

ЯДЕРНАЯ, РАДИАЦИОННАЯ И
ЭКОЛОГИЧЕСКАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ
NUCLEAR, RADIATION AND
ENVIRONMENTAL SAFETY

УДК 66.096.3 : 551.510.7

<https://doi.org/10.26583/gns-2024-01-02>

EDN ADHTRK

Оригинальная статья / Original paper



Производство и перенос космогенного трития в земной атмосфере
в модели «PARMA»

С.А. Куделя , В.С. Малышевский , Г.В. Фомин

Южный федеральный университет, г. Ростов-на-Дону, Российская Федерация

vsmalyshevsky@srfedu.ru

Аннотация. Проанализирован вклад реакций (n,X) и (p,X) на ядрах азота и кислорода в производство и перенос космогенного трития в атмосфере Земли. Для расчетов потоков вторичных протонов и нейтронов в ядерно-электромагнитном каскаде использовалась аналитическая модель «PARMA». Модель основана на аналитических аппроксимациях как многочисленных экспериментальных данных, так и данных компьютерного моделирования, и позволяет вычислять потоки различных частиц вторичного космического излучения (нуклонов, мюонов, α - и β -частиц) с выбором заданного энергетического диапазона, высоты атмосферы, жесткости геомагнитного обреза, солнечной активности. Решена задача о вертикальной турбулентной диффузии трития в атмосфере Земли и получена зависимость его концентрации от высоты. Численное интегрирование уравнений переноса проведено с использованием интегро-интерполяционного метода. Дана оценка общего запаса космогенного трития в земной атмосфере, сбалансированного турбулентной диффузией, распадом и космогенным образованием, которая составила величину $\sim 1.9 \cdot 10^{17}$ Бк. Результаты расчетов показывают, что в земной атмосфере содержится не более 10% от всего космогенного трития. Полученные результаты в целом согласуются с более ранними эмпирическими и полуэмпирическими моделями, подтверждающими, что техногенный тритий на данный момент составляет большую часть от его общего запаса.

Ключевые слова: космогенные радионуклиды, тритий, радиоактивность атмосферы, турбулентная диффузия.

Для цитирования: Куделя С.А., Малышевский В.С., Фомин Г.В. Производство и перенос космогенного трития в земной атмосфере в модели «PARMA». *Глобальная ядерная безопасность*. 2024;14(1):17–21. <https://doi.org/10.26583/gns-2024-01-02>

For citation: Kudelya S.A., Malyshevsky V.S., Fomin G.V. Production and transfer of cosmogenous tritium in the Earth atmosphere in the «PARMA» model. *Global nuclear safety*. 2024;14(1):17-21 (In Russ.) <https://doi.org/10.26583/gns-2024-01-02>

Production and transfer of cosmogenous tritium in the Earth atmosphere
in the «PARMA» model

Savely A. Kudelya , Vyacheslav S. Malyshevsky , Georgy V. Fomin

Southern Federal University, Rostov-on-Don, Russian Federation

vsmalyshevsky@srfedu.ru

Abstract. The paper analyses contribution of reactions (n,X) and (p,X) on nitrogen and oxygen nuclei to the production and transfer of cosmogenic tritium in the Earth atmosphere. To calculate the fluxes of secondary protons and neutrons in the nuclear-electromagnetic cascade, the analytical model «PARMA» was used. The model is based on analytical approximations of both numerous experimental data and computer simulation data, and allows one to calculate the fluxes of various particles of secondary cosmic radiation (nucleons, muons, α - and β -particles) with the choice of a given energy range, atmospheric height, geomagnetic cutoff rigidity, solar activity. The problem of vertical turbulent diffusion of tritium in the Earth's atmosphere was solved and the dependence of its concentration on altitude was obtained. Numerical integration of the transport equations was carried out using the integro-interpolation method. An estimate of the total reserve of cosmogenic tritium in the Earth's atmosphere, balanced by turbulent diffusion, decay and cosmogenic formation, was given, which amounted to $\sim 1.9 \cdot 10^{17}$ Bq. The calculation results show that the earth's atmosphere contains no more than 10% of all cosmogenic tritium. The results are generally consistent with earlier empirical and semi-empirical models confirming that man-made tritium currently accounts for the majority of the total tritium supply.

