

Л.К. Чистякова

Дистанционные методы обнаружения радиоактивных аномалий в приземной атмосфере

Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск

Поступила в редакцию 26.04.2001 г.

Проводится анализ активных дистанционных методов обнаружения радиоактивных аномалий в атмосфере, том числе с использованием эффектов, проявляющихся при взаимодействии лазерного излучения с продуктами радиолиза и фотохимических реакций компонент атмосферы. Представлен краткий анализ результатов, полученных с участием автора в области развития пассивных дистанционных технологий изучения радиоактивных загрязнений, обусловленных индустриальными выбросами промышленных объектов в атмосферу, а также метода лазерно-индуцированного пробоя аэрозолей.

Показано, что рассматриваемые технологии являются перспективными для экологического контроля радиоактивных загрязнений атмосферы. Их высокая чувствительность дает возможность регистрировать загрязнения на больших расстояниях от объекта, а использование пассивных и активных методов одновременно позволит получить более полную информацию о состоянии радиоактивных аномалий.

Одной из наиболее важных экологических проблем в последние годы является необходимость контроля радиоактивных загрязнений нижних слоев атмосферы. Наиболее перспективными для решения этой проблемы являются дистанционные методы, которые делятся на прямые, основанные на регистрации интенсивности и спектра излучений, и на косвенные, использующие эффекты, проявляющиеся в атмосфере при воздействии на нее радиации.

Хотя в настоящее время прямые методы получили наибольшее распространение, их низкая разрешающая способность и чувствительность позволяют проводить измерения на расстояниях не более сотен метров для γ -излучения. А α - и β -излучения вообще не могут быть зарегистрированы дистанционно из-за малой проникающей способности.

Среди косвенных методов контроля уровня ионизации атмосферы радиацией наиболее разработанным является метод радиолокации, когда концентрация заряженных частиц определяется по коэффициенту отражения зондирующего СВЧ-излучения, который является функцией степени ионизации [1–4]. Первые данные радиолокационного отклика от радиоактивного облака были получены в 1986 г. при аварии на Чернобыльской АЭС, затем цикл экспериментов в различных регионах [5] (общее число наблюдений составляет несколько сотен) продемонстрировал работоспособность метода при крупных аварийных выбросах продуктов радиоактивного распада в атмосферу в различных погодных условиях. Наблюдения проводились с использованием локаторов штатных радиовысотометров и станций наведенных сантиметрового и дециметрового диапазонов [6].

При низких уровнях загрязнений, когда концентрация ионов близка к фоновой и составляет 10^4 – 10^7 ион/см³, чувствительность стандартных радиолокаторов недостаточна. В настоящее время рассматриваются пути ее увеличения, например с использованием микроволновой компрессии для получения мощных коротких СВЧ-импульсов [4] с целью селекции передающего и приемного сигналов и уменьшения «слепой» зоны локатора, однако низкая разрешающая способность радиолокационных методов ограни-

чивает их возможности для локального радиационного мониторинга. Следует также отметить, что при систематических измерениях радиолокационные сигналы создают высокий электромагнитный фон, также представляющий экологическую опасность для территории.

В то же время другие проявления радиоактивности в атмосфере рассматриваются для ее идентификации, том числе фотохимические реакции компонент атмосферы [7,12] под действием радиации и эффекты, проявляющиеся при взаимодействии лазерного излучения с продуктами радиолиза [7, 8]. В литературе обсуждаются как некогерентные эффекты, связанные с аэрозольным, молекулярным и комбинационным рассеянием, так и когерентные эффекты, обусловленные резонансным поглощением и индуцированной флуоресценцией. При этом чувствительность методов, использующих резонансные эффекты, значительно выше [7, 9] за счет больших сечений поглощения. В работах [10, 11] также рассматривается возможность использования СВЧ-управляемого Мандельштама – Бриллюэновского рассеяния света атмосферной областью, ионизированной радиацией. Показано, что чувствительность такой методики может достигать 10^7 ион/см³. Однако для использования резонансных эффектов необходимы лазерные источники с длиной волны, находящейся в резонансе с электронным переходом конкретных газовых компонент, высокой степенью когерентности и достаточно большой мощностью (чтобы работать на больших дистанциях). Совокупность этих требований представляет определенные трудности в технической реализации этих методов.

В этой связи представляется актуальной разработка новых методов дистанционного измерения радиоактивности в атмосфере, позволяющих проводить анализ в режиме реального времени. Такие работы ведутся в Институте оптики атмосферы СО РАН совместно с научной кооперацией ученых Томского государственного университета, Томского политехнического университета, Сибирского физико-технического института. В данной статье рассмотрены некоторые физические аспекты образования атмосферных

аномалий под действием радиации и приведены результаты, полученные с участием автора в области развития новых технологий изучения оптических аномалий приземной атмосферы, обусловленных индустриальными выбросами промышленных объектов (по данным [12–19]).

1. Модельные представления атмосферных аномалий, возникающих при воздействии радиоактивных излучений

Известно, что излучение радиоактивных элементов возбуждает и ионизирует компоненты атмосферы. При этом основное влияние на среду оказывают возникающие при ионизации вторичные электроны, которые даже при энергии, меньшей, чем энергия ионизации молекул, способны возбуждать молекулы и приводить к диссоциации.

