N_1 - \beta_{-10} n_{-} N_0 + \eta(N_{-1} - N_0) + \sum_j N_j b_j E/l. \quad (11)$$

Отже, сумарна концентрація частинок $Z = \sum_j N_j$ є інтегралом руху системи (8) - (11).

У випадку заряджання опроміненням ультрафіолетового діапазону з енергією фотонів $\varepsilon < 13,618$ еВ іонізація повітря фотоелектронами практично не відбувається. Тому коефіцієнт розмноження фотонів $I = 0$. Крім того, можна знехтувати впливом слабкої фонові іонізації повітря на інтенсивну фотоіонізацію частинок і покласти $q = 0$. Тоді рівняння (8) допускає

нульову концентрацію аніонів $n_+ = 0$. Цей розв'язок є стійким і сумісним з рештою рівнянь балансу, яких усе ж залишається нескінченна кількість. Для подальшого спрощення цієї системи перейдемо від нескінченної кількості змінних N_j до двох – середнього заряду $\bar{j} = \sum_j jN_j / Z$ та сумарної концентрації частинок Z (яка є сталим параметром). У цих термінах баланс зарядів описується двома рівняннями:

$$\frac{dn_-}{dt} = -n_-(\beta_{-1}\bar{j}Z + b_-E/l) + \eta Z, \tag{12}$$

$$\frac{d\bar{j}}{dt} = -n_-\beta_{-1}\bar{j} + \bar{j}b_j E/l + \eta. \tag{13}$$

Зауважимо, що за відсутності поля ($E = 0$) система (12) - (13) допускає інтеграл руху $\rho = \bar{j}Z - n_-$ (повну концентрацію зарядів). Якщо в початковий момент ($t = 0$) зарядів не було, то $\rho = 0$ (електронейтральність зберігається). Коли $E = 0$, рівняння (12) - (13) інтегруються в квадратурах, а розв'язки асимптотично прямують до стаціонарної точки. Залежності асимптотичного значення середнього заряду від концентрації та активності частинок UO_2 та ЛПВМ добре узгоджуються з результатами, отриманими на основі вихідної системи рівнянь (1) - (3) і наведеними на рис. 3 та 4.

У загальному випадку ($E \neq 0$) ρ не зберігається (заряди стікають на електроди), і система (12) - (13) не є точно інтегрованою. Її аналіз показує, що й у цьому випадку розв'язки асимптотично прямують до стаціонарних значень. Проте тепер вони забезпечують баланс струмів $\bar{j}b_jZ = n_-b_-$, а не електронейтральність. Завдяки тому, що рухливість частинок b_j набагато менша від рухливості іонів b_- , частинки можуть досягати значно більшого заряду, ніж у попередньому випадку. Це проілюстровано на рис. 5 і 6, де представлено залежність \bar{j} від активності η та E/l (у V/m^2), де E – напруженість електростатичного поля, а l – відстань між електродами. Хоча час досягнення асимптотичного заряду $t_{ac} \rightarrow \infty$, однак менший заряд досягається досить швидко. На рис. 7 і 8 представлено залежність часу (у секундах) досягнення 90 % величини асимптотичного заряду частинок UO_2 та ЛПВМ від η та E/l .

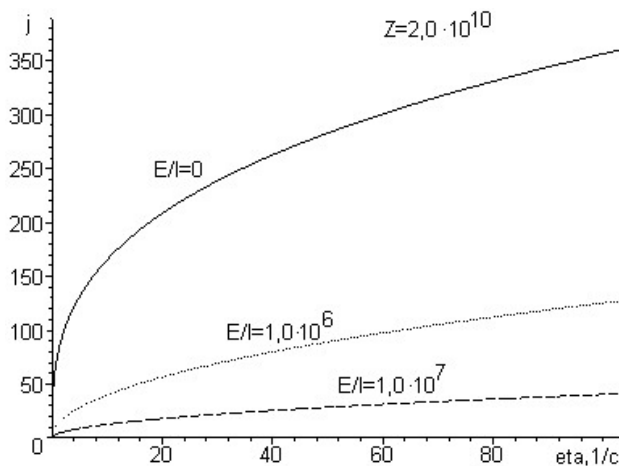


Рис. 5. Заряд j частинок UO_2 при різних напруженостях електростатичного поля E та активностях частинок η .