Keywords: cosmogenic radionuclides, tritium, atmospheric radioactivity, turbulent diffusion.

Введение

Изотоп водорода тритий (^3H или T) в силу достаточно большого периода полураспада ($T_{1/2} = 12.3$ лет) является одним из глобальных загрязнителей атмосферы и гидросферы [1,2]. Тритий образуется в ядерно-электромагнитном каскаде в атмосфере Земли, а также в результате работы предприятий ядерно-топливного цикла и испытаний ядерного оружия в цепных реакциях деления и синтеза. В атмосфере тритий в результате окисления ($T_2 + O_2 \rightarrow T_2O$) и изотопного обмена ($T_2 + H_2O \rightarrow HTO + HT$) конвертируется в молекулы тритиевой воды (преимущественно в виде НТО) и вовлекается в нормальный земной круговорот воды и, таким образом, поступает практически во все живые организмы. Попавший в организм тритий может вызывать мутагенные изменения как за счет воздействия β -излучения (средняя энергия β -частиц 5,7 кэВ), так и изменения структуры молекул в результате замены водорода на нейтральный ^3He . В атмосфере тритий перемещается вместе с парами воды в воздушных массах, участвуя в естественном круговороте воды. Моделирование образования и распределения естественного космогенного трития в атмосфере является важной задачей, опреде-

ление естественной концентрации позволит отделить из экспериментальных данных тритий из техногенных источников, в частности, определять количество трития, выброшенного в результате работы предприятий ядерного цикла. Таким образом, концентрация трития может служить маркером для целей дозиметрического контроля, анализа атмосферных процессов и исследований космических ливней. Однако, экспериментальное определение естественной концентрации затруднено глобальной загрязненностью атмосферы тритием в результате термоядерных испытаний в XX в. В этой связи определение естественного распределения трития возможно только путем моделирования образования и переноса изотопа в атмосфере.

Образование и перенос космогенного трития

Основным механизмом образования изотопа трития в верхних слоях атмосферы являются ядерные реакции на ядрах азота и кислорода $^{14}\text{N}(n,X)^3\text{H}$, $^{16}\text{O}(n,X)^3\text{H}$, $^{14}\text{N}(p,X)^3\text{H}$, $^{16}\text{O}(p,X)^3\text{H}$. Обобщенные данные по сечениям таких реакций и содержатся в базах ядерных данных, например EXFOR¹, и приведены на рисунке 1. Погрешности измерений сечений ядерных реакций, согласно данным, в разных экспериментах не превышают 30%.