Особенностью ионизации приземной атмосферы, возникающей за счет выбросов радиоактивной примеси типичного радиохимического завода или горнорудного производства, являются высокая концентрация молекул электроотрицательного кислорода и наличие аэрозолей. В момент выброса возникает низкотемпературная, слабо ионизированная область, представляющая собой электронейтральные плазменные образования, состоящие из молекулярных и атомарных ионов обоих знаков. Однако в результате прилипания электронов и адсорбции молекулярных ионов на частицах атмосферного аэрозоля образуется значительное количество аэрозольных ионов и ионных кластеров, вследствие чего плазма из ионно-электронной становится аэрозольной. Внутри таких образований под действием электрического и магнитного поля Земли, а также гравитации могут происходить разделение зарядов и формирование локальных геоэлектрических полей. Следует отметить также возможность образования зеркальных ионосферных возмущений.

Анализ моделей радиационного воздействия на атмосферу показал [3, 4, 20, 21], что подавляющее большинство из них рассматривает радиоактивный выброс как жесткий ионизатор.

Решение системы кинетических уравнений для ионов проводится разными авторами для различных начальных условий, разных слоев атмосферы, различных наборов плазмохимических реакций (от десятка до сотен), с учетом трековой структуры процесса ионизации, а также с учетом или без комплексных и гидратированных ионов. Например, кинетика кластеров и аэрозольных образований, возникающих в нижней атмосфере за счет радиоактивных выбросов, рассмотрена в [20]. При этом учитываются диффузия всех частиц, дрейф заряженных частиц в локальном электрическом поле, падение больших частиц (или капель) и перенос малых частиц вверх восходящими воздушными потоками. Предполагается, что скорость рекомбинации малых заряженных частиц постоянна подобно элементарным ионам, а коэффициент прилипания линейно зависит от поля. Показано, что в нижней тропосфере под действием радиоактивных излучений возможно формирование локальных аномальных электрических полей (до нескольких $\text{kV}\cdot\text{m}^{-1}$). При этом разделение зарядов обусловлено переносом отрицательного заряда падающими каплями и переносом положительных зарядов восходящими конвективными потоками.

Ряд исследований показывает, что сильные электрические поля в тропосфере оказывают влияние на состояние ионосферы, приводя к кратковременным (менее 4 ч) колебаниям электронной плотности, распределения ионов и температуры. Один из возможных механизмов такого влияния – электродинамический [22], согласно которому сильные изменения вертикального электрического поля в нижней тропосфере приводят к появлению горизонтального поля в ионосфере.

Проблема проникновения электрического поля в ионосферу от источника, расположенного в приземной атмосфере, была впервые рассмотрена в работе [23]. В ней показано, что электрическое поле проникает в ионосферу, где его величина $\sim 1 \text{ мВ}\cdot\text{м}^{-1}$. Для атмосферного электрического поля эта величина является практическим нулем. Однако в ионосфере ею нельзя пренебречь. В [22] показано, что размер возмущенной области может достигать более 400 км. При этом максимальное изменение концентрации плазмы по отношению к невозмущенному значению составляет примерно 20%, а горизонтальное распределение концентрации характеризуется двумя ярко выраженными фокусами (положительного и отрицательного возмущения).

Распределение отклонения от среднего критической частоты было измерено в пределах нескольких часов после аварии на АЭС Three-Mile-Island спутником Интеркосмос-19 в 1979 г. и показало хорошее согласие с расчетной моделью [22]. Таким образом, модельные представления об электрических аномалиях в атмосфере под действием радиации могут быть использованы в методиках по мониторингу радиоактивных выбросов.

Перспективными методами регистрации радиоактивных аномалий, на наш взгляд, являются методы пассивной локализации нейтральных и возбужденных атомов и молекул, появляющихся в атмосфере в результате радиоактивного облучения [12, 13, 24]. Основные требования, которые необходимо применять к таким нейтральным индикаторам, – это стабильность их концентрации в обычной атмосфере и концентрационная чувствительность к воздействию радиации.

При таком подходе релаксационные процессы в слабоионизированной плазме нужно рассматривать не только как процессы, ответственные за убыль ионов, но и как процессы рождения нейтральных компонент, таких как атомы N, O, H, молекулы NO, NO₂, NO₃, радикалы OH и т.д.

На рис. 1 представлена зависимость плотности потока радиофотонов F , излучаемых при переходе на сверхтонкой структуре основного состояния радикала OH ($\lambda \approx 18 \text{ см}$) (а), и концентрация некоторых нейтральных компонент N (б) от мощности поглощенной дозы [25]:

$$F(\text{см}^{-2}\cdot\text{с}^{-1}) = \frac{1}{6} AN_{\text{OH}}R, \quad (1)$$

где $A = 7,7 \cdot 10^{-11} \text{ с}^{-1}$ – вероятность радиационного распада урона; R – радиус излучающей области.

Из рисунка видно, что расчетная плотность мощности потока излучения увеличивается до значений $\sim 10^{-25} \text{ Вт/см}^2$ при условии, что половина радикалов OH находится в излучательном состоянии. Кроме того, концентрации молекул NO, NO₂, H₂O₂, HO₂, радикала OH, а следовательно и атомарного водорода H, чувствительны к величине поглощенной дозы радиации, что делает возможным использовать их в качестве индикаторов радиоактивного загрязнения.