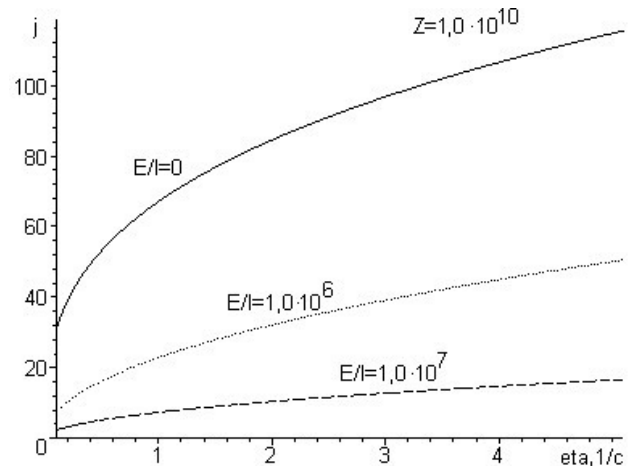


Рис. 6. Заряд j частинок ЛПВМ при різних напруженостях електростатичного поля E та активностях частинок η .

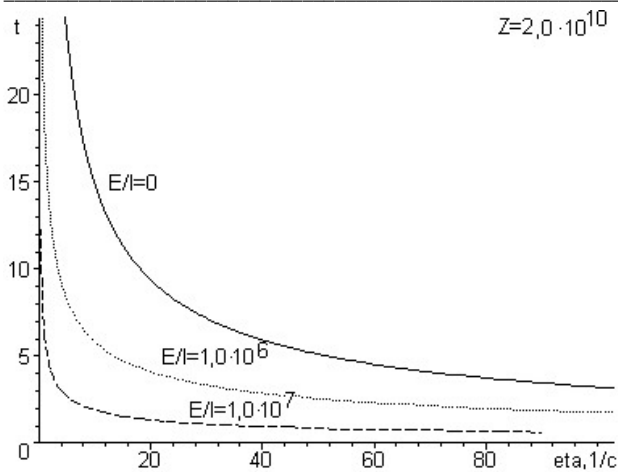


Рис. 7. Час заряджання t частинок UO_2 при різних напруженостях електростатичного поля E та активностях частинок η .

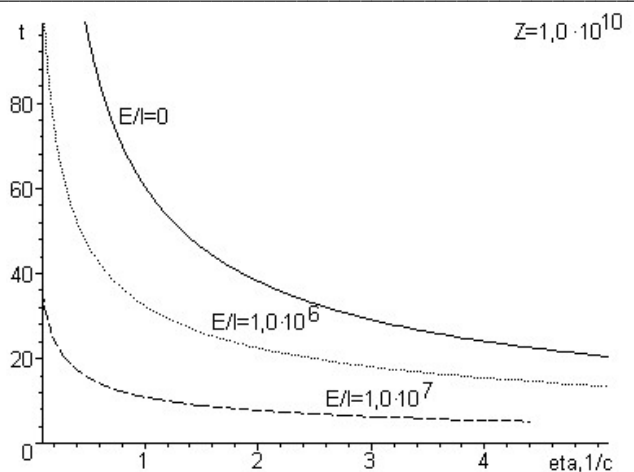


Рис. 8. Час заряджання t частинок ЛПВМ при різних напруженостях електростатичного поля E та активностях частинок η .

