

Г.А. Колотков, С.Т. Пенин, Л.К. Чистякова

## Возможность определения активности выбросов АЭС по микроволновому излучению на частоте 1420 МГц

*Институт оптики атмосферы СО РАН, г. Томск*

Поступила в редакцию 13.03.2006 г.

Рассмотрен пассивный метод определения уровня радиоактивности в выбросах атомных электростанций по вторичному излучению из шлейфа выброса. Проведен анализ выбросов АЭС с наиболее распространенными типами реакторов, и определены основные бета-радионуклиды, входящие в состав выбросов. С учетом процесса размножения электронов в атмосфере получен суммарный энергетический спектр электронов. Рассмотрены основные физико-химические реакции, приводящие к образованию атомарного водорода в области шлейфа выброса. Рассчитано пространственное распределение концентрации атомарного водорода в области шлейфа, и оценена мощность излучения на частоте 1420 МГц из объема. Показано, что при оценке воздействия радиации на атмосферу необходимо учитывать многие поколения электронов, так как они имеют средние значения энергий, значительно превышающие потенциалы ионизации для атомов и молекул компонентов воздуха. Установлено, что мощность, излучаемая объемом 1 км<sup>3</sup> на частоте 1420 МГц в выбросах АЭС, может достигать  $\sim 10^{-13}$  Вт. Проведено сравнение с результатами натуральных экспериментов по регистрации излучения на частоте 1420 МГц из шлейфа выброса радиохимического завода, откуда следует, что данный метод позволяет уверенно детектировать общий уровень активности выбросов АЭС.

### Введение

Одной из наиболее важных экологических проблем в последние годы является проблема радиоактивных загрязнений нижних слоев атмосферы выбросами предприятий ядерного цикла. Как правило, данные предприятия выбрасывают в окружающую среду наборы радиоактивных элементов и основное значение имеет общая активность выбросов. Существующие методы ее определения можно разделить на прямые, основанные на регистрации интенсивностей  $\alpha$ -,  $\beta$ -,  $\gamma$ -излучений, и косвенные, использующие эффекты, проявляющиеся в атмосфере при воздействии на нее радиации. К таким эффектам можно отнести появление областей с повышенными ионизацией и концентрацией газов, образующихся в атмосфере вследствие фотохимических реакций. Эти газы могут являться маркерами активности и могут быть зарегистрированы либо непосредственно, либо по их характерному излучению.

Попытки использовать методы радиолокации для дистанционного обнаружения областей повышенной ионизации не привели к успеху, поскольку при низких уровнях загрязнений, когда концентрация ионов близка к фоновой и составляет  $10^4$ – $10^7$  ион/см<sup>3</sup>, чувствительность стандартных радиолокаторов недостаточна. Следует также отметить, что радиолокационные сигналы создают высокий электромагнитный фон, представляющий экологическую опасность для территории.

В работах [1, 2] рассмотрен метод дистанционного определения радиоактивности выбросов ра-

диохимических заводов (РХЗ) по излучению атомарного водорода на длине волны  $\lambda = 21$  см, образующегося в области шлейфа выброса. Описываемое излучение является индикатором активности выброса и может быть дистанционно зарегистрировано в режиме реального времени. Выбросы АЭС существенно отличаются от выбросов РХЗ как по изотопному составу, так и по удельной активности (на порядок величины).

Целью данной работы явилось рассмотрение потенциала пассивного метода диагностики активности шлейфа выбросов АЭС, основанного на селекции линии излучения атомарного водорода в микроволновом диапазоне. В процессе работы решались следующие задачи: сравнительный анализ выбросов АЭС с различными типами реакторов и выбор радионуклидов, вносящих основной вклад в активность выбросов; расчет энергетического спектра электронов, образующихся в атмосфере под воздействием радиации; моделирование процессов образования атомарного водорода в области шлейфа выброса и оценка интенсивности его излучения.

### 1. Состав выбросов ядерно-энергетических предприятий

Наиболее активными источниками радиоактивного аэрозольного загрязнения окружающей среды из предприятий ядерно-топливного цикла (ЯТЦ) являются АЭС и РХЗ. Остальные предприятия ЯТЦ выбрасывают в воздух значительно меньше радиоактивности [3, 4]. Радионуклидный состав

выбросов зависит от типа реактора и других его особенностей. Так, выбросы АЭС и РХЗ отличаются по составу изотопов, а также по наличию жидких и твердых компонентов в выбросах РХЗ. Установленные значения выбросов для ядерных реакторов приведены в табл. 1 [4].

