Пассивные методы обнаружения радиоактивных выбросов в атмосферу

Пассивные методы дистанционного обнаружения радиоактивных выбросов в атмосферу, а также экологического мониторинга деятельности ядерно-перерабатывающих предприятий представляют не меньший интерес, чем активные методы. Однако имеют перед ними определённые преимущества, в частности, они не приводят к дополнительному электромагнитному загрязнению среды, менее энергоёмки и более просты при их реализации на практике, поскольку для них не требуется предварительная информация о местонахождении источника радиоактивных выбросов.

Очевидно, что для решения этой задачи пригодна регистрация излучения как радиоактивных изотопов, выбрасываемых в атмосферу, так и вторичного излучения, которое образуется в следствии взаимодействия радиоактивных элементов с атмосферными газами. Излучение первого типа является коротковолновым и принадлежит к оптическому или рентгеновскому диапазонам длин волн. Что касается вторичного излучения, то оно может возникать как оптическом, так и в СВЧ диапазоне длин волн. Поскольку надёжность приёма излучения в СВЧ диапазоне значительно выше, чем в оптическом диапазоне длин волн, то при разработке пассивного метода дистанционного обнаружения радиоактивных выбросов ядерно-перерабатывающих предприятий необходимо учитывать это обстоятельство и среди большого числа атмосферных газов необходимо в качестве индикатора загрязнения выбрать такой, который излучает в СВЧ диапазоне длин волн. Из дальнейшего рассмотрения становится ясным, что такая возможность существует.

*2.1. Пассивный дистанционный метод экологического мониторинга радиоактивного загрязнения окружающей среды Е.Т.Протасевича*

В [26] предложен метод регистрации радиоактивного загрязнения среды путем измерения излучения в СВЧ- диапазоне длин волн. Его суть сводится к следующему.

Известно, что в районах радиоактивного загрязнения местности ( на атомных электростанциях, в частности, после аварии на Чернобыльской АЭС; в районах выпадения осадков при испытаниях ядерного оружия в атмосфере; на атомных подводных лодках и пр.) наблюдаются продолжительные свечения воздуха. Анализ этих материалов показывает, что имеется также связь между наблюдаемыми свечениями воздуха и метеоусловиями. Постараемся воспользоваться этим обстоятельством при разработке пассивного метода дистанционного обнаружения радиоактивных выбросов в атмосферу.

Известно [27− 31], что в приземной атмосфере, подвергнутой ионизирующему воздействию, например, электрическому пробою, существуют условия, которые обеспечивают ее длительное послесвечение. Эти условия связаны в первую очередь с содержанием воды в атмосфере как в паровой, так и в аэрозольной или жидкокапельной фазах. Независимо от вида ионизирующего воздействия ( корпускулярное или электромагнитное ) установлены три стадии трансформации воды в атмосфере, обеспечивающие устойчивое длительное послесвечение воздуха:

1) испарение воды, если последняя в жидкокапельной фазе;

2) разложение молекул воды в паровой фазе;

3) протекание целого комплекса физико-химических реакций [31], в результате которых образуется холодная неравновесная плазма с длительным послесвечением.

Хотя в условиях радиоактивного облучения атмосферы роль первой стадии невелика из-за малого энерговклада источника ионизации, можно предполагать, что как причины свечения воздуха, так и связь этого свечения с метеоусловиями обусловлены протеканием второй и третьей стадии, когда водяной пар уже присутствует в атмосфере (например, весной из-за интенсивного испарения влаги с поверхности земли, при восходе Солнца и прогреве земли в утренние часы конца лета, при ясной, жаркой погоде над поверхностью морей и океанов и пр.)

Относительно первой стадии агрегатно-физико-химических превращений Н2О следует сделать следующее замечание. В атмосфере , хотя и кратковременно , но часто существуют условия пресыщения водяных паров. В процессе ионизации это должно приводить к смене направлений Н2О в первой стадии в противоположную сторону. В связи с этим можно ожидать некоторые изменения свечения атмосферы в такое время ( летом в ночные часы ).