Коагуляція

Заряджання аерозолів задля пришвидшення їхньої коагуляції широко використовується в процесах синтезу нових матеріалів та в індустріальному обладнанні, призначеному для утилізації шкідливих домішок та забруднень [4]. У [7], де вивчається коагуляція радіоактивних аерозолів, відзначено, що “коагуляція та осаджування аерозолу, утвореного внаслідок аварії на атомній станції, є ключовими для мінімізації впливу радіоактивності на навколишнє середовище”. Відомо [4 - 7], що інтенсивність броунівської коагуляції субмікронного аерозолу (у рідкому чи твердому агрегатному стані) із нейтральним рідким аерозолем мікронного розміру значно зростає, коли наночастинки несуть хоча б один елементарний заряд.

Згідно з [6], де розглядаються процеси утворення грозових хмар у тропічних широтах, концентрація частинок інертного аерозолу повинна бути щонайменше 10^5 см^{-3} , аби коагуляція була ефективною. У [7] часовий інтервал, характерний для цього стохастичного процесу, пропонується оцінювати так званним періодом агломерації $\tau_{ae} = \frac{1}{k_B Z} = \frac{1.5 \cdot 10^{15}}{Z}$ у секундах, де

Z – концентрація частинок нейтрального аерозолу у м^{-3} . Очевидно, що для концентрацій на рівні $10^{11} \div 10^{12} \text{ м}^{-3}$, як це пропонується в [6], час агломерації набагато більший за часові проміжки, характерні для процесів заряджання субмікронних частинок (див. рис. 7 і 8). Тому зарядовий розподіл субмікронного аерозолу апроксимується розподілом гауссівського типу із стандартним відхиленням [7] $\sigma = \sqrt{\frac{1}{2\lambda} + \bar{q}}$, де \bar{q} – середній заряд пилинок, а λ означене в рівнянні (6) (і рівне 0,38 для частинок ядерного палива та 1,15 для ЛПВМ).

У нейтральному аерозолі інтенсивність процесу броунівської коагуляції визначається ядром коагуляції

$$K_B(R_1, R_2) = 4\pi(D_1 + D_2)(R_1 + R_2),$$

тут R_1 та R_2 – радіуси двох сферичних частинок аерозолу; $D_a = \frac{kT}{6\pi\mu R_a}$ – коефіцієнт дифузії; μ – в’язкість повітря. У випадку заряджених сфер цих самих розмірів ядро коагуляції виглядає як [7]

$$K'_B(R_1, j_1; R_2, j_2) = K_B(R_1, R_2)f(Y),$$

де зарядова поправка рівна $f(Y) = \frac{Y}{\exp Y - 1}$. Аргумент цієї функції

$$Y = \frac{\varphi_c(R_1, R_2)}{kT} = \frac{16,70 j_1 j_2}{T(R_1 + R_2)},$$

(тут R_1 і R_2 - у мкм, T - у K°) дорівнює відношенню кулонівського потенціалу двох сферичних зарядів j_1 та j_2 (в одиницях елементарного заряду) до теплової енергії.

Для двох заряджених аерозолів із зарядовим розподілом $N_{j_1}(R_1)$ та $N_{j_2}(R_2)$ сумарна зарядова поправка дорівнює

$$\frac{K'_B(R_1, R_2)}{K_B(R_1, R_2)} = 1 + \frac{\sum_{j_1 \cdot j_2 \neq 0} N_{j_1} N_{j_2} (f(Y) - 1)}{\sum_{j_1} N_{j_1} \sum_{j_2} N_{j_2}}$$

для сферичних частинок з радіусами R_1 та R_2 .