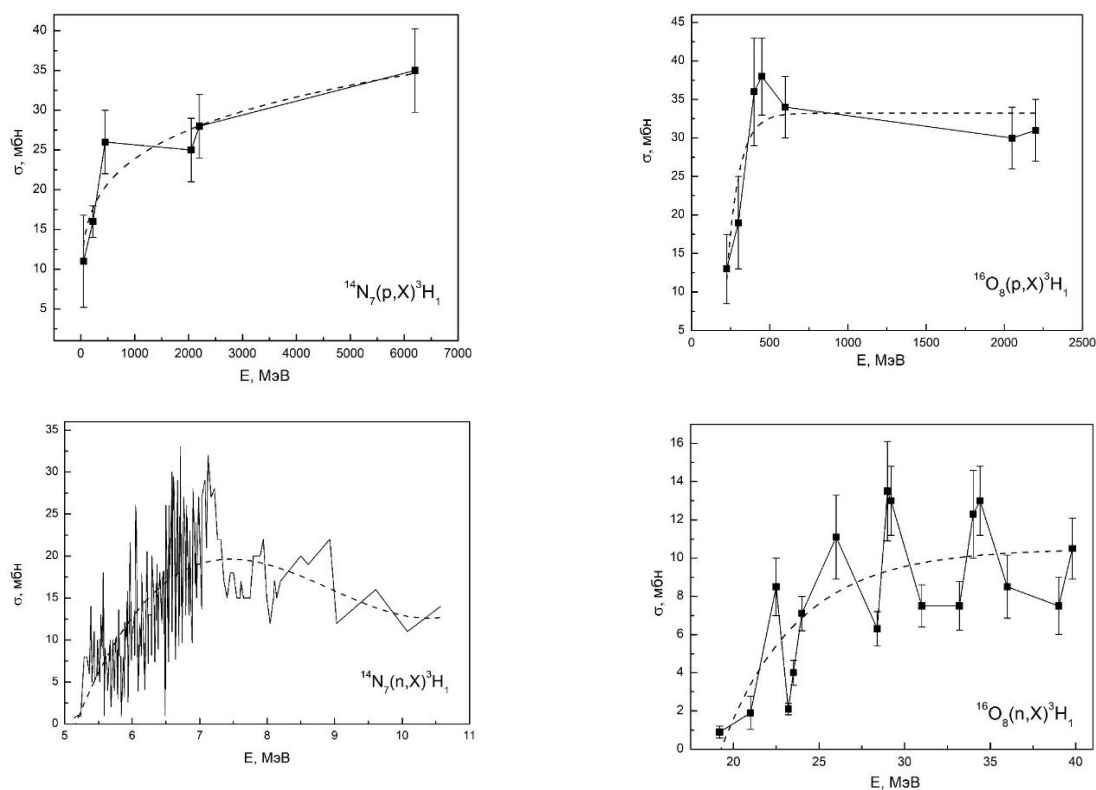


Рисунок 1. Сечения ядерных реакций, обобщенные по данным EXFOR. Пунктирной линией показана полиномиальная аппроксимация, используемая в численных расчетах ¹

Figure 1. Nuclear reaction cross sections generalized from EXFOR data. The dotted line shows the polynomial approximation used in numerical calculations ¹

¹ Experimental Nuclear Reaction Data (EXFOR). Available at: <http://cdfe.sinp.msu.ru/exfor/index.php> (accessed: 22.12.2023).

В настоящей работе расчеты плотности потока нейтронов и протонов в ядерно-электромагнитном каскаде проведены на основе эмпирических формул, которые впервые были получены авторами работ [3,4] (модель «PARMA» – PHITS-based Analytical Radiation Model in the Atmosphere). Модель основана на аналитических аппроксимациях как многочисленных экспериментальных данных, так и данных компьютерного моделирования. Использование этой модели позволяет получать надежные данные по потокам нейтронов и протонов в земной атмосфере без необходимости моделирования ядерно-электромагнитных каскадов. Аналитическая модель «PARMA» позволяет вычислять потоки различных частиц вторичного космического излучения (нуклонов, мюонов, а и b-частиц) с выбором заданного энергетического диапазона, высоты атмосферы, жесткости геомагнитного обрезания, солнечной активности. Эта модель использовалась нами ранее для оценки производства космогенного бериллия в атмосфере Земли². Некоторые результаты моделирования плотности потоков нуклонов на разных широтах и на разных высотах над уровнем моря при средней солнечной активности были рассчитаны в [5] и здесь приводить не будем. В настоящей работе расчеты плотности потока нейтронов и протонов в ядерно-электромагнитном каскаде проведены на основе эмпирических формул, которые впервые были получены авторами работ [3,4] (модель «PARMA» – PHITS-based Analytical Radiation Model in the Atmosphere). Эта модель использовалась нами ранее для оценки производства космогенного бериллия в атмосфере Земли [5].

