

ЛАЗЕРЫ И РАДИАЦИОННАЯ БЕЗОПАСНОСТЬ

ПРИВАЛОВ В.Е.,
ФОТИАДИ А.Э.,
ШЕМАНИН В.Г.

Рассмотрены современные методы мониторинга радиоактивного заражения окружающей среды. Выполнен анализ работ по проблеме лазерного зондирования радиоактивного загрязнения атмосферы. Приведены результаты мониторинга молекулярного йода в атмосфере с помощью лидаров.

Ключевые слова: лазерный мониторинг; радиоактивное загрязнение; молекула йода; лазер; длина волны; концентрация; лидар дифференциального поглощения.

LASERS AND RADIOACTIVE SAFETY

VADIM PRIVALOV
ALEXANDER FOTIADI
VALERY SHEMANIN

The modern methods of the environmental monitoring radioactive pollution have been described. The analysis of the atmospheric radioactive pollution laser sensing works was fulfilled. The molecular iodine lidar monitoring in the atmosphere results have been given.

Keywords: laser monitoring; radioactive pollution; iodine molecule; laser; wavelength; concentration; differential absorption lidar.

Большую часть двадцатого века уровень радиации определяли с помощью счётчика Гейгера-Мюллера. При больших уровнях радиации – это опасно для оператора. Стали искать новые средства диагностики радиационной обстановки. Эти средства нашлись (см., например, [1]).

Первая в мире атомная электростанция (АЭС) появилась в нашей стране в 1954 году. Позднее АЭС были построены в США и Великобритании. Последней и принадлежит пальма первенства по чрезвычайным происшествиям на АЭС (1957, Уиндскейл). Потом были аварии в США и Германии. В 1986 году случилась авария на Чернобыльской АЭС. В 2011 году произошла авария на Фукусиме (Япония). Последняя была практически скрыта, насколько это было возможно, от наблюдателей. Поэтому в прессе существует широкий спектр мнений: от того, что это была самая сильная авария в истории АЭС и последствия её ещё не полностью проявились, до утверждения, что аварии не было и это просто ширма для сокрытия испытаний ядерного оружия [2-4].

Во всех случаях радиоактивные изотопы йода определяли уровень радиоактивного

загрязнения воздуха [5]. Контроль, и главное, предупреждение аварийных выбросов радионуклидов в атмосферу, являются залогом безопасной работы АЭС и перерабатывающих предприятий радиохимического цикла.

Поэтому разработка методов и приборов для контроля таких выбросов представляет большой научный и практический интерес. Важно также, чтобы эти методы были дистанционными. Существующие дистанционные методы можно разделить на две группы:

- прямые, регистрирующие интенсивность и спектр радиоактивных излучений;
- косвенные, использующие вторичные эффекты, проявляющиеся при воздействии этих излучений на атмосферу.

Несмотря на широкое применение прямых методов, их низкая чувствительность не позволяет проводить измерения на расстояниях более 100 м для γ - излучения. Среди косвенных методов контроля загрязнения атмосферы радионуклидами наиболее разработанным является метод радиолокации, в котором концентрация заряженных частиц определяется по коэффициенту

отражения зондирующего СВЧ- излучения от ионизированной области. Первые данные по радиолокации радиоактивного облака были получены в 1986 году при аварии на Чернобыльской АЭС, а затем работоспособность метода была продемонстрирована при крупных аварийных выбросах продуктов радиоактивного распада в атмосферу в различных погодных условиях в различных регионах.

Однако при низких уровнях загрязнения (порядка фоновых – до величины 10^7 ионов/см³) чувствительность радиолокаторов оказывается недостаточной. Более чувствительными методами пассивной диагностики радиоактивного загрязнения атмосферы может служить регистрация собственного свечения воздуха в видимом или СВЧ диапазонах, которое является следствием аварий на объектах ядерной энергетики и регистрация собственного СВЧ - излучения атомарного водорода в радиоактивных выбросах ядерного перерабатывающего предприятия в атмосферу.

Другими косвенными методами контроля радиоактивности в атмосфере могут служить спектроскопическая диагностика продуктов фотохимических реакций газовых компонент атмосферы под действием радиации и вторичные эффекты, возникающие при взаимодействии лазерного излучения заданной длины с продуктами радиолитизации атмосферных газов. Однако для использования резонансного усиления этих эффектов необходимы лазеры с длиной волны, попадающей в область собственных полос поглощения молекул – продуктов фотохимических превращений или радиолитизации. Такие требования заставляют тщательно подбирать источники лазерного излучения для контроля определенных молекул, которые и являются индикаторами радиоактивного загрязнения нижних слоев атмосферы над предприятием. А для этого необходимо определить основные радионуклиды при радиоактивном загрязнении воздуха, выделяющиеся при авариях на объектах ядерной энергетики, и оценить их возможные концентрации. Накопленные на сегодняшний день данные, относящиеся к аварии на Чернобыльской АЭС в 1986 году, позволяют оценить количество радионуклидов в выбросе в атмосферу. Отсутствие результа-

тов измерений позволяет говорить лишь об экспертных оценках, сделанных различными исследователями [6]. Эти оценки выхода радионуклидов в процентах от их количества в реакторе по данным [7-8] сведены в таблицу 1.

