

ДИСТАНЦИОННОЕ ЗОНДИРОВАНИЕ АТМОСФЕРЫ И ПОДСТИЛАЮЩЕЙ ПОВЕРХНОСТИ

УДК 551.530:538

С.Т. Пенин, Л.К. Чистякова

ФОРМИРОВАНИЕ И ДИНАМИКА ИЗЛУЧЕНИЙ АТОМАРНОГО ВОДОРОДА В АТМОСФЕРЕ И ШЛЕЙФЕ ВЫБРОСОВ ЯДЕРНО-ПЕРЕРАБАТЫВАЮЩИХ ПРЕДПРИЯТИЙ

Предложен метод экологического мониторинга перерабатывающих предприятий ядерного цикла по их выбросам в атмосферу на основе детектирования излучения атомарного водорода с частотой 1420 МГц (длина волны – 21,1 см), который образуется вследствие взаимодействия радиоактивных элементов с атмосферными газами, в особенности с водяным паром. Проведены оценки амплитудных характеристик сигнала, обусловленного излучением атомарного водорода в шлейфе выбросов ядерно-перерабатывающего предприятия.

Методом компьютерного моделирования оценено влияние атмосферы на распространение шлейфа и на объемную концентрацию атомов водорода. Получены соотношения, позволяющие определять оптимальные условия приема излучений для различных метеорологических условий.

Введение

В работе [1] предложено регистрировать радиоактивные загрязнения путем измерения СВЧ-излучения, обусловленного трансформацией паров воды под действием радиации при авариях на объектах ядерной энергетики, в том числе в диапазоне 1420, 1612, 1665, 1667 и 1721 МГц. В настоящей статье содержатся результаты анализа и оценок возможностей экологического контроля деятельности перерабатывающих предприятий ядерного цикла (РХЗ) по их выбросам в атмосферу на основе детектирования излучения атомарного водорода с частотой 1420 МГц (длина волны 21,1 см), который образуется вследствие взаимодействия радиоактивных элементов с атмосферными газами и водяным паром. Это излучение обусловлено сверхтонким расщеплением основного уровня энергии атома на два близлежащих подуровня. Причиной расщепления является взаимодействие спинов ядра и электрона. Энергия атома при параллельном расположении спинов электрона и ядра несколько выше, чем при антипараллельном. При спонтанном изменении ориентации спина электрона на противоположную происходит испускание кванта излучения с частотой 1420.40575 МГц ($\lambda = 21,1$ см). Предполагается, что концентрация атомарного водорода в шлейфе атмосферного выброса РХЗ должна быть повышенной вследствие радиоактивного облучения больших объемов атмосферного воздуха.

В данной работе анализируются фотохимические процессы, приводящие к образованию атомарного водорода в радиоактивном шлейфе выбросов ядерно-перерабатывающего предприятия и в атмосфере, и оценивается влияние атмосферных условий на распространение излучающего шлейфа. Проводится оценка мощности фонового излучения в этом диапазоне, состоящего из излучений галактического водорода и водорода, образующегося в атмосфере за счет фотохимических процессов. Рассматриваются процессы, определяющие образование, время жизни и динамику концентрации атомов Н. На основе проведенного анализа определяется возможность выделения полезного сигнала на фоне шума.

1. Источники образования и фоновая концентрация атомарного водорода в атмосфере

Атомарный водород Н, как и гидроксил ОН, относят к семейству нечетного водорода. Высокая реактивность этих составляющих делает их весьма существенными для химических процессов в атмосфере. Время жизни водородных радикалов существенно зависит от высоты (рис. 1) [2].

Для всех компонентов семейства время жизни меньше постоянных времени переноса, поэтому концентрация водородных радикалов определяется фотохимическими, а не динамическими процессами. Кроме того, содержание этих компонентов зависит от потока солнечного излучения (и, соответственно, от времени дня и года), поскольку основным источником их образования является фотодиссоциация долгоживущих водородных составляющих.

На рис. 2 показано вертикальное распределение концентрации водородных радикалов, вычисленное для полудня в марте [2].