Порахуємо зарядові поправки до ядра коагуляції рідкого аерозолу із середнім розміром крапель 1 мкм із субмікронним пиловим аерозолем ядерного палива та частинок ЛПВМ. Покладемо, що зарядовий розподіл крапельок гауссівський із максимумом у 300 елементарних зарядів та стандартним відхиленням $\sigma_a = 2$. Гістограми для ядерного палива (двоокису урану) та частинок ЛПВМ візьмемо з експериментальної роботи [1], де досліджувалось явище спонтанного вильоту наночастинок (пилоутворення) з поверхні відповідних зразків. Будемо вважати пилинки зарядженими ультрафіолетовим випромінюванням до величин, отриманих у розділах "Фотоефект" та "Оцінки зарядження ультрафіолетовими та рентгенівськими променями" (зарядові розподіли представлено на рис. 3 та 4). Виявилось, що зарядження аерозолей суттєво пришвидшує процес коагуляції (осадування пилинок на крапельках води). Так, для частинок двоокису урану зарядова поправка становить від 580 (для пилинок діаметром 150 нм, максимум гістограми) до двох, двох з половиною тисяч для пилинок 250 - 300 нм (табл. і 2).

Заряджена пилова частинка, "поглинута" краплинкою аерозолу, не може її покинути через протидію поверхневої плівки краплини. Так, сила $1,03 \cdot 10^{-8}$ Н, з якою плівка діє на пилінку UO_2 діаметром 30 нм, набагато більша за гравітаційну ($1,53 \cdot 10^{-15}$ Н) та за електростатичну $5,26 \cdot 10^{-11}$ Н, з якою поле $1,1 \cdot 10^7$ В/м діє на частинку, що несе 30 елементарних зарядів.

Таблиця 1. Зарядові поправки до ядра броунівської коагуляції заряджених наночастинок ЛПВМ з сильно зарядженим рідким аерозолем мікронного діапазону

<i>d</i> , нм	40	50	60	90	100	110	120	130	150	220
<i>N(d)</i>	0,097	0,195	0,214	0,117	0,026	0,074	0,026	0,026	0,026	0,006
K'_B/K_B	150	590	1100	1980	600	2270	1015	1280	1930	1440

Таблиця 2. Зарядові поправки до ядра броунівської коагуляції заряджених наночастинок UO_2 з сильно зарядженим рідким аерозолем мікронного діапазону

<i>d</i> , нм	75	100	125	150	175	200	225	250	275	300
<i>N(d)</i>	0,018	0,045	0,045	0,063	0,116	0,071	0,045	0,028	0,045	0,037
K'_B/K_B	23	130	247	582	1672	1500	1320	110	2316	2400

Важливо відзначити, що згідно з [7] коагуляція мікронного аерозолу, частинки якого стали зарядженими внаслідок поглинання субмікронних пилинок, припиняється. Електростатична сил, необхідна для ефективної маніпуляції зарядженими у такий спосіб краплинками, зростає у сім разів. Тому їх краще утилізувати, використовуючи мікропористі фільтри.

Висновки

1. Унаслідок радіоактивності пилу він може заряджатися. Однак помітного заряду частинки пилу можуть набувати лише при дуже малих концентраціях. Тому необхідно інтенсифікувати зарядку пилу, наприклад опроміненням ультрафіолетовими або рентгенівськими променями.

2. Можливий діапазон енергій фотонів, придатних для зарядження частинок, складається з двох вікон. Перше вікно – у близькій ультрафіолетовій області, у межах $\varepsilon = 6,194 \div 13,618$ еВ. Тут іонізація відбувається на частинках як ЛПВМ, так і палива, але відсутня в повітрі. Найінтенсивніший фотоэффект у частинках ЛПВМ відбуватиметься біля порога $\varphi_{Si} = 8,1517$ еВ. Він може бути й нижчим, якщо в частинках є домішки, такі як алюміній, титан, хром, цирконій. При параметрах напівпровідникового лазера - $\varepsilon = 8,1517$ еВ, потужність $P \approx 0,1$ Вт і площа розгортки пучка $S \approx 0,01$ м² - максимальна концентрація пилу, при якій відбувається зарядка, $1,1 \cdot 10^{16}$ м⁻³ для UO₂, що відповідає запиленості $0,23$ кг/м⁻³, і $5,3 \cdot 10^{15}$ м⁻³ для ЛПВМ, що відповідає запиленості $1,7$ г/м⁻³.