Образование свободных атомов водорода идет по каналам реакций (2.1 б), (2.1 г) и (2.3 а), а гидроксила ОН − в результате протекания реакций (2.1 б), (2.1 г), (2.2 а), (2.3 б). Атомарный водород и гидроксил ОН принадлежат к числу компонент, активных в СВЧ − диапазоне . Образование свободных атомов водорода должно сопровождаться генерацией излучения на частоте 1420 МГц ( длина волны ~ 21,1 см.), которое обусловлено сверхтонким расщеплением основного уровня энергии атома на два близлежащих подуровня. Причиной расщепления является взаимодействие спинов ядра и электрона. В результате слабых соударений атомов водорода в воздухе происходит смена ориентации спина электрона в атоме водорода на противоположную ( с параллельной на антипараллельную, более выгодную в энергетическом отношении). Спонтанное изменение ориентации спина сопровождается возникновением излучения с частотой 1420 МГц.

Кроме частоты 1420 МГц осуществить регистрацию СВЧ − излучения можно также на частотах 1612, 1665, 1667 и 1721 МГц [26 ]. Эти частоты соответствуют уже сверхтонким переходам в молекуле радикала ОН, который присутствует подобно водороду практически во всех реакциях разложения воды, например, (2.1 б), (2.1 в), (2.1 г), (2.2 а) и (2.3 б).Произведем оценку возможностей регистрации указанного СВЧ − излучения в случае практической реализации предлагаемого метода. Интенсивность излучения (линии) определяется вероятностью радиационного перехода Аnk и может быть рассчитана по формуле [ 26,33 ]:

S = ωnk Ank (2.4)

где 2πω − энергия кванта; − постоянная Планка.

Согласно [ 34 ] энергия сверхтонкого расщепления стабильных уровней атома водорода (основной терм 1Н( 2 S1/2), электронный терм 2 S1/2, квантовые числа полного момента F, F′(1, 0) для ν (F, F′) = 1420, 4057517 МГц ) составляет Е (F,F′) = 47,3797 ⋅ 10-3 см-1, а вероятность перехода Аnk равна 3⋅10-15 с-1. Тогда интенсивность излучения S′=10-24⋅3⋅10-15= 3⋅10-39 Вт.

В случае, если относительная влажность воздуха ϕ ≅ 100 %, то молекулы воды составляют приблизительно 3 % от общего объема смеси (воздух + Н2О), что в пересчёте на концентрацию частиц соответствует ~1018 молекулам Н2О в см3. Если допустить, что разложилось всего ~ 1 % от этого числа молекул воды, то это составит ~ 2 ⋅1016 атомов водорода. Отсюда следует, что 1см3 будет излучать ~6⋅10-23 Вт. Опыт работы АЭС показывает, что размер облака (шлейфа) над объектом атомной энергетики составляет ~ 0,5 км3. Тогда не трудно рассчитать, что мощность его излучения равна ~ 3⋅10-8 Вт. Видимо, такая оценка является излишне оптимистичной. В работе [ 36 ] подошли к этому иначе.

Предположив в качестве основного механизма воздействия радиации на атмосферу тормозное излучение электронов, образовавшихся при распаде изотопа 85Kr, авторы [ 36 ] рассчитали, что скорость образования атомов водорода в шлейфе выброса будет составлять 1,5 ⋅ 1012 м-3 ⋅ с-1 . Тогда при допущении, что основным механизмом исчезновения атомов водорода является рекомбинации, константа скорости которой при нормальных атмосферных условиях составляет k ~ 10-13 ÷10-14 м3 ⋅ моль-1 ⋅ с-1 из уравнения

d[H] / dt = 2k[H]2

была рассчитана концентрация атомов водорода [H] в 1 км3 шлейфа выброса, Это величина составляет приблизительно 10 21 ÷ 1022 атомов. Отсюда следует, что на частоте 1420 МГц мощность, излучаемая, указанным объемам воздуха, равна ~ 2⋅ ⋅10-17 ÷ 8⋅10-18 Вт, что на несколько порядков меньше, чем это следует из работы [26 ]. Видимо , такая оценка является излишне пессимистичной и на практике мощность излучения ионизированного объема окажется между двумя этими расчетными значениями. Постараемся ответить на вопрос, является ли достаточным уровень излучения атомарного водорода для его регистрации современными средствами или нет.