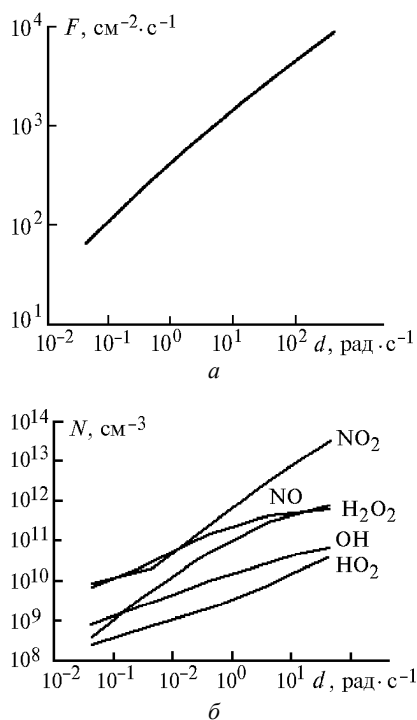


Рис. 1. Зависимость плотности потока радиофотонов F от мощности дозы радиоактивного облучения. Начальные условия: $T = 293$ К, влажность 90%, время экспозиции $e = 60$ с, начальная концентрация $N_{\text{OH}} = 10^6 \text{ см}^{-3}$

При наличии достоверных сведений об активности выбросов можно провести калибровку аппаратуры, что позволит осуществлять количественные измерения радиоактивности в шлейфе выбросов предприятий ядерного цикла, работающих в нормальном режиме, а также и в аварийных ситуациях.

2. Пассивная диагностика радиоактивности в атмосфере по СВЧ-излучению атомарного водорода

Остановимся на результатах, полученных для концентраций атомарного водорода и радикала OH.

Анализ литературных данных показал, что наибольший выброс предприятий ядерного цикла, работающих по замкнутой схеме, составляет изотоп $^{85}\text{Kг}$. При производительности предприятия 1500 т/год суммарный годовой выброс этого изотопа достигает $1,6 \cdot 10^7$ Ки [26]. В предположении, что выброс идет из трубы высотой 200 м диаметром 2 м при скорости истечения 10 м/с, активность каждого кубического метра выброса составляет величину порядка $6 \cdot 10^8$ Бк. При этом в результате распада $^{85}\text{Kг}$ в каждом кубическом метре образуется $6 \cdot 10^8$ электрон/с с энергией 670 кэВ. Появление электронов влечет диссоциацию паров воды и образование концентрации атомов водорода $10^{12} \text{ м}^{-3}/\text{с}$ при стандартных условиях. Это дает мощность микроволнового излучения атомарного водорода порядка $2 \cdot 10^{-17} \div 8 \cdot 10^{-17} \text{ Вт} \cdot \text{м}^{-3}$. В процессе распространения шлейфа происходит его расширение из-за вертикальной и горизонтальной диффузии и под действием ветра. В результате активному радиационному облучению будут подвергаться большие объемы атмосферного воздуха, занимае-

мые шлейфом и непосредственно прилегающие к нему. В результате с пересчетом на излучающий объем 10 км^3 на высоте 200–500 м для полной мощности ожидаемого излучения получаем оценку 10^{-8} Вт. Ширина полосы спектра сигнала с учетом доплеровского уширения не должна превышать 150 кГц. Излучение является спонтанным и потому будет некогерентным и неполяризованным. На расстояниях от шлейфа до 30 км такой источник создаст плотность потока излучения порядка $10^{-18} \text{ Вт}/\text{м}^2$ и вполне различим радиоастрономическими методами. Для выделения такого источника приемной системой с эффективной площадью антенны 1 м^2 достаточно иметь чувствительность не менее 0,4 К (в терминах радиационной температуры).

Анализ фонового радиоизлучения атмосферы в интересующем нас диапазоне показал, что суммарная мощность шумового фона на уровне Земли сильно зависит от времени суток, однако не превышает $10^{-21} \text{ Вт}/\text{м}^2$ [27]. Ослабление атмосферой излучения с частотой от 1,2 до 1,4 ГГц за счет его поглощения не превышает 2 дБ, а наличие фонового аэрозоля, в том числе дождя, практически не влияет на поглощение сигнала и в обычных условиях может не учитываться [28]. Кроме того, уровень шумов можно существенно снизить, если проводить измерения в темное время суток, когда шумы, обусловленные излучением атмосферного водорода, а также шумы Солнца минимальны вследствие высокой скорости рекомбинации атомов H.

Итак, подтверждается возможность излучения атомарного водорода на длине волны 21 см, связанного со сверхтонким расщеплением основного уровня, для детектирования радиоактивности в шлейфе выбросов ядерно-перерабатывающих предприятий, так как концентрация атомарного водорода в области шлейфа выброса предприятия, работающего в нормальном режиме (т.е. при постоянной мощности поглощенной дозы излучения), выходит на стационарный уровень ($\sim 10^8 \text{ см}^{-3}$ для $d \approx 0,43 \text{ рад}/\text{с}$) [12]. Что касается радикала OH, то его концентрация, а вместе с ней и плотность потока радиофотонов с длиной волны $\lambda = 18 \text{ см}$, строго зависят от мощности поглощенной дозы. В то же время концентрация OH в необлученной атмосфере не превышает 10^6 см^{-3} . Таким образом, все требования, предъявляемые к нейтральным индикаторам радиоактивности в атмосфере, выполняются.

Поскольку H и радикал OH можно рассматривать как легкую примесь в воздухе, то он не осаждается, а выходит из облучаемой области только посредством диффузии. Следовательно, в шлейфе выброса и в области, непосредственно прилегающей к нему, будет находиться значительное количество радикалов OH, концентрация которых определяется активностью шлейфа. Поскольку OH и атомарный водород излучают в одном диапазоне длин волн, то аппаратура, используемая для детектирования излучения атомарного водорода, может быть применена и для регистрации излучения 18 см без дополнительных переделок.

Оценка концентрации и динамики радионуклидов в зоне радиоактивных залежей и в шлейфах выбросов АЭС и ядерно-перерабатывающих предприятий проводилась нами на основе модели гауссовой диффузии от непрерывного источника [29], а для экспериментального обоснования возможности регистрации микроволнового излучения из области радиационного шлейфа был создан радиометр, имеющий следующие технические характеристики [13]:

- чувствительность $T = 0,05\text{--}0,005$ К при времени усреднения, равном 1 с;

– коэффициент усиления малошумящего усилителя, 60 дБ;

– шумовая температура, 70 К;

– выходной температурный дрейф – меньше, чем 0,4 мВ/°С в диапазоне температур от 18 до 40 °С.