3. Друге вікно – у м'якій рентгенівській області $\varepsilon = 0,1 \div 10$ кеВ. Тут інтенсивність фотоэффекту значно нижча, ніж у першому вікні. Слід вибирати енергію фотонів якомога ближче (зверху) до енергії іонізації однієї з нижніх оболонок урану або кремнію. Тоді фотоэффект у частинках значно інтенсивніший, ніж у повітрі, що збільшує зарядку частинок. Можна орієнтуватися на існуючі джерела рентгенівського випромінювання, наприклад фірми Hamamatsu Photonics Ltd (3,5 - 9,5 кеВ).

4. Електростатичне поле, прикладене до аерозолу пилових частинок, усуває з камери пристрою мобільні катіони, що розряджаються на електродах набагато інтенсивніше, ніж менш мобільні пилові частинки. Нейтралізація пилових частинок катіонами уповільнюється, і заряди пилинок зростають. Час зарядження частинок спадає з ростом як інтенсивності опромінення, так і напруженості прикладеного поля. При цьому зростає потік пилинок через зарядну камеру.

5. Зарядження субмікронних пилових частинок значно збільшує інтенсивність їх коагуляції з частинками рідкого зарядженого аерозолу мікронного діапазону. Частинки надійно утримуються всередині краплинок силами поверхневого натягу; коагуляція зарядженого у такий спосіб мікронного аерозолу припиняється. Явище коагуляції можна було б використати для утилізації частинок ЛПВМ та UO₂. Слід урахувати, що час агломерації, що характеризує динаміку цього стохастичного процесу, набагато більший за часові проміжки, характерні для процесів зарядження субмікронних частинок та тривалість їхнього перебування у робочій камері компактного сепараційного пристрою.

СПИСОК ЛІТЕРАТУРИ

1. *Baryakhtar V., Gonchar V., Zhidkov A., Zhydkov V.* Radiation damages and self-sputtering of high-radioactive dielectrics: spontaneous emission of submicronic dust particles // *Condensed Matter Physics*. – 2002. – Vol. 3(31). – P. 449 - 471.
2. *Gu Zh., Schill R. A.* Novel quasi-electrostatic air filter: A single-particle study // *J. Electrostatics*. – 1997. – Vol. 39. – P. 203 - 230.
3. *Дувіряк А.А., Яремко Ю. Г.* З'ясування можливих механізмів зарядки радіоактивних пилових частинок об'єкту "укриття". - Львів, 2003. – 16 с. - (Препр. / НАН України. Ін-т фізики конденсованих систем; ICMP-03-10U).
4. *Park S.H., Lee K.W., Shimada M., Okuyama K.* Coagulation of bipolarly charged ultrafine aerosol particles // *J. Aerosol Sci.* – 2005. - Vol. 36. – P. 830 - 845.
5. *Rosinski J., Werle D., Naganato C.T.* Coagulation and scavenging of radioactive aerosols // *J. Colloid Inter. Sci.* – 1962. – Vol. 17. – P. 703 - 716.
6. *Dharnorkar S., Kamra A.K.* Effect of coagulation on the asymmetric charging of aerosols // *Atmospheric Research*. – 2003. – Vol. 66. – P. 159 - 173.