В верхней атмосфере (термосфере) атомарный водород является доминирующим компонентом всего семейства, тогда как ниже уровня 75 км его концентрация намного меньше концентрации других водородных соединений.

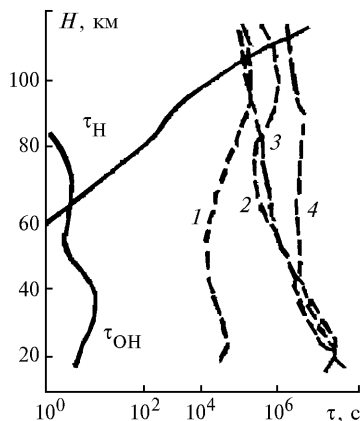


Рис. 1. Фотохимическое время жизни H и OH и постоянные времени зонального (1), меридионального (2) и вертикального (3) переноса и одномерной диффузии (4)

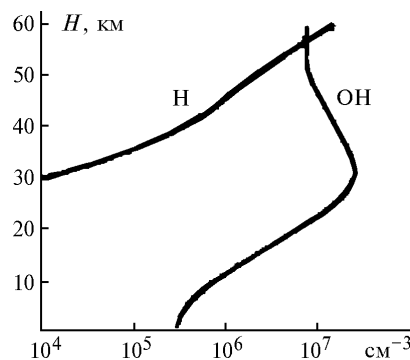
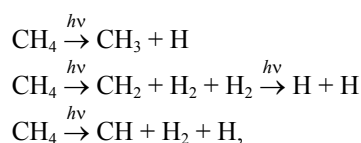


Рис. 2. Модельное распределение концентрации (см⁻³) атомарного водорода H и радикала OH

Ниже уровня 10 км концентрация атомарного водорода в атмосфере становится пренебрежимо малой, поскольку излучение, ответственное за фотолиз атмосферных газов с образованием H ($\lambda < 2900 \text{ \AA}$), полностью поглощается озоновым слоем, располагающимся на высотах 10–30 км [3].

Рассмотрим источники образования атомарного водорода в стандартной нижней атмосфере. На основании многочисленных измерений химического состава атмосферы [4] можно сделать вывод, что образование атомарного водорода в атмосфере обусловлено фотолизом следующих соединений: метана CH₄, аммиака NH₃, молекулярного водорода H₂, формальдегида HCHO и воды H₂O. Суммарная концентрация молекул этих веществ в атмосфере составляет $\sim 10^{19} - 10^{20} \text{ 1/м}^3$. В [5] обобщены данные разных авторов по фотохимии таких соединений. Мы остановимся только на реакциях, приводящих к образованию атомарного водорода, и рассмотрим условия их протекания.

Первичные процессы фотолиза метана излучением с длиной волны $\lambda - 1100 - 1600 \text{ \AA}$ можно представить в виде реакций:



причем спектр поглощения в этой области непрерывен.

Для аммиака три основных первичных процесса протекают при фотолизе излучения в области ближнего и вакуумного ультрафиолета:



Процессы (1) и (3) являются более вероятными при диссоциации светом с длиной волны $< 2800 \text{ \AA}$.

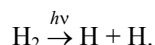
Основным первичным фотохимическим процессом при фотодиссоциации формальдегида является реакция



Для молекул воды основным первичным процессом при фотодиссоциации в области длин волн 1050 – 1900 Å является образование Н и ОН:



Образующийся в результате второстепенных, по сравнению со всеми указанными выше, реакций молекулярный водород может диссоциировать в атмосфере под действием излучения в диапазоне с 844,7 ÷ 1108 Å по схеме



На основании рассмотренных реакций можно заключить, что в процессе образования атомарного водорода наибольший вклад вносит излучение с $\lambda = 844,7 \div 3500 \text{ \AA}$. Равновесная концентрация атомов Н при этом будет определяться процессами рождения и рекомбинации.