Параболическая антенна располагалась на высоте 20 м над поверхностью земли и на расстоянии 25–30 км от наблюдаемого источника радиоактивных загрязнений. Запись и обработка принимаемых сигналов осуществлялись на ЭВМ IBM, подключенной к выходу анализатора спектра.

Для абсолютной привязки уровней принимаемых сигналов использовалась калибровка по «холодному» участку неба. Каждый сеанс измерений включал в себя регистрацию сигнала при визировании антенны по азимуту в плоскости горизонта вблизи максимума излучения и калибровочные измерения при визировании на «холодный» участок с отворотом антенны на 90° по азимуту и на 60° по углу места. За нулевой азимутальный угол было принято направление на этот «холодный» участок. В экспериментах наблюдалось устойчивое наличие излучения атомарного водорода в шлейфе как по частоте, так и по азимуту.

Пример натуральных измерений радиоизлучения с частотой 1420 МГц от шлейфа ядерно-перерабатывающего предприятия на расстоянии до 25 км и его распределение по азимуту приведены на рис. 2.

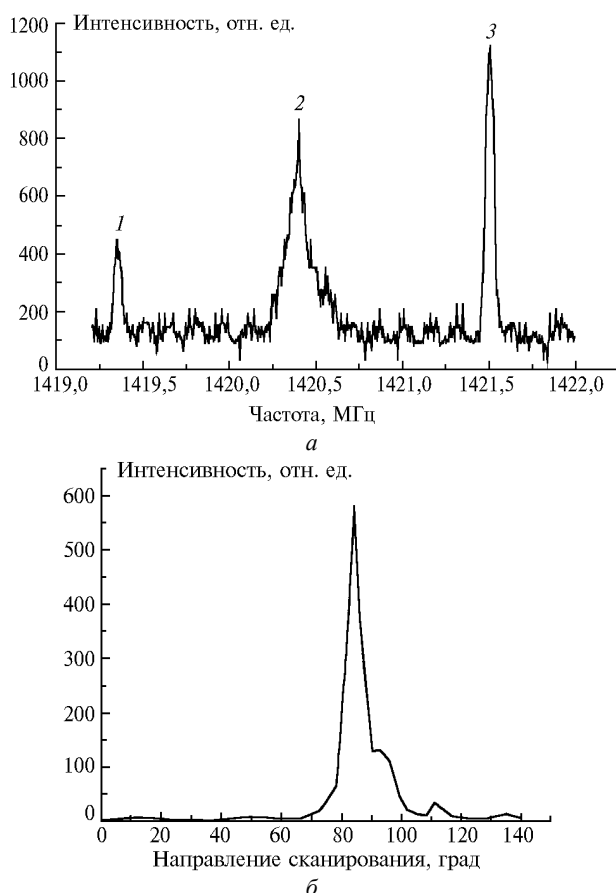


Рис. 2. Пример спектра, зарегистрированного в направлении, соответствующем максимуму излучения и совпадающем с направлением на радиохимический завод [13]: 1, 3 – частотные метки на частотах 1419,348 и 1421,505 МГц; 2 – сигнал от шлейфа (а); распределение интенсивности излучения в горизонтальном направлении от 0 (направление заведомо в стороне от шлейфа) до 180° (направление от шлейфа 83°) (б)

Приведенные результаты показывают, что рассматриваемый метод может быть использован для экологического контроля загрязнений атмосферы радиоактивными выбросами промышленных предприятий ядерного цикла. Высокая чувствительность метода позволяет регистрировать загрязнение на больших расстояниях от объекта, вследствие чего приемная аппаратура может быть установлена на борту автомобиля, самолета или спутника Земли.

3. Дистанционное обнаружение урановых загрязнений атмосферы методами активного лазерного зондирования (LIBS-метод)

Метод, основанный на прямом анализе эмиссионных спектров лазерно-индуцированной плазмы и известный как LIBS (Laser Induced Breakdown Spectrometry), исследовался нами с целью его применения для химического дистанционного анализа радиоактивных и токсичных элементов в шлейфах выбросов предприятий ядерного цикла. Одним из важных достоинств данного метода является тот факт, что при использовании эмиссионных спектров лазерной плазмы в качестве индикаторов анализ является поэлементным и не зависит от структуры, в которую этот элемент включен, так как выделяются спектральные линии ионов элемента, т.е. не важно, в аэрозолях или молекулярных соединениях газового выброса находится искомое вещество. Кроме того, отпадает необходимость специальной подготовки образцов и появляется возможность для дистанционного анализа, так как лазерные источники, существующие в настоящее время, позволяют создавать пробой в воздухе на расстояниях, достаточно удаленных от источника, до 500 м и более.

Анализ данных по составу газоаэрозольных выбросов радиохимических заводов [24] позволил выделить линии эмиссионных спектров радиоактивных элементов, которые могут быть использованы для регистрации, идентификации и количественного химического анализа. Данные приведены в таблице.

Анализ технологического процесса обогащения и переработки облученного топлива [30, 31] показал, что одним из возможных компонентов в выбросе является шестифтористый уран (гексафторид) UF_6 , который гидролизуеться атмосферной влагой вследствие своей химической активности. Одним из компонентов, образованных в результате гидролиза, является аэрозоль твердофазного уранилфторида UO_2F_2 . Поскольку UO_2F_2 хорошо притягивает молекулы воды, его частицы в шлейфе выброса могут находиться либо в виде гидратированного твердофазного аэрозоля, либо в виде двухслойных частиц, образующихся во влажной атмосфере при росте капель на частицах уранилфторида как на центрах конденсации. В этом случае возможно частичное растворение твердого ядра.