Чувствительность современных приемников дециметровых и сантиметровых волн Рпр мин=10-13÷10-14 Вт [ 26 ]. Она была достигнута еще в 1967 году. Сравнение такой чувствительности с уровнем излучения облака позволяет утверждать, что излучение атомарного водорода может быть зарегистрировано современными средствами радиолокации. При этом необходимо иметь в виду еще два важных обстоятельства. Во − первых, уровень сигнала убывает пропорционально квадрату расстояния от источника излучения, то есть измерение необходимо производить вблизи объекта атомной энергетики. Во-вторых, надежность приема сигнала на частоте 1420 МГц повышается за счет стационарного характера волнового излучения и наличия минимального уровня помех в интервале частот 103 ÷104 МГц [35 ].

Аналогичным образом обстоят дела и с возможностью регистрации радиоизлучения гидроксил ОН.

Остановимся на ширине излучаемых линий. Уширение линии излучения атомарного водорода связано преимущественно с эффектом Доплера, который обусловлен поступательным движением атомов. Скорость такого движения определяется кинетической энергией образовавшихся атомов водорода. Столкновительным механизмом уширения в нашем случае можно пренебречь, поскольку излучение вызвано сверхтонким расщеплением энергетического уровня атома. Согласно измерений , выполненных в [ 37 ], энергия поступательного движения атомов водорода при фотолизе водородосодержащих молекул, не превышает 2 эВ. Откуда следует, что доплеровское уширение линии водорода на частоте 1420 МГц νD ≤ 150 кГц. Видимо, это значениеνD является завышенным , поскольку из анализа спектров радиоизлучения в астрофизике следуют, что ширина излучаемых линий радикала ОН составляет 10 ÷20 кГц [ 35 ].

*2.2. ОБРАЗОВАНИЕ И ДИНАМИКА ИЗЛУЧЕНИЙ АТОМАРНОГО ВОДОРОДА В ШЛЕЙФЕ РАДИОАКТИВНЫХ ВЫБРОСОВ*

Положим в основу нашего рассмотрения результаты расчетов по формированию шлейфа радиоактивных выбросов, представленные в работе [36]. Согласно анализа выбросов предприятий ядерного цикла, работающих по замкнутой схеме, следует, что изотоп 85Kr по суммарной активности в шлейфе выбросов преобладает над другими радиоактивными элементами. По этой причине авторы работы [ 36 ] в своих расчётах ориентируются на изотоп 85Kr. Его годовой выброс составляет 1.6⋅107 Кюри для радиохимического завода производительностью 1500 т/год [ 38 ]. Тогда в пересчёте на стационарный источник выбросов со стандартными характеристиками ( высота трубы Н = 200 м , диаметр D = 2 м , скорость выброса в атмосферу V = 10 м/с ) получается , что активность каждого кубического метра выбросов составляет приблизительно 6⋅108 Бк. Поскольку 85Кr принадлежит к числу β-активных изотопов , то в результате его распада в одном кубическом метре выбросов образуется 6⋅108 электронов в секунду с энергией 0.67 Мэв. Распространение шлейфа в атмосфере сопровождается увеличением его объёма вследствие вертикальной и горизонтальной диффузий , которые протекают на фоне действия ветра.

Для оценки концентрации радионуклидов в шлейфе в работе [ 36 ] использовалась модель гауссовой диффузии от непрерывного источника [ 39 ], поскольку эта модель широко используется в мировой практике и она положена в основу большинства нормативных документов по ограничениям загрязнения воздуха промышленными выбросами [ 39 ]. Согласно этой модели концентрация примесей в выбросе N описывается формулой

, (2.4) где Q - мощность источника ; σу = σу (х), σz = σz (х) - соответственно горизонтальная и вертикальная дисперсия примеси. Значения σy и σz для величин х, лежащих в интервале 102< x < 104 м , вычислились по формуле Бригса [ 39 ]: σу(х) = σ0х/(1+с2х)1/2, σz = a1xВ1/(1+а2хВ2), σ0 = =с1(τ/τ0)0.2 (здесь τ- время усреднения , τ0 = 6⋅102с) ; Н - высота источника промышленного выброса ( трубы ); V - скорость ветра. Значения а1 ,а2, в1 ,в2 , с1 , и с2 приведены в табл. 2.1.