2. Формирование и динамика излучений атомарного водорода в шлейфе

Характерной особенностью выбросов предприятий по переработке ядерного топлива является наличие в шлейфе выброса радиоактивных изотопов ряда элементов. Анализ данных по выбросам предприятий ядерного цикла, работающих по замкнутой схеме, показал, что наиболее значительным из выбрасываемых радиоактивных элементов по суммарной активности является изотоп $^{85}\text{Кг}$, годовой выброс которого составляет $1,6 \cdot 10^7$ Кюри для радиохимического завода производительностью 1500 т в год [6]. В пересчете на стационарный источник выбросов, обладающий стандартными параметрами (труба высотой $H = 200$ м, диаметром $D = 2$ м, скорость выброса $V = 10$ м/с) получаем, что активность каждого кубического метра выброса составляет $6 \cdot 10^8$ Бк. Поскольку $^{85}\text{Кг}$ является β -активным изотопом, получаем, что в результате его распада в каждом кубическом метре выброса появляется $6 \cdot 10^8$ электронов в секунду с энергией 0,67 МэВ. В процессе распространения шлейфа происходит его расширение из-за вертикальной и горизонтальной диффузии и под действием ветра. Ниже представлены результаты расчета среднего распределения концентрации атомов $^{85}\text{Кг}$ в зависимости от расстояния до источника.

Для оценки концентрации радионуклидов в шлейфе мы использовали модель гауссовой диффузии от непрерывного источника [2]. Данная модель выбрана потому, что она широко используется в мировой практике и положена в основу большинства нормативных документов по ограничению загрязнения воздуха промышленными выбросами. Согласно этой модели концентрация примесей в выбросе выражается формулой

$$N = \frac{Q}{2\pi\sigma_y\sigma_z u} \left[\exp\left(-\frac{(z-H)^2}{2\sigma_z^2}\right) + \exp\left(-\frac{(z+H)^2}{2\sigma_z^2}\right) \right] \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma_y^2}\right), \quad (4)$$

где Q – мощность источника; $\sigma_y = \sigma_y(x)$, $\sigma_z = \sigma_z(x)$ – горизонтальная и вертикальная дисперсии примеси. Значения σ_y и σ_z для $10^2 < x < 10^4$ м вычислялись по формуле Бригса [2]: $\sigma_y(x) = \sigma_\theta x / (1 + c_2 x)^{1/2}$, $\sigma_z = a_1 x^{b_1} / (1 + a_2 x^{b_2})$, $\sigma_\theta = c_1 (\tau / \tau_0)^{0,2}$ (τ – время усреднения, $\tau_0 = 10$ мин); H – высота источника; u – скорость ветра. Значения a_1 , a_2 , b_1 , b_2 , c_1 и c_2 представлены в табл. 1.

Т а б л и ц а 1

Класс устойчивости	σ_y		σ_z			
	c_1	c_2	a_1	a_2	b_1	b_2
3	0,11	10^{-4}	0,1120	$9,05 \cdot 10^{-4}$	0,920	0,718
4	0,08	10^{-4}	0,0980	$1,35 \cdot 10^{-3}$	0,889	0,668
5	0,06	10^{-4}	0,0609	$1,96 \cdot 10^{-3}$	0,895	0,684

На рис. 3 показана зависимость высоты области максимальной концентрации примеси от расстояния до источника для вертикальной плоскости сечения шлейфа при различной стратификации пограничного слоя атмосферы. Исходя из этих данных, можно сделать вывод, что наилучшей для наблюдения областью шлейфа является участок от 500 м до 10 км от источни-

ка. Следует также отметить, что значительное влияние на распространение шлейфа выброса оказывают неровности подстилающей поверхности, связанные с наличием деревьев, а также городских строений. Такие неровности можно учесть с помощью изменения параметра шероховатости поверхности, величина которого влияет на σ_y и σ_z в выражении (4).