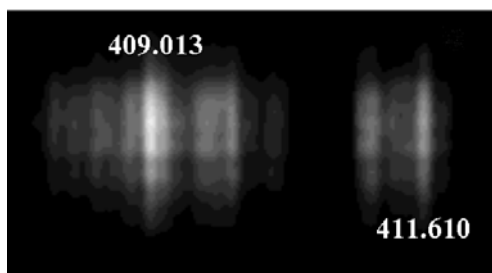
Эти данные послужили исходной предпосылкой выбора элемента U в экспериментальных исследованиях и оценки чувствительности рассматриваемого подхода для возможности его идентификации по эмиссионному свечению аэрозольных частиц, содержащих соединения UO_2F_2 , под действием импульсного излучения CO_2 -лазера.

Регистрация излучения урана осуществлялась по спектральной линии иона урана с длиной волны $\lambda = 409,013$ нм. Данная линия была выбрана на основе анализа спектров урана и спектров обычного атмосферного аэрозоля, содержащего элементы Ca, Si, Al, которые могут затруднить идентификацию линий урана в натуральных условиях.

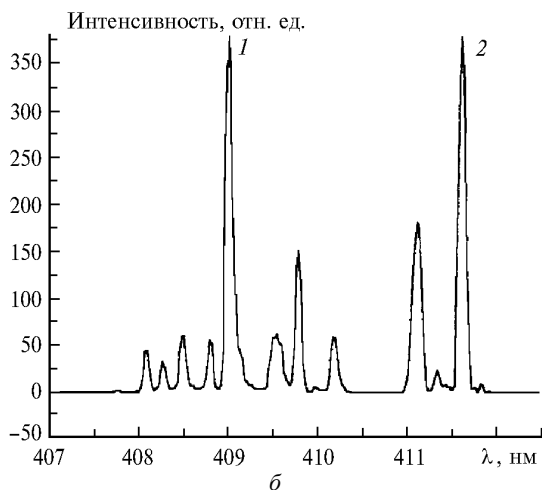
Перспективные линии радиоактивных элементов

U		Th		Sr		Pu	
Линии Å	U_e , эВ	Линии Å	U_e , эВ	Линии Å	U_e , эВ	Линии Å	U_e , эВ
П 2865,68	4,32	П 2832,32	4,89	П 3380,71	6,61	2939,12	–
П 3670,07	3,49	П 2837,30	5,14	П 3464,46	6,62	2954,54	–
П 3854,66	3,79	П 3402,70	4,12	П 4077,71	3,04	1 3851,12	3,22
П 3859,58	3,24	П 3609,44	3,94	П 4215,52	2,94	1 3895,87	3,12
П 3890,36	3,22	П 4019,14	3,08	1 4607,331	2,69	П 4472,70	3,02
П 4090,13	3,24	П 4116,71	3,76	–	–	П 4504,92	3,00
П 4116,10	3,01	П 4381,66	3,66	–	–	–	–
Nb		V		W		Mo	
Линии Å	U_e , эВ	Линии Å	U_e , эВ	Линии Å	U_e , эВ	Линии Å	U_e , эВ
П 2927,81	4,75	П 2924,03	4,63	1 2944,39	4,57	П 2638,76	6,23
П 2941,54	4,65	П 2924,64	4,61	1 2946,98	4,57	П 2816,15	6,06
П 3094,18	4,52	П 3102,30	4,36	1 4008,75	3,45	П 2848,23	5,95
П 3130,79	4,40	П 3110,71	4,33	1 4074,36	3,40	П 2871,51	5,86
П 3163,40	4,30	1 3183,41	3,91	1 4294,61	3,25	1 3170,35	3,91
1 3349,07	3,97	1 3183,98	3,90	–	–	1 3798,25	3,26
1 3358,42	4,04	1 3185,40	3,96	–	–	1 3902,96	3,17
1 3580,28	3,59	1 4379,24	3,13	–	–	–	–
1 4058,93	3,18	–	–	–	–	–	–
1 4163,47	3,24	–	–	–	–	–	–
1 4163,66	2,99	–	–	–	–	–	–
1 4164,66	3,02	–	–	–	–	–	–

Здесь U_e – энергия возбуждения.



а



б

Рис. 3. Изображение, видимое на экране монитора, при записи с телекамеры эмиссионного спектра плазмы, инициированной на частицах уранилфторида при времени задержки равном 4,2 мкс. Для наиболее ярких линий урана указана длина волны, нм (а); спектр, полученный в результате обработки записанного изображения: 1, 2 – спектральные линии ионов урана с $\lambda = 409,013$ и $411,610$ нм соответственно (б)

На рис. 3, а представлено изображение эмиссионного спектра плазмы пробоя, инициированной на частице UO_2F_2 .

Хорошо видны линии спектра урана. Наиболее яркие в этом спектральном диапазоне линии с $\lambda = 409,013$ и $411,610$ нм.

Спектр, полученный в результате обработки изображения, представлен на рис. 3, б. Обращает на себя внимание практически полное отсутствие фона, что позволяет выделить даже сравнительно слабые линии спектра урана.

Такой эффект возможен благодаря тому, что потенциал ионизации урана составляет всего 6,2 эВ, а длительность лазерного импульса достаточно велика и равна $\sim 1,5$ мкс.