На рис.2.1. представлена зависимость высоты области максимальной концентрации примеси для вертикальной плоскости сечения шлейфа от расстояния до источника выбросов при различной стратифакции пограничного слоя атмосферы. Из рис. 2.1 видно, что оптимальной для мониторинга областью является участок шлейфа , лежащий на расстоянии от 500 м до 10 км от источника выбросов. Из сравнения рис.2.1а) и 2.1б) также следует, что значительное влияние на характер распространения шлейфа оказывают неровности подстилающей поверхности, в частности, деревья, городские строения и пр. Влияние таких неровностей можно учесть с помощью изменения параметра шероховатости поверхности, величина которого определяет значения σy и σz в выражении (2.4).

На рис. 2.2 показана форма шлейфа при параметрах шероховатости, характерных как для лесистой местности, так и для городских окраин. В этом случае вертикальная дисперсия примеси определялась из выражения

σz = a1 х(1+ a2 х)В2

В [36] все расчеты проводились для умеренно неустойчивой , безразличной и умеренно устойчивой стратификации (классы устойчивости по Пасквиллу-Тернеру, n = 3,4,5 соответственно).Режим с n=3 (согласно данных метеорологических наблюдений за состоянием пограничного слоя атмосферы [ 39 ] ) наиболее часто реализуется в неустойчивые периоды времен года: весной, осенью. Из рис. 2.2 следует, что в случае шероховатости поверхности заметно уменьшение оптимального участка шлейфа по сравнению с его размерами, характерными для ровной подстилающей поверхности. В результате этого в случае шероховатой поверхности активному радиационному облучению будут подвергаться большие объемы атмосферного воздуха.

Таким образом, на основании проведенных расчетов [ 36 ] с учетом параметров приемной антенны можно определить наиболее удобное размещение и направление антенны для детектирования СВЧ излучений атмосферного водорода Н и гидроксила ОН, генерируемых из шлейфа радиоактивных выбросов, в конкретной метеорологической обстановке. Для узконаправленных антенн с диаграммой направленности приблизительно по 10° оптимальное расстояние от антенны до шлейфа составляет 25 - 27км. На этом расстоянии можно осуществлять контроль за наиболее перспективным участком шлейфа выбросов , который удален на расстоянии от 500м до 10км от источника.

*ОТРИЦАТЕЛЬНЫЕ ФАКТОРЫ , ВЛИЯЮЩИЕ НА ВОЗМОЖНОСТЬ РЕАЛИЗАЦИИ ПАССИВНОГО МЕТОДА ДИСТАНЦИОННОГО КОНТРОЛЯ ЗА ДЕЯТЕЛЬНОСТЬЮ ЯДЕРНО-ПЕРЕРАБАТЫВАЮЩИХ ПРЕДПРИЯТИЙ.*

К числу факторов , определяющих возможность реализации пассивного метода экологического мониторинга перерабатывающих предприятий ядерного цикла по их выбросам в атмосферу и влияющих на точность измерений , следует отнести

во-первых , наличие в атмосфере фоновой концентрации атомарного водорода и ,

во-вторых , природный электромагнитный фон любого происхождения в СВЧ диапазоне длин волн на высотах , меньших 10 км.

Рассмотрение начнём с источников образования атомарного водорода и гидроксила ОН и их фоновой концентрации в атмосфере. Для чего обратимся к рис.2.3 , взятому из работы [ 39 ]. Атомарный водород Н и гидроксил ОН принадлежат к семейству нечётного водорода. Для них характерна высокая реактивность, которая оказывает существенное влияние на протекание химических процессов в атмосфере. Время жизни этих компонентов меньше постоянных времени их переноса. По этой причине концентрация атомарного водорода Н и гидроксила ОН определяется фотохимическими , а не динамическими процессами. Поскольку основным источником их образования в атмосфере является фотодиссоциация долгоживущих водосодержащих веществ , то содержание этих компонентов зависит от потока солнечного излучения , другими словами , от солнечной активности , времени года и дня. Из рис. 2.3. также следует , что на высотах , меньших 60 км , постоянная времени жизни атомарного водорода τн стремится к нулю.