Анализ данных таблицы 1 свидетельствует, что при возникновении аварийной ситуации в выбросах в атмосферу можно ожидать в первую очередь появление радиоактивных благородных газов (РБГ), радионуклидов цезия, йода, стронция и теллура. Для мониторинга ультрамалых концентраций этих радионуклидов в атмосфере на расстояниях более 1 км, а не просто ионизации атмосферного воздуха под действием радиоактивности, необходимо применение активных методов дистанционного зондирования – дифференциального поглощения и рассеяния (ДПР) [9-11] и флуоресценции [12, 13].

Большой интерес к дистанционным измерениям концентрации молекулярного йода в технологических газах или атмосфере вызван тем, что в районе АЭС или других радиохимических предприятий тяжелый изотоп йода $^{131}\text{I}_2$ может служить индикатором радиоактивного загрязнения [12, 13].

Таблица 1

Оценки выхода радионуклидов в % от их количества из 4-го блока реактора

| Радионуклид | Минимум, % | Максимум, % | Прим. |
|-------------|------------|-------------|-------|
| Kr- 85 | - | 100 | (РБГ) |
| Xe-133 | 50 | 100 | (РБГ) |
| J- 131 | 12 | 60 | |
| Cs- 134 | - | 10 | |
| Cs- 137 | 13 | 86 | |
| Te- 132 | 3 | 15 | |
| Ru-103 | 0,3 | 2,9 | |
| Ru-106 | - | 2,9 | |
| Sr-89 | - | 4,0 | |
| Sr-90 | 0,01 | 16,0 | |
| Mo-99 | - | 2,3 | |
| Zr-95 | - | 3,2 | |
| Ba-140 | 0,4 | 5,6 | |
| Np-239 | 0,02 | 3,2 | |
| Ce-141 | - | 2,3 | |
| Ce-144 | - | 2,8 | |
| Pu-238 | - | 3,0 | |
| Pu-239 | - | 3,0 | |
| Pu-240 | - | 3,0 | |
| Pu-241 | - | 3,0 | |
| Pu-242 | - | 3,0 | |
| Cm-242 | - | 3,0 | |

Йод является элементом VII группы Периодической таблицы Д.И. Менделеева с атомным номером $Z = 53$. Относительная масса стабильного изотопа ${}_{53}\text{I}^{127}$, из которого в основном состоит природный йод, равна 126,9. Остальные изотопы йода (от 110 до 141) являются радиоактивными. Изотопы 110 ... 118 живут от долей секунды до 14 минут. В природе можно обнаружить изотопы от ${}_{53}\text{I}^{120}$ до ${}_{53}\text{I}^{135}$. Обнаружение остальных маловероятно из-за малого времени полураспада. Поведение всех изотопов йода в природной среде примерно одинаково, поэтому для изучения радиоактивных изотопов йода можно использовать ${}_{53}\text{I}^{127}$. В книге [5] детально рассмотрены изотопы йода и вопросы радиоактивного загрязнения, связанные с ним. Спектральным характеристикам йода уделено мало внимания. Поэтому обратим внимание на эти характеристики йода, так как наиболее совершенные дистанционные методы обнаружения йода связаны с ними.

Спектр поглощения йода в оптическом и инфракрасном диапазонах состоит из электронно-колебательных и вращательных переходов из основного состояния $X^1\Sigma_{0g}^+$ в состояния $A^3\Pi_{lu}$, $B^3\Pi_{0u}$ и ${}^1\Pi_u$. Полосы, соответствующие переходу из основного состояния (далее будем обозначать X) в первое электронное состояние B , занимают интервал от 499 до 670 нм. Авторы работы [14] зарегистрировали примерно 47000 линий поглощения в этом диапазоне. Волновые числа около 23000 линий приведены в их атласе [14], из них 14000 - сильных линий, которые могут служить реперами лазеров и совпадают с известными лазерными линиями. Практически для любого лазера с диапазоном перестройки более 1 ГГц в указанном интервале может быть найдена линия йода.