Таблица 1

**Оценка ежегодных выбросов в атмосферу двух реакторов электрической мощностью 1000 МВт**

Радионуклид	Выбросы реактора BWR (реактор с кипящей водой), Бк/год	Выбросы реактора PWR (реактор с водой под давлением), Бк/год
<sup>41</sup> Аг	$9,25 \cdot 10^{11}$	$9,25 \cdot 10^{11}$
<sup>83m</sup> Кг	$< 3,7 \cdot 10^{10}$	$3,7 \cdot 10^{10}$
<sup>85m</sup> Кг	$5,55 \cdot 10^{12}$	$5,2 \cdot 10^{11}$
<sup>85</sup> Кг	$1,073 \cdot 10^{13}$	$1,739 \cdot 10^{13}$
<sup>87</sup> Кг	$7,4 \cdot 10^{12}$	$1,11 \cdot 10^{11}$
<sup>88</sup> Кг	$8,88 \cdot 10^{12}$	$8,51 \cdot 10^{11}$
<sup>131m</sup> Хе	$6,66 \cdot 10^{11}$	$3,034 \cdot 10^{12}$
<sup>133m</sup> Хе	$< 3,7 \cdot 10^{10}$	$4,44 \cdot 10^{12}$
<sup>133</sup> Хе	$1,184 \cdot 10^{14}$	$4,44 \cdot 10^{14}$
<sup>135m</sup> Хе	$2,738 \cdot 10^{13}$	$< 3,7 \cdot 10^{10}$
<sup>135</sup> Хе	$4,07 \cdot 10^{13}$	$3,182 \cdot 10^{12}$
<sup>138</sup> Хе	$5,18 \cdot 10^{13}$	$< 3,7 \cdot 10^{10}$
<sup>131</sup> И	$1,11 \cdot 10^{10}$	$9,25 \cdot 10^8$
<sup>133</sup> И	$9,07 \cdot 10^{10}$	$8,51 \cdot 10^8$
<sup>14</sup> С	$3,515 \cdot 10^{11}$	$2,96 \cdot 10^{11}$
<sup>3</sup> Н	$1,591 \cdot 10^{12}$	$4,07 \cdot 10^{13}$

Как видно из табл. 1, основная доля радиоактивности приходится на радиоактивные благородные газы (РБГ) Аг, Кг, Хе. Эти газы и радиоактивный йод, выбросы которого составляют малую долю от общего количества выбросов, являются главными источниками радиоактивного воздействия на компоненты атмосферы. При штатной работе АЭС является стационарным источником газоаэрозольных выбросов, которые будут постоянно находиться в приземном слое. Таким образом, наиболее значимую роль в формировании радиационной обстановки в районе размещения АЭС играют радиоактивные газы и изотопы йода, поэтому расчет проводился именно для такого набора  $\beta$ -активных радионуклидов.

## 2. Общее энергетическое распределение электронов в шлейфе выброса

В результате бета-распада радионуклидов образуются быстрые (высокоэнергичные) электроны, которые в процессе распространения ионизируют среду и вызывают диссоциацию молекул. В данной статье процесс деградации энергии быстрых электронов в воздухе рассматривается в рамках следующей модели: основным механизмом рождения электронов является ионизация; электрон-электронными и электрон-ионными столкновениями пренебрегаем; диссипативные процессы не учитываем; атомы до столкновения покоятся.

Последовательность определения общего энергетического спектра электронов такова:

1) определение спектра генерируемых электронов в воздухе (спектр электронов бета-распада для каждого радионуклида известен [5]);

2) определение энергетического спектра термализующихся в воздухе первичных электронов;

3) определение спектра вторичных электронов; далее процедура по пп. 2, 3 повторяется для следующих поколений электронов;

4) определение общего (суммарного) энергетического спектра электронов.

Расчет энергетического распределения электронов в однородной среде с равномерно распределенными источниками проводился с использованием исходного уравнения, описывающего деградацию энергии [6]:

$$\Sigma(E)\Phi(E) - \int_E^{E_0} \Sigma_s(E' \rightarrow E)\Phi(E')dE' = S(E), \quad (1)$$

где  $\Sigma$ ,  $\Sigma_s$  — интегральное и дифференциальное макроскопические сечения передачи энергии [4], получаемые умножением соответствующих микроскопических сечений на концентрацию атомов в однородной среде:

$$\Sigma_s(E' \rightarrow E) = \frac{d\sigma}{d\varepsilon} N,$$

где  $\varepsilon = E' - E$  — энергия, теряемая частицей в одном акте взаимодействия;  $S(E)$  — спектр электронов бета-распада, эл-н/(см<sup>3</sup>·с);  $\Phi(E)$  — плотность потока электронов, имеющих энергию  $E$ , эл-н/(см<sup>2</sup>·с).