7. *Clement C. F., Clement R. A., Harrison R. G.* Charge distribution and coagulation of radioactive aerosols // *J. Aerosol Sci.* – 1995. – Vol. 26. – P. 1207 - 1225.
8. *Romay F. J., Pui D. Y. H.* Free electron charging of ultrafine aerosol particles // *J. Aerosol Sci.* – 1992. – Vol. 23. – P. 679 - 692.
9. *Gentry J., Brock J. R.* Unipolar diffusion charging of small aerosol particles // *J. Chem. Phys.* – 1967. – Vol. 47. – P. 64 - 69.
10. *Emets E. P., Kascheev V. A., Poluektov P.P.* Statistics of aerosol electric charging // *J. Aerosol Sci.* – 1993. – Vol. 24. – P. 867 - 877.
11. *Clement C. F., Harrison R. G.* The charging of radioactive aerosols // *J. Aerosol Sci.* – 1992. – Vol. 23. – P. 481-504
12. *Clement C. F., Harrison R. G.* Enhanced localized charging of radioactive aerosols // *J. Aerosol Sci.* – 2000. – Vol. 31. – P. 363 - 378.
13. *Довгалюк Ю.А., Івлєв Л.С.* Физика водних и других атмосферних аерозолей. - Л.: Изд-во Лен. ГУ, 1977.
14. *Васильєва Н. Л., Седова Г. Л., Черный Л. Т.* Модель бета-активних аерозолей и методы расчета их електризації и іонізації // *Коллоидный журнал.* – 2001. - Т. 63. – С. 161 - 164.
15. *Yeh H.-Ch.* A theoretical study of electrical discharging of self-charging aerosols // *J. Aerosol Sci.* – 1976. – Vol. 7. – P. 243 - 349.
16. *Reed L. D., Jordan H., Gieseke J. A.* Charging of radioactive aerosols // *J. Aerosol Sci.* – 1977. – Vol. 8. – P. 457 - 463.
17. *Колпаков П. Е.* Основы ядерной физики. – М.: Просвещение, 1969.
18. *Бете Г., Солпитер Э.* Квантовая механика атомов с одним и двумя электронами. - М.: ГИФМЛ, 1960.
19. *Rakavy G., Ron A.* Atomic photoeffect in the range $E_\gamma = 1 - 2000$ keV // *Phys. Rev.* – 1967. – Vol. 159. – P. 50 - 56.
20. *Kulkarni P., Namiki N., Otani Y., Biswas P.* Charging of particles in unipolar coronas irradiated by *in-situ* soft X-rays: enhancement of capture efficiency of ultrafine particles // *J. Aerosol Sci.* – 2002. – Vol. 33. – P. 1279 - 1296.
21. *Lee H. M., Kim C.S., Shimada M., Okuyama K.* Bipolar diffusion charging of aerosol nanoparticle measurement using a soft X-ray charger // *J. Aerosol Sci.* – 2005. – Vol. 36. – P. 813 - 829.

Надійшла до редакції 15.06.07

**15 ИСПОЛЬЗОВАНИЕ ФОТОЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ЗАРЯДКИ ПЫЛЕВЫХ ЧАСТИЦ
ДЛЯ УТИЛИЗАЦИИ РАДИОАКТИВНЫХ ОТХОДОВ ОБЪЕКТА "УКРЫТИЕ"**

А. А. Дувиряк, Ю. Г. Яремко

Оценена интенсивность самозарядки субмикронных топливных пылевых частиц и частиц лаваобразных топливосодержащих материалов (ЛТСМ) вследствие β -активности. Анализируется возможность интенсификации зарядки частиц под действием ультрафиолетового и рентгеновского облучения. Указаны параметры облучения, оптимальные для зарядки пыли. Моделируется динамика зарядки субмикронных топливных пылевых частиц и частиц ЛТСМ под действием ультрафиолетового лазерного излучения. Оценено время зарядки частц. Показано, что сильное электростатическое поле может интенсифицировать процесс зарядки. Исследована коагуляция пылевых частиц с заряженным жидким аэрозолем микронного диапазона.