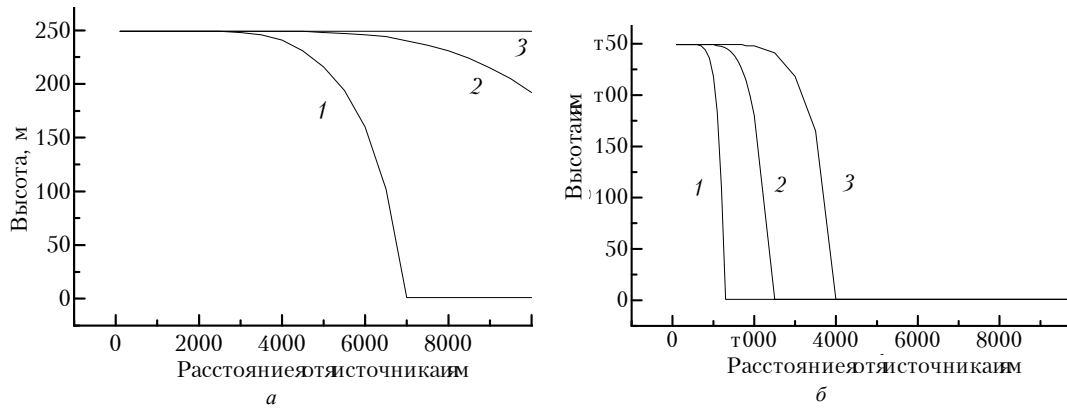


Рис. 3. Высотная зависимость уровня максимальной концентрации радионуклидов в шлейфе от расстояния до источника для различных показателей стратификации атмосферы: 1 – $n = 3$; 2 – $n = 4$; 3 – $n = 5$; а – гладкая поверхность; б – неровная поверхность: лес или пригород

На рис. 4 показана форма шлейфа при параметре шероховатости, характерном для лесистой местности и для городских окраин. В этом случае σ_z определяется выражением

$$\sigma_z = a_1 x(1 + a_2 x)^{b_2}.$$

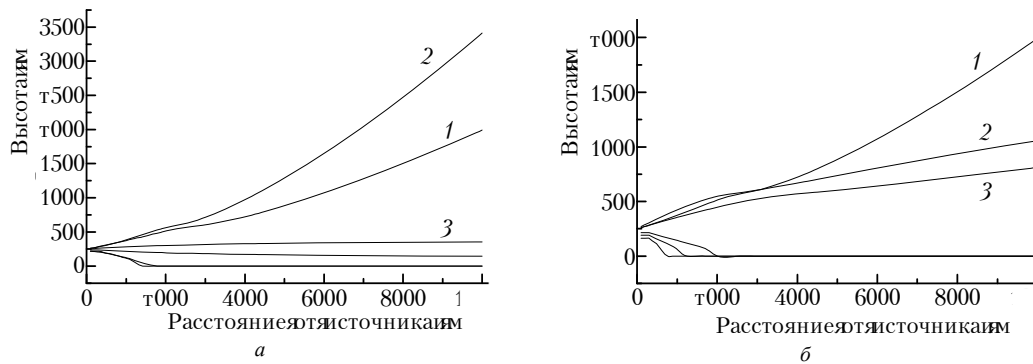


Рис. 4. Контуры шлейфа выброса по уровню 1/е от максимальной концентрации радионуклидов для различных показателей стратификации атмосферы: 1 – $n = 3$; 2 – $n = 4$; 3 – $n = 5$. а – гладкая поверхность; б – неровная поверхность: лес или пригород

Параметры в выражении для σ_z , σ_y выбираются из табл. 2.

Таблица 2

Класс устойчивости	σ_y , я		σ_z , я		
	c_1 , я	c_2 , я	a_1 , я	a_2 , я	b_2 , я
3я	0,22я	$4 \cdot 10^{-3}$ я	0,20я	0я	0я
4я	0,16я	$4 \cdot 10^4$ я	0,14я	$3 \cdot 10^4$ я	-0,5я
5я	0,11я	$4 \cdot 10^4$ я	0,08я	$1,5 \cdot 10^4$ я	-0,5я

Все расчеты проводились для умеренно неустойчивой, безразличной и умеренно устойчивой стратификации (классы устойчивости по Пасквиллу–Тернеру, $n = 3, 4, 5$ соответственно). Как следует из данных метеорологических наблюдений за состоянием пограничного слоя атмосферы [2], режим с $n = 3$ наиболее часто реализуется в неустойчивые периоды: весна, осень. Заметно уменьшение оптимального участка шлейфа по сравнению с его размерами, характер-