Результаты расчетов, представленные в [3], показывают, что первичные и вторичные электроны имеют средние значения энергии, значительно превышающие (примерно в 10<sup>5</sup> раз) потенциалы ионизации для атомов и молекул компонентов воздуха, которые составляют ~ 15 эВ. Увеличение количества электронов разных поколений будет продолжаться до тех пор, пока они будут способны к процессу ионизации. Следовательно, необходимо учитывать вклад различных поколений электронов. Учитывая величину потенциала ионизации воздуха, расчет проводили до девятого поколения электронов.

Ввиду идентичности электронов общее распределение электронов по энергиям можно получить путем суммирования энергетических спектров электронов различных радионуклидов и поколений. На рис. 1,а представлено суммарное распределение количества электронов по энергиям для рассматриваемых изотопов.

Из рис. 1 видно, что количество электронов с относительно малыми энергиями < 100 кэВ составляет существенную долю от общего количества электронов. Для большей наглядности на рис. 1,б показано распределение энергетического спектра электронов с малыми энергиями. Эти электроны вносят ощутимый вклад в величину тормозного излучения — основного механизма воздействия радиации на компоненты воздуха. Под его воздейст-

вием происходят фотохимические реакции, приводящие к образованию атомарного водорода, который спонтанно излучает на длине волны 21 см (1420 МГц).

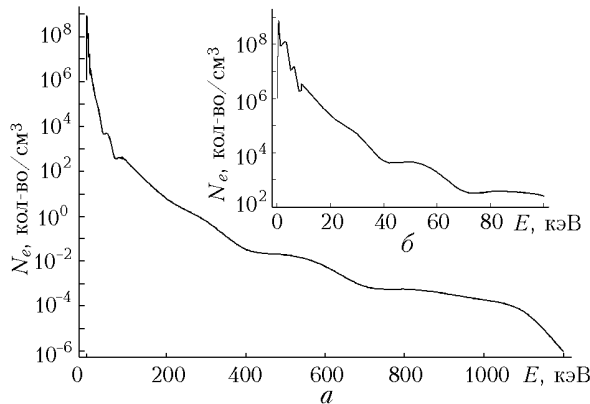


Рис. 1. Суммарный энергетический спектр электронов

Резкий спад, наблюдаемый при малых энергиях, объясняется тем, что в этом случае необходимо учитывать эффекты прилипания электронов, которые не учитываются в рамках принятой модели.

### 3. Фотохимические реакции, приводящие к образованию атомарного водорода

Ниже уровня 10 км концентрация атомарного водорода в атмосфере пренебрежимо мала, поскольку излучение, ответственное за фотолиз атмосферных газов с образованием Н ( $\lambda < 2900 \text{ \AA}$ ), полностью поглощается озоновым слоем, располагающимся на высотах 10–30 км. Согласно [7] образование атомарного водорода в стандартной нижней атмосфере обусловлено фотолизом следующих соединений: метана  $\text{CH}_4$ , аммиака  $\text{NH}_3$ , молекулярного водорода  $\text{H}_2$ , формальдегида  $\text{HCHO}$  и воды  $\text{H}_2\text{O}$ . Для протекания реакций образования атомарного водорода в атмосфере необходимо излучение в диапазоне  $\lambda = 844,7 \div 3500 \text{ \AA}$ . Энергия диссоциации водородсодержащих компонентов воздуха рассчитывается по формуле  $E_d = hc/\lambda$ . Значение этой энергии находится в пределах  $2,352 \cdot 10^{-11} - 5,676 \cdot 10^{-12}$  эрг.

Считаем, что основным воздействием радионуклидов на компоненты воздуха является тормозное излучение  $\beta$ -электронов. Под его воздействием происходит ряд фотохимических реакций, в том числе и образование атомарного водорода. Ниже рассчитываем интенсивность тормозного излучения с учетом общего энергетического спектра электронов.