Дистанционный анализ может быть реализован на расстоянии до 1 км от загрязнений радиационного источника. При этом ослабление сигнала атмосферой будет незначительным, поскольку коэффициент ослабления излучения аэрозольной атмосферой на длине волны 0,4 мкм составляет $0,1 \text{ км}^{-1}$. Чувствительность данного метода является высокой по сравнению с другими методами химического анализа веществ и достигает 1 ppm.

Таким образом, полученные результаты позволяют надеяться, что данный метод достаточно перспективен для количественного анализа содержания урана в радиоактивных выбросах.

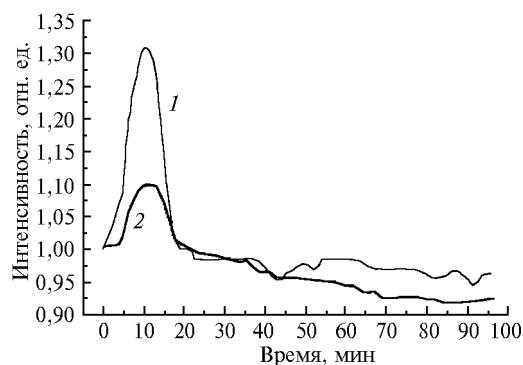
4. Метод дистанционного оперативного контроля содержания продуктов гидролиза UF_6 в атмосфере производственных помещений

Возможности оптических методов для оперативного контроля содержания гексафторида урана и продуктов его гидролиза в воздухе производственных помещений исследовались нами экспериментально при проведении реакции гидролиза в контролируемых условиях, имитирующих атмосферные. Коэффициенты рассеяния и поглощения были использованы для изучения процесса образования и кинетики аэрозолей при взаимодействии UF_6 с водяным паром.

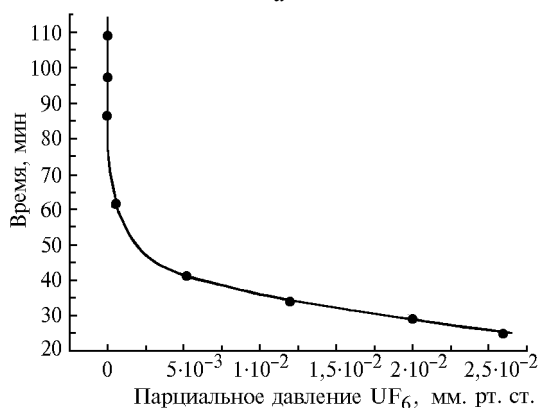
Известно, что, измеряя интенсивность рассеяния в разных направлениях, можно оценить размеры, форму частиц и скорость их роста. Следует отметить, что несферичность час-

тиц вызовет существенные флуктуации рассеянного излучения, которые могут быть выделены на фоне «постоянной» составляющей. При использовании поляризованного зондирующего излучения проводятся оценки степени его деполаризации и, следовательно, степени несферичности частиц продуктов гидролиза. Концентрация молекулярной составляющей продуктов гидролиза может быть определена спектрофотометрическими и фотоакустическими измерениями коэффициентов поглощения с временным разрешением $\sim 10^{-3}$ с. Таким образом, оптические методы зондирования объема, в котором происходит гидролиз, позволяют получить информацию о характеристиках продуктов гидролиза и начальных временах протекания процессов, что невозможно стандартными химическими методами.

В экспериментах [14–18] гидролиз UF_6 осуществлялся для различных соотношений начальных компонентов. Отношения UF_6 : H_2O соответствовали недостатку влажности для полного гидролиза (1:1), стехиометрии (1:2) и избытку влажности (1:3, 1:4, 1:6, 1:8, 1:12). Начальные концентрации UF_6 варьировались от 10^{-6} до 6 мм рт. ст. Значения интенсивности рассеянного аэрозолем излучения $C_\lambda = 0,6328$ мкм нормализовались на значения фоновой интенсивности на фотоприемнике до начала реализации.



а



б

Рис. 4. Динамика гидролиза (а) UF_6 с парциальным давлением UF_6 , равным 1,5 мм рт. ст., и H_2O , равным 18 мм рт. ст. Кривая 1 соответствует обратному рассеянию, кривая 2 – рассеянию «вперед»; зависимость времени завершения активного гидролиза (б) в объеме от начального давления UF_6

На рис. 4, а представлены результаты измерений при концентрации UF_6 , равной 1,5 мм рт. ст., и концентрации водяного пара, равной 18 мм рт. ст., что соответствует концентрации водяного пара в реальной атмосфере при нормальных

условиях. Видно, что при десятикратном превышении концентрации H_2O происходит интенсивный (активный) гидролиз гексафторида урана [14] в объеме с образованием аэрозолей, который завершается в течение первых 20 мин. При меньших концентрациях H_2O процесс интенсивного гидролиза протекает более медленно и аэрозолеобразование не имеет явно выраженных временных интервалов. Следует при этом подчеркнуть, что завершение интенсивного гидролиза не означает полного окончания реакции, так как уровни сигналов и «прямого» и «обратного» рассеяния не выходят на нулевой уровень, что свидетельствует о наличии в объеме «проникающей фракции» UF_6 , которая продолжает реагировать с H_2O и продуктами гидролиза.

В приведенных экспериментах показано, что время формирования аэрозоля главным образом определено временем процесса гидролиза, а время существования аэрозолей определяется диффузионными, конвективными процессами и процессами коагуляции. При небольших концентрациях исходных веществ влияние коагуляции на процесс образования аэрозолей незначительно вследствие малой вероятности столкновений частиц.