ными для ровной подстилающей поверхности. В результате активному радиационному облучению будут подвергаться большие объемы атмосферного воздуха. Исходя из полученных результатов и учитывая параметры приемной антенны, можно определять наиболее удобное размещение и направление антенны для детектирования микроволнового излучения шлейфа в конкретной метеорологической ситуации. Для узконаправленных антенн с диаграммой направленности $\sim 10^\circ$ оптимальное расстояние от антенны до шлейфа 25 – 27 км. Такое расстояние позволяет наблюдать наиболее перспективный участок шлейфа выброса от 500 м до 10 км.

3. Оценки интенсивности, времени жизни и уширения линии излучения атомарного водорода в шлейфе

Для оценки интенсивности излучения шлейфа, ее спектра и изменений во времени рассмотрим физические механизмы взаимодействия радионуклидов с атмосферой. Основным механизмом воздействия радиации на атмосферу будем считать тормозное излучение электронов, образовавшихся при распаде изотопа ^{85}Kr . Известно, что спектр тормозного излучения характеризуется равномерным распределением по энергиям. Характерная длина, на которой электрон теряет свою энергию в атмосферных условиях, составляет $\sim 3 \cdot 10^4$ см [7]. Для расчета энергии, излучаемой электроном в данный спектральный интервал, необходимо решать сложную квантово-механическую задачу с учетом всех возможных стоков энергии электрона за счет упругих и неупругих столкновений, усредняя по всем возможным возбужденным состояниям атомов и молекул. Такое решение было бы слишком громоздким и малоприменимым для численных оценок. В данном случае, исходя из выводов классической электродинамики, можно получить результат, вполне пригодный для оценок. Поскольку сам акт рассеяния происходит очень быстро по сравнению с периодом осцилляций поля, можно записать формулу для количества энергии, излученной электроном при торможении в частотный интервал от ω до $\omega + \Delta\omega$ в виде [7]

$$d\varepsilon_\omega = \frac{2}{3\pi} \frac{e^2}{c^3} (\Delta v)^2 d\omega, \quad (5)$$

где e – заряд электрона; c – скорость света; Δv – изменение вектора скорости при рассеянии. Этой формулой можно с успехом пользоваться в области частот от ω_{\max} , которая в данном случае равна 10^{21} 1/с. Чтобы найти мощность Q_ω , которую электрон излучает в спектральный интервал $d\omega$, нужно просуммировать $d\omega$ по всем столкновениям.

Принимая величину частоты столкновений порядка газокINETической [7] (10^{14} с $^{-1}$) и считая рассеяние изотропным, после суммирования получим $Q_\omega = 1,5 \cdot 10^{-2}$ эрг/с. Это означает, что за время торможения одного электрона ($\sim 10^{-6}$ с) в спектральный интервал от 844,7 до 3500 Å будет излучена энергия, равная $1,5 \cdot 10^{-8}$ эрг или 10^4 эВ. При этом следует учесть, что коэффициент поглощения рассматриваемых нами соединений для данного спектрального интервала составляет в среднем 500 атм $^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$. Для сравнения коэффициент поглощения молекулярного азота N_2 в отдельных узких полосах может достигать значений $50 \div 100$ атм $^{-1} \cdot \text{см}^{-1}$. Исходя из приведенных оценок, можно надеяться, что в результате распада изотопа ^{85}Kr в области шлейфа выброса будет образовываться примерно $1,5 \cdot 10^{12}$ м $^{-3} \cdot \text{с}^{-1}$ атомов водорода.

Скорость рекомбинации атомов водорода и радикалов ОН оценим из уравнения [5]:

$$\frac{dc}{dt} = 2 k c^2, \quad (6)$$

где c – концентрация атомов и радикалов, 1/м 3 ; k – коэффициент рекомбинации, м 3 /с.