Скорость образования космогенного трития на заданной высоте атмосферы определяется формулой (1) [5]:

$$P_i(h) = N_i(h) \int_{E_1}^{E_2} dE \sigma_i(E) J_i(E, h), \quad (1)$$

где $N_i(h)$ – число атомов азота (или кислорода) в одном грамме воздуха на высоте h ;

$\sigma_i(E)$ – сечение соответствующей ядерной реакции;

$J_i(E, h)$ – плотность потока нейтронов (или протонов) на высоте h .

Формула (1) дает скорость производства космогенных изотопов в одном грамме воздуха на заданной высоте атмосферы.

Интегрирование в формуле (1) проводилось от порога образования до максимального значения энергии в соответствующем канале реакции. Результаты численного интегрирования для разных каналов образо-

вания трития на средней широте при минимальной солнечной активности показаны на рисунке 2. Из результатов расчетов скорости образования трития видно, что основной вклад в производство космогенного радионуклида трития вносят реакции $N(n, X)T$ и $N(p, X)T$.

Основная масса космогенных радионуклидов образуется в верхних слоях атмосферы, и в дальнейшем их распространение в атмосфере связано с перемещением вместе с воздушными массами аэрозоля-носителя изотопа.

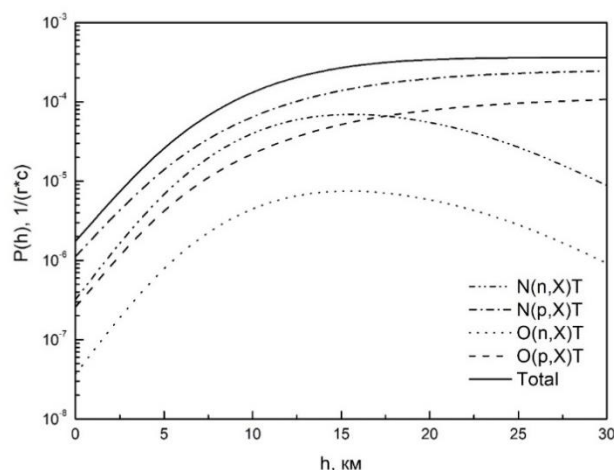


Рисунок 2. Высотная зависимость скорости образования трития в воздухе при минимальной солнечной активности на средней широте в разных каналах ядерной реакции [составлено авторами]

Figure 2. Altitude dependence of the rate of tritium formation in air at minimum solar activity at mid-latitude in different nuclear reaction channels [compiled by the authors]

Для определения концентрации трития в верхних слоях атмосферы опустим вымывание осадками, и будем считать, что удаление изотопа связано лишь с его распадом и сухим гравитационным осаждением. Тогда при пренебрежении горизонтальной диффузией стационарное уравнение вертикального переноса имеет вид выражения (2) (см., например, [6]):

$$\frac{\partial(vC)}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left(Kp \frac{\partial(C/p)}{\partial z} \right) - \lambda C + S = 0, \quad (2)$$

где C – концентрация трития;

K – коэффициент турбулентной диффузии;

λ – постоянная распада трития;

S – источник трития (т.е. скорость его образования);

ρ – зависящая от высоты плотность воздуха;

v – скорость гравитационного (сухого) осаждения.

Граничными условиями для данного уравнения будут следующие два предположения: первое – равновесие между радиоактивным распадом и образованием новых ядер на больших высотах ($z_{\max} \approx 30$ км). Это условие следует из выражения (2) при пренебрежении гравитационным осаждением и турбулентной диффузией на больших высотах. Влияние солнечной активности на концентрацию трития $C(z_{\max})$ при этом автоматически учитывается через скорость его обра-

² Малышевский В.С., Фомин Г.В. Программа «ParticleFluxes» // Хроники объединенного фонда электронных ресурсов «Наука и образование». – 2014. – Т. 6, № 61. – 42 с. – Режим доступа: <https://www.elibrary.ru/item.asp?idn=twtgdf> (дата обращения: 12.01.2024).