На рис. 2.4. приведены расчёты концентраций водородных радикалов в зависимости от высоты [ 39 ]. В верхней атмосфере атомарный водород является основным компонентом в семействе водородных радикалов. Однако при Н < 75 км его концентрация становится меньше концентрации других водородных соединений , а при Н < 10 км его содержанием в атмосфере уже можно пренебречь. Такое неравномерное распределение концентрации атомарного водорода по высоте связано , в первую очередь , с существованием озонового слоя , который поглощает основную долю ультрафиолетового слоя на высотах 20÷25 км (λ<290 нм) и тем самым влияет на процесс фотолиза атмосферных газов , ответственный за образование Н.

В [ 36 , 39 ] отмечается , что на основании многочисленных измерений химического состава нижней атмосферы образование атомарного водорода Н обусловлено фотолизом таких соединений , как метан СН4 , аммиак NH3 , молекулярный водород Н2 , формальдегид НСНО и вода Н2О , суммарная концентрация которых в атмосфере Земли составляет приблизительно 1019÷1020 м-3. Приведём основные реакции фотолиза.

Разложение метана излучением с длиной волны λ=110÷160 нм происходит в результате протекания следующих реакций :

СН4 + hυ → CH3 + H , ( 2.5 )

СН4 + hυ → СН2 + Н2 ; Н2 + hυ → H + H , ( 2.6 )

СH4 + hυ → CH + H2 + H , ( 2.7 )

Спектр поглощения ультрафиолетового излучения в этой области непрерывен.

Фотолиз аммиака происходит под действием ближнего и вакуумного ультрафиолета и состоит из трёх основных первичных процессов :

NH3 + hυ → NH2 + H λ < 280 нм , ( 2.8 )

NH3 + hυ → NH + H2 λ < 224 нм , ( 2.9 )

NH3 + hυ → NH + H + H λ < 1457 нм , ( 2.10 )

Процессы ( 2.8 ) и ( 2.10 ) являются наиболее вероятными при диссоциации , когда длина волны излучения λ < 280 нм.

Основной первичный фотохимический процесс при фотодиссоциации формальдегида происходит по схеме

HCHO + hυ → H + HCO ( пороговая длина волны λ ~ 350 нм ).

Основным первичным процессом при диссоциации молекул воды , когда λ ~ 105 ÷ 190 нм является образование атомарного водорода и гидроксила ОН

H2O + hυ → H + OH λ < 242 нм.

Кроме того , молекулярный водород Н2 образующийся в результате протекания второстепенных ( то есть не приведённых выше ) реакций , может также диссоциировать в атмосфере под действием излучения с длинами волн λ = 84,47 ÷ 110,8 нм по схеме

Н2 + hυ → H + H ( 2.11 )

На основании проведённого рассмотрения следует , что существует ряд каналов , по которым в реальной атмосфере образуется атомарный водород и гидроксил ОН в результате процессов фотолиза водородосодержащих соединений. Равновесная концентрация атомов Н и радикала ОН определяется процессами рождения и рекомбинации. Однако их фоновая концентрация ( а следовательно , и излучение в СВЧ диапазоне длин волн ) должны быть меньше тех , что образуются в результате выбросов в атмосферу радиоактивных веществ.

Остановимся теперь на фоновом излучении , которое характерно для высот , меньших 10 км. По своему происхождению электромагнитный фон можно разделить на природный и техногенный. Излучения атомарного водорода и гидроксила ОН , являющиеся индикаторами радиоактивного загрязнения атмосферы , относятся к категории техногенного электромагнитного фона. Выше отмечалось , что их регистрация возможна лишь в случае выделения полезного сигнала на уровне шумов.