Уравнение (6) справедливо, когда рекомбинация является основным механизмом исчезновения атомов водорода, что характерно для атмосферных условий. В этом случае оценим стационарную концентрацию H в шлейфе. Из экспериментальных данных известно [5], что константа скорости рекомбинации для атомов нейтрального водорода в нормальных условиях $k \sim 10^{-13} \div 10^{-14}$ м $^3 \cdot \text{моль}^{-1} \cdot \text{с}^{-1}$.

Так как скорость образования H в 1 м 3 равна $I_H \sim 1,5 \cdot 10^{12}$ (1/м $^3 \cdot \text{с}$), то, исходя из решения уравнения (6), получим соотношение для стационарной концентрации H :

$$c \approx \sqrt{I_H / 2k} \sim (2,5 \div 8,5) \cdot 10^{12} \text{ м}^{-3}.$$

Таким образом, концентрация атомов водорода в 1 км^3 шлейфа выброса составит $\sim 10^{21} \div 10^{22}$ атомов.

Интенсивность излучения (линии) определяется вероятностью радиационного перехода A_{nk} и может быть определена по формуле [8]:

$$S = 2\pi \hbar \omega_{nk} A_{nk}, \quad (7)$$

где $2\pi \hbar \omega = E_n - E_k$ – энергия кванта; \hbar – постоянная Планка.

Согласно [8], энергия сверхтонкого расщепления основного уровня атома водорода составит $\sim 10^{-24}$ Дж для $\Delta\nu(F, F^1) = 1420,4057517$ МГц. Вероятность перехода A_{nk} равна $3 \cdot 10^{-15} \cdot \text{с}^{-1}$ (см. [10]). Тогда мощность излучения атома при одном акте радиационного перехода S равняется $3 \cdot 10^{-15} \cdot 10^{-24} = 3 \cdot 10^{-39}$ Вт. Так как концентрация атомов водорода в одном кубическом километре шлейфа составляет $\sim 10^{21} \div 10^{22}$ атомов, мощность, излучаемая указанным объемом на частоте 1420 МГц, равна $\sim 2 \cdot 10^{-17} \div 8 \cdot 10^{-18}$ Вт.

Уширение линии излучения атома водорода обусловлено эффектом Доплера, вызванного поступательным движением атомов. Столкновительный механизм уширения не рассматривается, так как излучение обусловлено сверхтонким расщеплением энергетического уровня. Скорость поступательного движения определяется распределением избыточной энергии при фотоллизе водородосодержащих молекул по фотофрагментам. Исходя из данных эксперимента [5] по измерению поступательных скоростей фотофрагментов, энергия поступательного движения атомов водорода не превышает 2 эВ, следовательно, доплеровская ширина линии водорода 1420 МГц не может быть больше 150 КГц.

4. Фоновое излучение на частотах 1–3 ГГц

Основными источниками, затрудняющими прием излучения атомарного водорода в шлейфе выброса ядерно-перерабатывающего предприятия, являются фон космического радиоизлучения и излучение самой атмосферы в данном спектральном диапазоне. Мощность шума выражается через его радиационную температуру, которая соответствует температуре абсолютно черного тела, суммарная мощность излучения которого совпадает с шумовой. На рис. 5 приведена зависимость радиационной температуры шумов от частоты [9].

Видно, что в спектральном интервале $1,2 \div 10$ ГГц шумы минимальны. Суммарная интенсивность шумового фона на уровне Земли сильно зависит от времени суток, однако не превышает 10^{-21} Вт/м² [2]. Ослабление излучения с частотой 1,4 ГГц за счет поглощения его в атмосфере не превышает 2 дБ при различных углах места антенны, причем при угле места 90° оно составляет 0,03 дБ в спокойной атмосфере [10]. Наличие фонового аэрозоля практически не влияет на поглощение сигнала и в обычных условиях может не учитываться. Значения коэффициентов ослабления в дожде различной интенсивности от 1,0 до 100 мм/ч, по данным Международного консультативного комитета по радио (МККР), составляют величину от 0,002 до 0,01 дБ/км. Уровень шумов можно существенно снизить, если проводить измерения в темное время суток, когда шумы, обусловленные излучением атмосферного водорода, минимальны.