зования $S(z_{\max})$. Второе – равенство нулю турбулентной компоненты скорости вещества на уровне Земли, выражение (3):

$$\lambda C(z_{\max}) = S(z_{\max}), \quad K\rho \frac{\partial(C/\rho)}{\partial z} \Big|_{z=0} = 0. \quad (3)$$

Коэффициент турбулентной диффузии K ($\text{м}^2/\text{с}$) является параметром, который, вообще говоря, необходимо оценивать путем моделирования (или измерения) вертикального распределения радионуклида в атмосфере. Обычно для этой цели используют экспериментальные данные о среднемесячных концентрациях активности в приземном слое воздуха [6]. Поскольку на сегодняшний день турбулентная диффузия не является удовлетворительно описанным явлением и принимая во внимание недавние работы по исследованию переноса космогенных радионуклидов в атмосфере Земли [6,7], значения коэффициента турбулентной диффузии K ($\text{м}^2/\text{с}$) определим следующим образом [7], выражение (4):

$$K(z) = \begin{cases} 0.001 \cdot z, & 0 \leq z < 1000 \text{ м} \\ 1, & 1000 \leq z < 11000 \text{ м} \\ 0.1, & z > 11000 \text{ м} \end{cases} \quad (4)$$

Его поведение с высотой связано с так называемой тропопаузой, т.е. верхней границы тропосферы на высоте примерно 11000 м, за которой значение K резко падает, так как турбулентные потоки ослабевают, а воздушные массы стратосферы и тропосферы слабо смешиваются [7]. Уравнение переноса (2) фактически содержит коэффициент диффузии с разрывами первого рода. Интегрирование таких уравнений наиболее удобно проводить с использованием интегро-интерполяционных методов³. Результаты интегрирования приведены на рисунке 3.

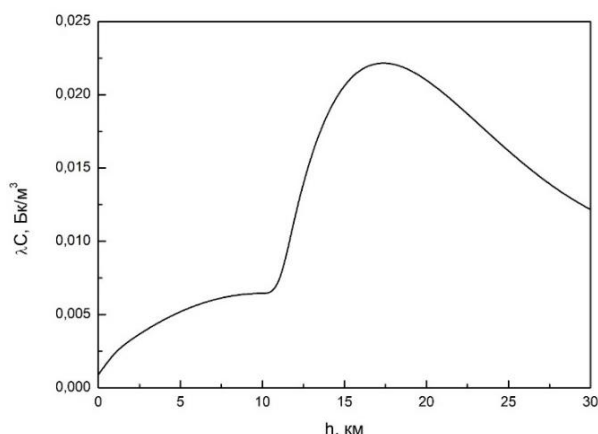


Рисунок 3. Высотная зависимость концентрации трития в земной атмосфере [составлено авторами]
Figure 3. Altitude dependence of tritium concentration in the Earth atmosphere [compiled by the authors]

³ Самарский А.А. Теория разностных схем. – Москва: Наука, 1989. – 614 с. – Режим доступа: <https://search.rsl.ru/ru/record/01001539782> (дата обращения: 22.12.2023).

Немонотонное поведение объемной активности космогенного трития с высотой, представленной на рисунке 3, качественно объясняется следующим образом. Характерный излом на высоте примерно 11 км связан, как указывалось выше, с тропопаузой на этой высоте. Аналогичные особенности наблюдаются в высотной зависимости и других космогенных изотопов, например Ве-7 [7]. Наличие максимума объемной активности на высоте примерно 17 км объясняется тем, что на этой высоте достигается максимальная скорость генерации трития (см. рис. 2). На этой же высоте потоки протонов и нейтронов в ядерно-электромагнитном каскаде также достигают своего максимального значения (см., например, [5]). На высотах больше, чем 17 км скорость образования трития в одном грамме воздуха практически не изменяется (см. рис. 2), а поскольку плотность атмосферы уменьшается с высотой, то объемная активность на высотах больше, чем 17 км также начинает уменьшаться.