В экспериментах не наблюдалось деполаризации линейно поляризованного лазерного излучения. Возможными причинами могут быть: маленькая концентрация частиц из UO_2F_2 по сравнению с концентрацией частиц из HF и H_2O ; небольшой размер кристаллов, кристаллогидратная вода и т. д. Спектральный анализ колебаний рассеянной радиации не показывал также явных максимумов, которые могли бы возникнуть при несферических частицах UO_2F_2 .

В экспериментах были достигнуты предельно малые концентрации UF_6 : до $1,2 \cdot 10^{-6}$ мм рт. ст. при концентрации паров H_2O , равной 6 и 12 мм рт. ст. (рис. 4, б). При таких условиях соотношение 1:10 заведомо выполняется, что обычно реализуется в атмосферных условиях из-за малых концентраций UF_6 в выбросах (за исключением аварийных ситуаций). При этом даже при таких маленьких концентрациях гексафторида урана, близких к уровню ПДК, гидролиз в объеме происходит с образованием аэрозольной фракции и оптические методы устойчиво регистрируют ее с хорошей воспроизводимостью от эксперимента к эксперименту.

При уменьшении концентрации UF_6 до уровня ПДК время окончания активного гидролиза увеличивается практически экспоненциально (см. рис. 4, б) [18]. Подобный характер зависимости объясняется уменьшением количества негидролизованного UF_6 и, как следствие, уменьшением вероятности столкновения молекул UF_6 с необходимым для гидролиза количеством молекул H_2O .

Проведенные эксперименты показали, что оптические методы позволяют достаточно уверенно регистрировать малые концентрации радиоактивных и токсичных примесей при гидролизе гексафторида урана на уровне, превышающем ПДК, а разработанные на их принципах приборы способны обеспечить надежный контроль предаварийных ситуаций, к тому же они должны быть сравнительно недороги по стоимости и удобны в эксплуатации.

Таким образом, результаты экспериментальных и теоретических исследований показывают, что физические основы косвенных дистанционных методов обнаружения радиоактивных загрязнений в атмосфере с использованием специфических индикаторов, проявляющихся в результате взаимодействия радиации с компонентами атмосферы, открывают перспективы для их применения.

С развитием техники мощных лазеров появляется возможность использования специфического и весьма об-

ширного класса нелинейных и когерентных взаимодействий света со средой в качестве новых методов лазерного зондирования параметров атмосферы, в первую очередь тех из них, которые могут быть эффективно измерены традиционно. При этом дистанционные оптические (включая лазерные) и микроволновые методы определения радиоволнового загрязнения атмосферы являются более чувствительными, относительно недорогими. В принципе они позволяют дистанционно изучать радиационные загрязнения на различных высотах и территориях различного масштаба.

Хотя ряд методов и технологий, в частности по радиационному мониторингу радиации, при аварийных ситуациях уже апробированы на практике в качестве ее индикаторов, другие из обсуждаемых дистанционных методов представляют пока академический интерес и их использование возможно в будущем по мере возрастания масштабов работ в области экологического мониторинга.

1. *Fett W.* Der Atmospherische Staub. (Monographien der Experimentellen und Theoretischen Physik Herausgegeben von Franz X. Eclcr). Berlin: VEB Deutscher Verlag Der Wissenschaften. 1958. 336 p.
2. *Боярчук К.А., Кононов Е.И., Ляхов Г.А.* Радиолокационное обнаружение областей локальной ионизации в приземных слоях атмосферы // Письма в ЖТФ. 1993. Т. 19. Вып. 6. С. 67–73.
3. *Boyarchuk K.A., Lyakhov G.A., Svirko Vn.P., Suyazov N.V., Didenko A.N., Yushkov Yu.G.* Radar remote sensing of radioactive pollution of surface atmospheric layers, - BRAS Physics / Supplement Physics of Vibrations. V. 5. № 4. 1W6. P. 222–236.
4. *Диденко А.Н., Усов Ю.П., Юшков Ю.Г., Григорьев В.П., Потапов А.Г., Лукьянов О.В., Бабулин Н.Н., Бацула А.П., Шошин Е.Л., Мельников А.И., Бойко В.И.* Использование импульсных радиолокаторов СВЧ-диапазона для контроля радиоактивных выбросов в атмосферу // Атом. энергия. 1996. Т. 80. № 1. С. 47–54.
5. *Ласкорин Б.Л.* Охрана окружающей среды на предприятиях ядерной промышленности. М.: Энергоиздат, 1982. 201 с.
6. *Единая государственная автоматизированная система контроля радиационной обстановки (ЕГАСКРО).* Аванпроект. Т. 2. Кн. 2. М.: ЦНИИ «Комета», 1990. 292 с.
7. *Потапов А.И., Черкасов В.Н.* Лазерные методы дистанционного контроля атмосферы. СПб.: СЗПИ, 1992. 127 с.
8. *Копытин Ю.Д.* Лазерная эмиссионная и автодинная спектроскопия атмосферы и подстилающей поверхности // Оптика атмосфер. и океана. 1997. Т. 10. № 8. С. 911–925.
9. *Швидковский Е.Г., Костко О.К., Чайнов Э.А.* // Косм. исслед. 1970. Вып. 8. № 2. С. 310–318.
10. *Боярчук К.А., Ляхов Г.А., Сvirko Ю.П.* Радиомодуляция вынужденного Мандельштам-Бриллюэновского рассеяния света в ионизированных газах // Ж. техн. физ. 1992. Т. 62. Вып. 11. С. 96–104.
11. *Boyarchuk K.A., Lyakhov G.A., Svirko Vn.P., Suyazov N.V.* Microwave driven anti-Stokes Brillouin scattering in an ionized medium. The method of remote sensing of atmospheric aerosols // J. Phys. D: Appl. Phys. 1993. V. 26. P. 1561–1565.
12. *Пенин С.Т., Чистякова Л.К.* Формирование и динамика излучения атомарного водорода в шлейфе выбросов ядерно-перерабатывающих предприятий // Оптика атмосфер. и океана. 1997. Т. 10. № 1. С. 73–81.
13. *Chistyakova L.K., Chistyakov V.Yu., Losev D.V., Penin S.T., Tarabrin Yu.K., Yakubov V.P., Yurjev I.A.* Microwave radiation of

atomic hydrogen in plumes of radioactive emissions from nuclear-reprocessing plants // J. Microwave and Optical Technology Letters. 1997. V. 16. N 4. P. 255–260.