Длины волн в атласе [14] определены в шестом знаке без указания интенсивности и идентификации. Поэтому информация в нем недостаточна для многих задач лазерной спектроскопии, ибо часто речь идет о стабильности и воспроизводимости в девятом-одиннадцатом знаках. Поскольку стабилизация частоты обычно идет по сверхтонким компонентам линии поглощения, положение центра линии желательно знать по крайней мере в восьмом знаке. Кроме того, поскольку достижение предельной вос-

производимости частоты лазера может быть обусловлено наличием слабых линий, необходимо увеличить диапазон квантовых чисел, для которых ведется расчет линий поглощения. В работах [15, 16] мы пытались решить эту задачу, составив таблицы частот в областях, соответствующих линиям излучения многих газоразрядных лазеров и второй гармоники лазера на неодиме. В работе [16] подытожены результаты 6 лет работы и приведено около 700 линий в восьмом знаке с указанием относительной интенсивности. В работе [17] примерно вдвое расширен по сравнению с [16] диапазон квантовых чисел, для которых велся расчет. Авторы получили 972000 линий, наиболее интересные из которых приведены в [17]. Линия поглощения в йоде-127 вблизи линии 632,99 нм, наиболее распространена сегодня и является эталонной, хотя и не самой подходящей для этих целей. Основные результаты, о которых пойдет речь ниже, связаны с переходом $B - X$. В настоящее время появились сообщения о стабилизации частоты по линиям перехода $A - X$. По-видимому, возможности йода-127 далеко не исчерпаны. Поскольку актуален вопрос увеличения числа линий йода, используемых для стабилизации, нами подготовлен атлас линий поглощения йода, волновые числа в котором указаны в 8 знаке и приведены относительные интенсивности поглощения. Изучены линии поглощения в йоде, близкие линиям излучения лазеров на парах металлов [18,19].

Прежде, чем сделать оценки концентрации йода при лидарных измерениях, нами были выполнены предварительные эксперименты с йодом. Результаты выполненных ранее исследований в [10, 20, 21] позволяют предположить, что для обнаружения концентраций N_a молекулярного йода порядка 10^{11} см⁻³ и ниже в атмосфере наиболее предпочтительным будет использование систем дифференциального поглощения. Это объясняется тем, что сечение поглощения йода имеет наибольшее значение по сравнению с эффективным (с учетом тушения) сечением флуоресценции и сечением упругого рассеяния [2]. В связи с этим на основе ослабления лазерного излучения с соответствующим подбором длины волны излучения можно создать чувствительный метод

измерения концентрации йода в атмосфере.

Рассмотрим эксперимент на второй гармонике YAG - Nd лазера [10], поскольку $\lambda_L = 532$ нм попадает в полосу поглощения исследуемых молекул I_2 [17]. Вариант лидара дифференциального поглощения подразумевает использование двухволнового излучателя: одна длина волны лазерного излучения попадает в центр полосы поглощения йода, а другая – вне этой полосы. Лазерное излучение вне полосы поглощения йода необходимо иметь на длине волны большей 589,5 нм, соответствующей максимуму полосы флуоресценции молекул I_2 . В качестве такого излучения можно использовать, например, основную гармонику YAG: Nd лазера на длине волны 1064 нм. Из расчетов следует, что при известном значении сечения резонансного поглощения σ_a , можно достаточно эффективно использовать зависимость ДП- коэффициента X от N в дистанционных измерениях концентраций газовых молекул в атмосфере. Поэтому для оценки эффективности метода дифференциального поглощения для зондирования атмосферы был изготовлен лабораторный лидар дифференциального поглощения и исследованы зависимости коэффициента дифференциального поглощения от концентрации или парциального давления йода в специальной кювете.

В лабораторном лидаре дифференциального поглощения, оптическая схема которого приведена на рис. 1, излучение YAG: Nd лазера 1 с импульсами длительностью 10 нс и энергиями 25 мДж на длине волны 532 нм и 40 мДж - на длине волны 1064 нм

направлялось в специальную вакуумную кювету 4 с окнами под углом Брюстера. Интенсивность прошедшего сквозь кювету с йодом излучения на длине волны 532 нм ослаблялось за счет поглощения в йоде и через интерференционный светофильтр 6 направлялось на фотоумножитель 7 ФЭУ- 79. Одновременно интенсивность лазерного излучения на длине волны 1064 нм, также прошедшего сквозь кювету 4 с йодом, измерялась через интерференционного светофильтра 8 фотоумножителем 9 и служила в качестве опорного сигнала в дифференциальной схеме измерения. Стеклянными пластинами 2 и 3 лазерное излучение на обеих длинах волн через светофильтры 11 и 13 направлялось на фотодиоды 12 и 14 типа ФД-24К для контроля энергии лазерных импульсов и синхронизации работы лидара. Импульсы напряжений с двух одинаковых фотоумножителей 7, 9 и фотодиодов 12 и 14 $U_0 \dots U_3$ вводились в измерительную систему и записывались в ПК.