Заключение

Полученные результаты позволяют оценить общий запас космогенного трития в земной атмосфере. Полагая, что площадь земной поверхности составляет величину $\sim 5.1 \cdot 10^{14} \text{ м}^2$, после интегрирования объемной активности $\lambda C(z)$ по высоте и умножения на площадь земной поверхности получим величину $\sim 1.9 \cdot 10^{17} \text{ Бк}$. Это сбалансированное турбулентной диффузией, распадом и космогенным образованием значение атмосферного содержания трития. Для сравнения отметим, что общий запас космогенного трития по разным оценкам [8], включая гидросферу и литосферу, составляет величину в пределах от $\sim 9 \cdot 10^{17} \text{ Бк}$ до $\sim 1.8 \cdot 10^{18} \text{ Бк}$. Таким образом, результаты расчетов в модели «PARMA» показывают, что в земной атмосфере содержится не более 10% от всего космогенного трития. Следует отметить, что в ходе ядерных испытаний 60-х годов по оценкам⁴ в атмосферу было выброшено порядка $2.4 \cdot 10^{20} \text{ Бк}$ трития, то есть, почти на два порядка больше естественного количества. Таким образом несмотря на то, что со времен проведения испытаний количество трития уменьшилось в несколько раз, и при учете относительного небольшого вклада выбросов АЭС, техногенный тритий на данный момент составляет большую часть от его общего запаса.

⁴ Investigation of the Environmental Fate of Tritium in the Atmosphere. Published by the Canadian Nuclear Safety Commission. INFO-0792. 110 p. (2009). Available at: <https://www.yumpu.com/en/document/view/10478755/investigation-of-the-environmental-fate-of-tritium-in-the-atmosphere/3> (accessed: 12.01.2024).

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ / REFERENCES

1. Fairlie I. Tritium hazard report: pollution and radiation risk from Canadian nuclear facilities. June 2007. Greenpeace. 92 p. Available at: https://www.researchgate.net/publication/237319950_Tritium_Hazard_Report_Pollution_and_Radiation_Risk_from_Canadian_Nuclear_Facilities (accessed: 12.01.2024).
2. Андреев Б.М., Магомедбеков Э.П., Розенкевич М.Б., Сахаровский Ю.А. Гетерогенные реакции изотопного обмена трития. Москва: Эдиториал УРСС, 1999. 208 с. Режим доступа: <https://search.rsl.ru/ru/record/01000634929> (дата обращения: 22.12.2023).
- Andreev B.M., Magomedbekov E.P., Rozenkevich M.B., Sakharovsky Yu.A. Heterogeneous reactions of tritium isotope exchange. Moscow: Editorial URSS, 1999. 208 p. (In Russ.) Available at: <https://search.rsl.ru/ru/record/01000634929> (accessed: 22.12.2023).
3. Sato T., Niita K. Analytical functions to predict cosmic-ray neutron spectra in the atmosphere. *Radiation research*. 2006;166(3):544–555. <https://doi.org/10.1667/RR0610.1>
4. Sato T., Yasuda H., Niita K., Endo A., Sihver L. Development of PARMA: PHITS-based analytical radiation model in the atmosphere, *Radiation research*. 2008;170(2):244–259. <https://doi.org/10.1667/RR1094.1>
5. Ларин А.Е., Малышевский В.С., Фомин Г.В. Высотное и широтное распределение скорости производства ^7Be в земной атмосфере в модели «PARMA». *Известия ВУЗов. Физика*. 2014;57(6):88–92. Режим доступа: https://www.elibrary.ru/download/elibrary_21800559_34861733.pdf (дата обращения: 22.12.2023).
- Larin A.E., Malyshevskii V.S., Fomin G.V. Altitude and latitude distribution of the production rate of ^7Be in the earth's atmosphere in the PARMA model. *Russian physics journal*. 2014;57(6):803–808. (In Russ.) Available at: <https://www.elibrary.ru/item.asp?id=24031421> (accessed: 22.12.2023).
6. Simon J., Meresova J., Sykora I., Jeskovsky M., Holy K. Modeling of temporal variations of vertical concentration profile of ^7Be in the atmosphere. *Atmospheric environment*. 2009;43(12):2000–2004. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2009.01.015>
7. Jasiulionis R., Wershofen H. A study of the vertical diffusion of the cosmogenic radionuclides, ^7Be and ^{22}Na in the atmosphere. *Journal of Environmental Radioactivity*. 2005;79(2):157–169. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.06.003>
8. Десятов Д.Д., Екидин А.А. Оценка поступления трития в окружающую среду от выбросов АЭС. *Биосферная совместимость: человек, регион, технологии*. 2018;1(21):88–96. Режим доступа: https://www.elibrary.ru/download/elibrary_34959688_46935708.pdf (дата обращения: 12.01.2024).
- Desyatov D.D., Ekidin A.A. Evaluation of tritium's entry into the environment from nuclear power plants' emissions. *Biosphere compatibility: people, region, technologies*. 2018;1(21):88–96. (In Russ.) Available at: https://www.elibrary.ru/download/elibrary_34959688_46935708.pdf (accessed: 12.01.2024).