14. *Копытин Ю.Д., Носов В.В., Чистякова Л.К.* Технологии инспектирования промышленных и микроклиматических аномалий приземной атмосферы // Оптика атмосфер. и океана. 1997. Т. 10. № 10. С. 1188–1203.
15. *Zherin I.I., Penin S.T., Chistyakova L.K., Kokhanov V.I.* Experimental study of the aerosol formation by hydrolysis of UF₆ in gaseous phase under atmospheric conditions // J. Aerosol Sci. 1996. V. 27. Suppl. 1. P. S405–S406.
16. *Zherin I.I., Penin S.T., Ponomarev Yu.N., Chistyakova L.K., Sitenkov A.N.* Formation of aerosols containing uranium in emissions of plants for nuclear fuel reprocessing // J. Aerosol Sci. 1996. V. 27. Suppl. 1. P. S123–S124.
17. *Амелина Г.Н., Жерин И.И., Пенин С.Т., Пенина З.С., Сачков В.И., Чистякова Л.К.* Динамика формирования аэрозолей при гидролизе малых концентраций гексафторида урана // Оптика атмосфер. и океана. 1999. Т. 12. № 12. С. 1111–1115.
18. *Амелина Г.Н., Жерин И.И., Пенин С.Т., Пенина З.С., Сачков В.И., Чистякова Л.К.* Исследования динамики гидролиза малых концентраций гексафторида урана в газовой фазе по рассеянию лазерного излучения // Изв. вузов. Физика. 2000. № 5. Приложение. С. 86–90.
19. *Бессараб С.С., Пенин С.Т., Чикуров В.А., Чистякова Л.К.* Детектирование урана в аэрозольных частицах по эмиссионным спектрам лазерной плазмы // Оптика атмосфер. и океана. 1996. Т. 9. № 1. С. 73–78.
20. *Боярчук К.А.* Кинетика элементарных ионов в нижней атмосфере, подверженной воздействию ионизирующего излучения // Изв. РАН Физ. атмосфер. и океана. 1997. Т. 11. № 2. С. 236–240.
21. *Пшежецкий С.Я., Дмитриев М.Т.* Радиационные физико-химические процессы в воздушной среде. М.: Атомиздат, 1978. 182 с.
22. *Пуланец С.А., Боярчук К.А., Хегай В.В., Ломоносов А.М.* Атмосферное электрическое поле как источник изменчивости ионосферы // Успехи физ. наук. 1998. Т. 168. № 5. С. 582–589.
23. *Park C.G. and Dejnakarindra M.* Penetration of Thundercloud Electric Fields into the Ionosphere and Magnetosphere 1. Middle and Subauroral Latitudes // J. Geophys. Res. 1973. V. 78. N 28. P. 6623–6633.
24. *Протасевич Е.Т.* Метод обнаружения радиоактивных загрязнений среды по свечению воздуха. // Оптика атмосфер. и океана. Т. 7. № 5. 1994. С. 697–700.
25. *Boyarchuk K.A. and Karelin A.V.* Small gaseous components of the atmosphere as markers of radioactive contamination BRAS Physics // Sappl. Physics of Vibrations. 1977. V. 61. N 4. P. 249–259.
26. *Батаев Н.С., Демин В.Е.* Ядерная промышленность. Люди и окружающая среда. М.: Энергоиздат, 1984. 191 с.
27. *Шкловский И.С.* Космическая радиация. М.: Гостехиздат, 1956. 341 с.
28. *Спутниковая связь и радиовещание.* М.: Радио и связь, 1988. 344 с.
29. *Атмосфера: Справочник /* Под ред. Ю.С. Седунова. М.: Гидрометеоздат, 1991. 510 с.
30. *Химия и технология фтористых соединений урана /* Н.П. Галкин, А.А. Майоров, У.Д. Верятин, Б.Н. Судариков, Н.С. Николаев, Ю.Д. Шишков, А.В. Крутиков М.: Госатомиздат, 1962. 564 с.
31. *Технология урана /* Н.П. Галкин, Б.Н. Судариков, У.Д. Верятин, А.А. Майоров. М.: Атомиздат, 1964. 487 с.

L.K. Chistyakova. Remote methods for detection of radioactive anomalies in the near-ground atmosphere.

The analysis of active remote methods for detecting radioactive anomalies in the atmosphere, including those, which use the effects manifesting themselves in interactions of laser radiation with the products of radiolytic decomposition and in photochemical reactions between atmospheric components, is presented in the paper. A brief analysis of the results, obtained with the author's participation, is given in the sphere of passive remote technologies of studying the radioactive pollution caused by industrial emissions into the atmosphere together with the method of laser-induced break-down of aerosols.

The technologies under consideration are shown to be promising in the ecological monitoring of atmospheric pollution. Their high sensitivity allows a detection of pollutants at large distances. The simultaneous use of passive and active methods will give more information on the radioactive anomaly under examination.