**15 EMPLOYING PHOTOELECTRIC CHARGING OF DUST PARTICLES
IN DISPOSAL IN "UKRYTTA" OBJECT RADIOACTIVE WASTE**

A. A. Duviryak, Yu. G. Yaremko

Intensity of self-charging of submicrometer fuel dust particles and particles of lava-like fuel-containing materials (LFCM) due to β -activity is evaluated. Possibility of intensification of charging of dust particles under the influence of UV and X radiation is studied. Optimal radiation exposure parameters for particle charging are established. The dynamics of charging of submicrometer fuel dust particles and LFCM particles under the influence of UV laser irradiation is modelled. The duration of particle charging is evaluated. It is shown that strong electrostatic field can stimulate the charging process. Coagulation of charged dust particles with charged liquid micrometer-sized aerosol is analyzed.

Шановні автори! Будь ласка, уважно вичитайте статтю та внесіть правку в дану версію статті. Рисунки - **чорно-білі!** Написи на рисунках мають бути мовою видання - **укр.** (в індексах формул також), шрифт на них **11** пт. **світлий**, одиниці вимірювання пишуть **через кому** (а не в дужках), **прямим** шрифтом, від числа або позначення відділяються одним **пропуском**. Позначення осей та підписи рисунків треба винести **за поле** рисунка; зробіть **уніфікацію всіх** рисунків. Секунда - с, година - год, хвилина - хв тощо! Слова "йон" немає, тільки **іон!** У числах десяти відділяють **комою**, а не крапкою. Знак множення позначають **крапкою** на середній лінії, а косий хрест як знак множення - при позначенні розмірів (габаритів) та при перенесенні формули з одного рядка на другий. У списку літератури, якщо авторів більше п'яти, зазначають **перших трьох** авторів, а потім пишуть "та ін."

Виділене жовтим (як приклад) перевірте, після правки жовтий колір зніміть. Виправлену верстку треба повернути терміново з вашим дозволом на публікацію.

З повагою,
редакція.

Шановна редакціє! Щиро вдячні Вам за можливість опублікування нашої статті у журналі "Проблеми безпеки атомних електростанцій і Чорнобиля". Повертаємо виправлений рукопис, у якому ми врахували усі Ваші зауваження. Щодо слова "йон", то його ми запозичили із словника:

"Російсько-український словник з хемії та хемічної технології", М. Ганіткевич, А. Зелізний. Львів, в-во "Львівська політехніка" 1993.

Просимо вибачення, що не зуміли забрати жовтий фон, бо не знаємо як.

З повагою,
автори.

Справка об изданиях в редакции ИПБ АЭС

Коврижкин Ю.Л., Комаров Ю.А., Пышный В.М., Скалозубов В.И., Фольтов И.М. **Оптимизация планирования ремонтов и испытаний систем безопасности атомных станций на основе риск-ориентированных подходов / НАЭК "Энергоатом".** Монография. Под ред. Скалозубова В.И.- 383 с.

Была издана в Одессе в 2006 г. в изд-ве "ТЭС". Хотят добавить тираж. У нас в редакции находится оригинал-макет книги (передал Скалозубов В. И.) и диск с книгой и обложкой. Торопят с изданием (звонил Комаров Ю.А.).

Агейкина Е.С., Зарицкий Н.С., Коврижкин Ю.Л., Скалозубов В.И. **Управление старением и продление срока эксплуатации оборудования энергоблоков АЭС / НАН Украины. ИПБ АЭС НАН Украины. Монография.** Под ред. Скалозубова В.И.- 334 с. - Чернобыль, 2007.

Есть оригинал-макет книги. Дискеты нет. Скалозубов В.И. просил пока издание отложить.

Билей Д.В., Комаров Ю.А., Ключников А.А., Скалозубов В.И. **Развитие и оптимизация контроля атомных электростанций с ВВЭР / НАН Украины. ИПБ АЭС НАН Украины. Монография.** Под ред. Скалозубова В.И. - 505 с. - Чернобыль, 2007.

Рукопись на формате А4. Диск. Нужно редактировать (?).

23.08.07