ВКЛАД АВТОРОВ:

Куделя С.А. – проведение численных расчетов;
Малышевский В.С. – постановка задачи, выбор методов решения, подготовка текста статьи;
Фомин Г.В. – разработка алгоритмов и программного обеспечения.

ИСТОЧНИКИ ФИНАНСИРОВАНИЯ:

Инициативное исследование.

КОНФЛИКТ ИНТЕРЕСОВ:

Конфликта интересов нет.

ИНФОРМАЦИЯ ОБ АВТОРАХ:

Савелий Александрович Куделя, физический факультет Южного федерального университета, г. Ростов-на-Дону, Российская Федерация.

ORCID: <https://orcid.org/0009-0006-9534-5758>

e-mail: kudelya@sfedu.ru

Вячеслав Сергеевич Малышевский, доктор физико-математических наук, заведующий кафедрой общей физики физического факультета Южного федерального университета, г. Ростов-на-Дону, Российская Федерация.

ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-4538-5496>

e-mail: vsmalyshevsky@sfedu.ru

Георгий Викторович Фомин, кандидат физико-математических наук, доцент физического факультета Южного федерального университета, г. Ростов-на-Дону, Российская Федерация.

ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-1672-2844>

e-mail: fomin@sfedu.ru

AUTHORS' CONTRIBUTION:

Kudelya S.A. – carrying out numerical calculations;
Malyshevsky V.S. – statement of the problem, choice of solution methods, preparation of the text of the article;
Fomin G.V. – development of algorithms and software.

FUNDING:

Initiative Research.

CONFLICT OF INTEREST:

No conflict of interest.

INFORMATION ABOUT THE AUTHORS:

Savely A. Kudelya, Faculty of Physics, Southern Federal University, Rostov-on-Don, Russian Federation.

ORCID: <https://orcid.org/0009-0006-9534-5758>

e-mail: kudelya@sfedu.ru

Vyacheslav S. Malyshevsky, Dr. Sci. (Phys. Math.), Head of the Department of General Physics, Faculty of Physics, Southern Federal University, Rostov-on-Don, Russian Federation.

ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-4538-5496>

e-mail: vsmalyshevsky@sfedu.ru

Georgy V. Fomin, Cand. Sci. (Phys. Math.), Associate Professor, Faculty of Physics, Southern Federal University, Rostov-on-Don, Russian Federation.

ORCID: <https://orcid.org/0000-0003-1672-2844>

e-mail: fomin@sfedu.ru

Поступила в редакцию 14.01.2024

После доработки 01.03.2024

Принята к публикации 05.03.2024

Received 14.01.2024

Revision 01.03.2024

Accepted 05.03.2024