В свою очередь природный электромагнитный фон может иметь атмосферное либо литосферное происхождение. Кроме того существует ещё и космическое радиоизлучение. Рассмотрение начнём с литосферного электромагнитного фона [40]. Полная классификация электромагнитного фона приведена в табл. 2.3 .

Генерация электромагнитного излучения из литосферы в свободное пространство обусловлена преимущественно двумя механизмами [40,41] :

а) *адгезионно - когезионным* механизмом генерации , при котором его появление вызвано образованием разрядов между свежезаряженными стенками разрушающихся минералов ;

б) *флуктуационным* механизмом генерации излучения , который вызван наличием остаточной поляризации минералов , изменяющейся под действием тепловых или радиационных полей , что в свою очередь приводит к перераспределению энергии и появлению в минералах электрических и электромагнитных полей.

Не вдаваясь в подробности протекания перечисленных процессов , отметим лишь , что литосферное электромагнитное излучение регистрируется в диапазоне от 100 кГц до 2.5 МГц , то есть находится далеко от тех частот , которые излучают как атомарный водород , так и гидроксил ОН.

Источниками электромагнитного излучения в атмосфере являются (см. табл. 2.3 ) :

а) грозовые разряды ;

б) предгрозовое радиоизлучение ;

в) непрерывно - шумовое радиоизлучение грозовых облаков и циклонов.

Радиоизлучение линейной молнии исследовалось в работах [ 42 , 43 ]. Оно было регистрировано в узком диапазоне частот ( 0.1 ÷ 0.2 ) ГГц через 0.1 ÷ 0.4 с после появления лидера грозового разряда и продолжалось в среднем около 50 нс. Спектральная плотность такого излучения оказалась низкой и составляла 10-12 ÷ 10-10 Вт/см2 Гц на расстоянии 1 км от молнии.

Физическая природа двух последних видов излучений обусловлена , с одной стороны , колебаниями поверхностей заряженных капель воды и , с другой стороны , их дроблением коагуляцией. Непрерывно - шумовое радиоизмерение грозовых облаков и циклонов наблюдается на частотах от сотен кГц до сотен МГц.

Излучают радиоволны и различные светящиеся объекты , возникающие в атмосфере и имеющие , как правило , плазменное происхождение ( см. табл. 2.3 ) . Однако все эти явления принадлежат к числу непериодических быстропротекающих процессов и время их жизни значительно меньше , чем время жизни радиоактивного облака ( или шлейфа ) в атмосфере. По этой причине они вряд ли окажут решающее влияние на результаты измерений.

К природному электромагнитному фону относится также космическое радиоизлучение. Для него мощность шума выражается через радиационную температуру , которая соответствует температуре абсолютно чёрного тела , когда суммарные мощности обоих излучений равны. Кривые изменения радиационной температуры шумов от частоты представлены на рис. [ 44 ].

Из рис. 2.5 видно , что мощность шумов различных видов радиоизлучения оказывается меньшей в полосе частот 1.0 ÷ 10.0 ГГц. Строго говоря , эта величина зависит от времени суток , однако не превышает 10-21 Вт/м2 [ 39 ]. Ослабление радиоизлучения на частоте 1.4 ГГц за счёт поглощения его в атмосфере не превышает 2 дБ при различных углах места ϕ приёмной антены [ 45 ]. При ϕ = 90° в спокойной атмосфере оно минимально и составляет всего 0.03 дБ. Фоновый аэрозоль не оказывает также заметного влияния на поглощение радиосигналов. Значения коэффициентов ослабления при распространении радиоволн в дожде составляют 0.002 ÷ 0.010 дБ/км. В [ 36 ] для уменьшения уровня шумов атмосферного водорода измерения предлагается производить в тёмное время суток. Co своей стороны, мы полагаем , что мощность полезного сигнала возрастёт , если измерения проводить не во время дождя , а при относительной влажности воздуха , близкой к 100%. В этом случае резко возрастает выход атомарного водорода и гидроксила ОН при разложении молекул Н2О , вследствие их радиоактивного облучения.