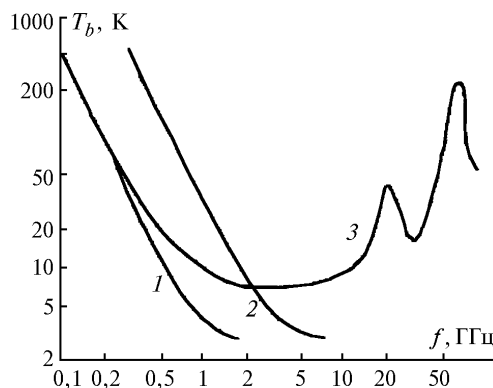


Рис. 5. Зависимость мощности фонового излучения от частоты: космический фон без атмосферы (1), он же с учетом атмосферы (2) и атмосферный фон (3)

Заключение

Таким образом, проведенные оценки показывают, что концентрация атомарного водорода в области шлейфа выброса должна быть повышенной вследствие радиоактивного облучения атмосферного воздуха и может составлять $\sim 10^{21} \div 10^{22} \text{ км}^{-3}$. При этом мощность, излучаемая атомарным водородом с 1 км^3 в 1 с на частоте 1420 МГц, должна быть $\sim 2 \cdot 10^{-17} \div 8 \cdot 10^{-18} \text{ Вт}$.

В процессе распространения шлейфа происходит его расширение из-за вертикальной и горизонтальной диффузии и под действием ветра. Активному радиационному облучению будут подвергаться объемы атмосферного воздуха, занимаемые шлейфом и непосредственно прилегающие к нему, вследствие чего излучающий объем может быть более 10 км^3 .

Так как мощность шумовых излучений на данной частоте с учетом атмосферного ослабления составляет 10^{-22} Вт , то использование высокочувствительных приемников позволит уверенно детектировать наличие радионуклидов в промышленных выбросах.

Таким образом, предложенный пассивный дистанционный метод экологического мониторинга деятельности ядерно-перерабатывающих предприятий по излучению атомарного водорода в шлейфе атмосферных выбросов представляется перспективным для практического применения.

1. Протасевич Е.Т. // Оптика атмосферы и океана. 1994. Т. 7. N 5. С. 697–700.
2. Атмосфера: Справочник под ред. Ю.С. Седунова. М.: Гидрометеиздат, 1991. 1067 с.
3. Таблицы физических величин / Под ред. академика И.К. Кикоина. М.: Атомиздат, 1976. 1182 с.
4. Butcher S.S., Charlson R.J. // Academic Press. New York and London, 1972. 309 p.
5. Mudio Okabe. Photochemistry of Small Molecules. A. Wiley-Interscience Publication. New York, 1978. P. 500.
6. Батаев Н.С., Дёмин В.Е. Ядерная промышленность. Люди и окружающая среда. М.: Энергоиздат, 1984. С. 191.
7. Райзер Ю.П. Лазерная искра и распространение разрядов. М.: Наука, 1974. 374 с.
8. Goldsmith D., Owen T. The Search for life in the Universe. М.: Mir, 1983. 488 p.
9. Шкловский И.С. Космическая радиация. М.: Гостехиздат, 1956. 341 с.
10. Спутниковая связь и радиовещание. М.: Радио и связь, 1988. 344 с.

Институт оптики атмосферы СО РАН,
Томск

Поступила в редакцию
10 октября 1996 г.

S.T. Penin, L.K. Chistyakova. **Generation and Dynamics of Atomic Hydrogen Radiation in Atmosphere and in Emission Plume of Nuclear Reprocessing Plants.**

The method is offered for ecological monitoring of reprocessing plants of nuclear cycle through their emission in the atmosphere of the atomic hydrogen radiation of 1420 Mhz frequency (wavelength is 21.1 cm). Atomic hydrogen is generated due to interaction of the radioactive elements with atmospheric gases, in particular, with water vapor.

The amplitude of the signal stipulated by the atomic hydrogen radiation is estimated as well as the influence of the atmosphere on the emission plume propagation and on volumetric concentration of hydrogen atoms. The relationships are obtained allowing determination of optimum geometric conditions for radiation reception in various meteorological situations.