### 4. Оценка интенсивности излучения шлейфа

Для расчета энергии, излучаемой электроном в данный спектральный интервал, воспользуемся выводами классической электродинамики [8].

В данном случае, исходя из того, что спектр тормозного излучения электронов характеризуется равномерным распределением по энергиям, столкновения электрона с атомами происходят достаточно редко (по сравнению с частотой излучаемой электромагнитной волны) и сам акт рассеяния происходит очень быстро по сравнению с периодом осцилляции поля, то можно записать формулу для количества энергии, излученной электроном при торможении в частотный интервал  $dv$  в 1 с в виде

$$dQ_v = \frac{8e^2v^2}{3c^3} v_{\text{эф}} dv,$$

где  $e$  – заряд электрона;  $c$  – скорость света;  $v$  – скорость электрона;  $v_{\text{эф}} = Nv\sigma_{\text{тр}}$  – эффективная частота столкновений ( $N$  – число атомов в  $1 \text{ см}^3$ ,  $\sigma_{\text{тр}}$  – транспортное сечение передачи энергии).

Считая рассеяние изотропным, время торможения одного электрона  $10^{-6}$  с и учитывая результаты, представленные на рис. 1, после суммирования получим, что в спектральный интервал от 844,7 до  $3500 \text{ \AA}$  будет излучена энергия  $0,131 \text{ эрг/см}^3$ , или  $8,2 \cdot 10^{10} \text{ эВ/см}^3$ .

Исходя из приведенных оценок, можно сделать вывод, что в результате распада перечисленных выше изотопов в области шлейфа выброса будет образовываться порядка  $10^{16}$  атомов водорода в  $1 \text{ м}^3 \cdot \text{с}$ . Равновесная концентрация атомов Н при этом будет определяться процессами рождения и рекомбинации. Зная скорость последней, оценим их стационарную концентрацию из уравнения вида [7]:

$$N_{\text{H}} = \sqrt{\frac{N_{\text{H(источник)}}}{2k}}, \quad (2)$$

где  $N_{\text{H}}$  – стационарная концентрация атомов водорода;  $k$  – коэффициент рекомбинации  $10^{-13} - 10^{-14} \text{ м}^3/\text{с}$ . Уравнение (2) справедливо, когда рекомбинация является основным механизмом исчезновения атомов водорода, что характерно для атмосферных условий. В этом случае стационарная концентрация Н в шлейфе составляет  $\sim 10^{15} \text{ м}^3$ .

Для оценки пространственного распределения радиоактивности в шлейфе выброса АЭС использовалась расчетная модель Пасквилла–Гиффорда. Модель широко используется для расчета концентраций изотопов в атмосфере на расстояниях до 10–12 км по ветру от источника. В соответствии с [9] общая формула расчета среднего значения концентрации частиц в облаке выброса имеет вид

$$q_A(x, y, z) = \frac{Q}{2\pi\sigma_y(x)\sigma_z(x)U_{sr}} \exp\left[-\frac{y^2}{2\sigma_y^2(x)}\right] \times \left[ \exp\left[-\frac{(z-h_{\text{эф}})^2}{2\sigma_z^2(x)}\right] + \exp\left[-\frac{(z+h_{\text{эф}})^2}{2\sigma_z^2(x)}\right] \right] \text{ Бк/см}^3, \quad (3)$$

где  $Q$  – мощность источника выброса, Бк/с;  $x$  – координата, отсчитываемая от источника в направлении среднего ветра, м;  $y$  – координата,

перпендикулярная направлению  $x$ , м;  $z$  — вертикальная координата, м;  $U_{sr}$  — скорость ветра, усредненная по слою перемешивания, м/с;  $h_{eff}$  — эффективная высота выброса, м;  $\sigma_y, \sigma_z$  — дисперсии (стандартные отклонения) в соответствующих направлениях.

Для определения дополнительной высоты подъема струи за счет теплового и динамического факторов в [9] указывается допустимое соотношение

$$\Delta h = A_1 \left( 2,61 \frac{\sqrt{Q_h}}{u_h} + 0,029 \frac{u_s D_0}{u_h} \right),$$

где  $Q_h$  — тепловая мощность источника, кВт;  $u_h$  — скорость ветра на высоте выброса, м/с;  $u_s$  — скорость выхода газов из устья источника, м/с;  $D_0$  — диаметр устья источника, м;  $A_1$  — безразмерный параметр, определяемый классом устойчивости атмосферы (табл. 2).

Таблица 2

Класс устойчивости	A	B	C	D	E	F
$A_1$	2,6	2,1	1,6	1,1	0,9	0,7

Для однородного равнинного рельефа местности достаточны сведения о скорости ветра на двух уровнях: на высоте флюгера  $u_1$  и на высоте возможного подъема струи или выброса  $u_h$ . Вертикальный профиль ветра выражен как  $u_z = u_1(z/z_1)^m$ . Значения параметра  $m$  для высоты слоя 10–500 м при  $z_1 = 10$  м (высота флюгера) в зависимости от класса устойчивости приведены в табл. 3.

Таблица 3

Класс устойчивости	A – B	C	D	E	F
$m$	0,1–0,12	0,13	0,13–0,15	0,16–0,50	0,7–0,8

Расчет проводился для исходных данных, представленных в табл. 4. Поскольку концентрация атомарного водорода прямо пропорциональна активности выброса, т.е. количеству выброшенных радиоизотопов в атмосферу, то формулу (3) можно применить для расчета распределения стационарной концентрации  $N$  в воздухе с учетом формулы (2).

Таблица 4

Исходные данные для расчета

Стратификация атмосферы	Нейтральная
Вентиляционная труба:	
высота	100 м
диаметр	1 м
Средняя скорость ветра в направлении переноса примеси (на высоте 1 м, на высоте флюгера 10 м, на высоте выброса)	5 м/с
Скорость выхода воздуха (газов) из устья трубы	5 м/с
Тип радиоактивной примеси	элементарная примесь (атомарная)

На рис. 2 представлено распределение стационарной концентрации атомарного водорода в шлейфе выброса АЭС на различных высотах.

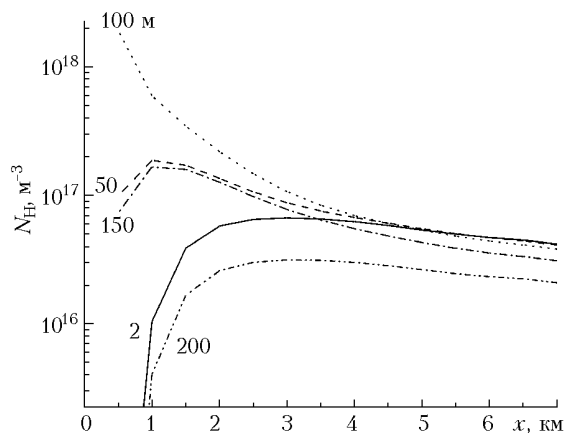


Рис. 2. Распределение стационарной концентрации атомарного водорода в атмосфере при выбросах АЭС с реактором типа BWR

Из рис. 2 видно, что максимальная концентрация атомарного водорода достигается на расстояниях от 0,5 до 3 км при заданных параметрах. На расстояниях, превышающих 3 км, концентрация атомарного водорода на данных высотах становится приблизительно одинаковой и равной  $5 \cdot 10^{14} \text{ м}^{-3}$ . Объем воздуха, содержащего атомарный водород, может достигать  $\sim 10 \text{ км}^3$ .

Определим интенсивность излучения на частоте 1420 МГц из области шлейфа. Интенсивность излучения при единичном переходе определяется вероятностью радиационного перехода  $A_{nk}$  и может быть определена по классической формуле  $S = E_{nk} A_{nk}$ , где  $E_{nk} = h\Delta\nu$  ( $h$  — постоянная Планка,  $\Delta\nu$  — частота перехода). Согласно [10] энергия сверхтонкого расщепления основного уровня атома водорода составит  $\sim 9,412 \cdot 10^{-23}$  Дж для  $\Delta\nu = 1420,4057517$  МГц. Вероятность перехода  $A_{nk}$  равна  $3 \cdot 10^{-15} \text{ с}^{-1}$ . Тогда мощность излучения атома при одном акте радиационного перехода  $S$  равняется  $2,824 \cdot 10^{-37}$  Вт.

Так как концентрация атомов водорода в одном кубическом метре шлейфа составляет  $\sim 10^{15}$  атомов, то мощность, излучаемая объемом  $1 \text{ км}^3$  на частоте 1420 МГц, равна  $1,5 \cdot 10^{-13} - 9,592 \cdot 10^{-14}$  Вт. Излучение на данной частоте было зафиксировано в натуральных экспериментах для случая РХЗ [2] с расстояния  $\sim 25$  км. Предельная чувствительность радиометра, применявшегося в экспериментах, составляла  $10^{-17}$  Вт. Таким образом, полученная в расчетах величина интенсивности излучения для выбросов АЭС и сравнение ее с результатами для РХЗ [1, 2] показывают возможность использования излучения на частоте 1420 МГц для регистрации уровня активности выбросов АЭС с помощью существующих радиометров.

### Заключение

В результате проведенных расчетов показано, что для оценки воздействия радиации на атмосферу необходимо учитывать многие поколения электро-

нов, так как они имеют средние значения энергий, намного превышающие потенциалы ионизации для атомов и молекул компонентов воздуха.

При распространении шлейфа в атмосфере активному облучению подвергаются большие объемы атмосферного воздуха и излучающий объем может достигать  $10 \text{ км}^3$  и более. Область максимальных концентраций атомарного водорода в шлейфе выброса может быть определена моделированием процесса переноса примеси.

Мощность, излучаемая объемом  $1 \text{ км}^3$  в выбросах АЭС на частоте 1420 МГц, может достигать  $\sim 10^{-13}$  Вт. Существующие радиометры позволяют уверенно детектировать общий уровень активности выбросов АЭС с расстояний  $20 \div 25$  км.

1. *Пенин С.Т., Чистякова Л.К.* Формирование и динамика излучений атомарного водорода в атмосфере и шлейфе выбросов ядерно-перерабатывающих предприятий // *Оптика атмосф. и океана.* 1997. Т. 10. № 1. С. 73–81.
2. *Chistyakov V. Yu., Losev D. V., Chistyakova L. K., 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 Opt. Technol. Lett.* 1997. V. 16. P. 225–260.
3. *Kolotkov G. A., Penin S. T., and Chistyakova L. K.* Degradation of fast electrons energy and atomic hydrogen generation in an emission plume from atomic power stations // *Proc. SPIE.* 2005. V. 6160. Chapter 2. P. 84–96.
4. *Колобашкин В.М., Рубцов П.М., Ружанский П.М., Сидоренко В.Д.* Радиационные характеристики облученного ядерного топлива. М.: Энергоатомиздат, 1982. 146 с.
5. *Авакян С.В., Ильин Р.Н., Лавров В.М., Огурцов Г.Н.* Сечения процессов ионизации и возбуждения УФ-излучения при столкновениях электронов, ионов и фотонов с атомами и молекулами атмосферных газов. СПб.: ГОИ, 2000. 365 с.
6. *Кольцужкин А.М., Учайкин В.В.* Введение в теорию прохождения частиц через вещество. М.: Атомиздат, 1978. 255 с.
7. *Окабе Х.* Фотохимия малых молекул. М.: Мир, 1981. 504 с.
8. *Зельдович Я.Б., Райзер Ю.П.* Физика ударных волн и высокотемпературных гидродинамических явлений. М.: Физматгиз, 1966. 702 с.
9. *Руководство по организации контроля состояния природной среды в районе расположения АЭС /* Под ред. К.П. Махонько. Л.: Гидрометеоиздат, 1990. 266 с.
10. *Шкловский И.С.* Космическая радиация. М.: Гостехиздат, 1956. 341 с.

*G.A. Kolotkov, S.T. Penin, L.K. Chistyakova* **Possibility of determination of APS emission activity from microwave radiation at a frequency of 1420 MHz.**

The passive method of determination of radioactivity level in emissions from atomic power stations by the secondary radiation from the emission plume is considered. The analysis of emissions from APS with the most typical reactors is carried out, and the basic beta-radionuclides in emissions are determined. The total power spectrum of electrons is determined taking into account their multiplication. The basic physical-chemical reactions resulting in formation of atomic hydrogen in the field of the emission plume are considered. Spatial distribution of atomic hydrogen concentration is calculated for the field of the emission plume and a power of emission at 1420 MHz is estimated. It has been shown, that to estimate radiation effect on atmosphere, it is necessary to take into account many generations of electrons, because they have average energies considerably exceeding the ionization potentials for atoms and molecules of the atmospheric components. It is established, that power of radiating in  $1 \text{ км}^3$  volume at a frequency of 1420 MHz in emissions from the atomic power station, can reach  $\sim 10^{-13}$  W. Comparison with results of field experiments on registration of radiation at a frequency of 1420 MHz from the emission plume of RCP (a radiochemical plant) is carried out, whence it follows, that the given method allows one to confidently detect the common activity level of emissions from atomic power stations.