Далее были выполнены калибровочные эксперименты для измерения коэффициента передачи двух фотоприемных модулей на фотодиодах ФД-24К. Для этой цели ослабленное калиброванными нейтральными светофильтрами излучение лазера на длинах волн 1064 и 532 нм направлялось на соответствующий фотодиод. Энергия лазерного импульса контролировалась с помощью измерителя мощности ИМО-2М. Подбором коэффициентов усилителей на выходах фотодиодов были установлены коэффициенты передачи модулей $K_\phi = 4.5 \pm 0.5$ мДж/В.

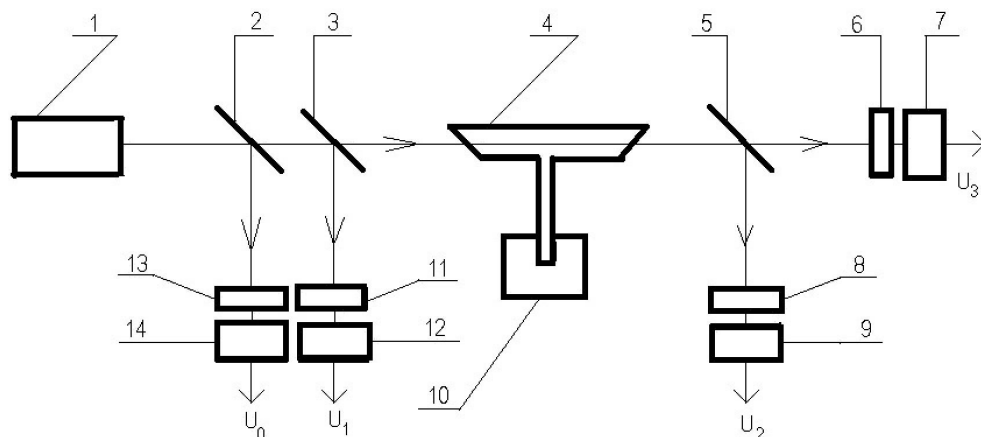


Рисунок 1 – Оптическая схема экспериментального лидара дифференциального поглощения:

1 – лазер; 2, 3 – плоскопараллельные стеклянные пластины; 4 – кювета; 5 – полупрозрачное зеркало; 10 – термостат; 6, 8, 11, 13 – интерференционные светофильтры; 7, 9 – фотоумножители, 12, 14 – фотодиоды.

Затем были выполнены калибровочные эксперименты для измерения коэффициента передачи двух фотоприемных модулей на фотоумножителях ФЭУ-79. Для этой цели ослабленное калиброванными нейтральными светофильтрами излучение лазера на длинах волн 1064 и 532 нм направлялось на соответствующий ФЭУ. Энергия лазерного импульса так же контролировалась с помощью измерителя мощности ИМО-2М. Подбором коэффициентов усилителей на выходах ФЭУ были установлены коэффициенты передачи модулей $K_{\phi} = 0.4 \pm 0.1$ мкДж/В.

Полученные результаты позволили перейти от напряжений к энергиям импульсов, а затем к ДП – коэффициенту X , значения которого представлены в таблице 2.

Концентрация или парциальное давление I_2 в кювете изменялось нагреванием отростка кюветы 4 от 25 до 85°C в термостате 10. Длина кюветы составляла 10 см. Относительная погрешность измерений составила не более 11%. С точностью наших измерений результаты для расстояний зондирования от 1 до 8 м совпали.

График зависимости ДП-коэффициента X от концентрации молекул йода для расстояния 4 м приведен на рис. 2. Обработка этого графика позволила рассчитать сечение поглощения молекул йода на длине волны 532 нм, которая оказалась равным $\sigma_a = (1,9 \pm 0,4) \cdot 10^{-18}$ см² в удовлетворительном согласии с данными [22] – $4,6 \cdot 10^{-18}$ см².

Таблица 2

Измеренные значения сигналов дифференциального поглощения на длинах волн 1064 и 532 нм, энергий импульсов, рассчитанных значений концентраций молекул йода и ДП-коэффициента

| $N \cdot 10^{15}$, см ⁻³ | U_{0r} , В | U_{1r} , В | U_{2r} , В | U_{3r} , В | ΔU_{3r} , В | E_{0r} , мДж | E_{1r} , мДж | E_{2r} , мДж | E_{3r} , мДж | ΔE_{0r} , мДж | X |
|---|-----------------|-----------------|-----------------|-----------------|---------------------|-------------------|-------------------|-------------------|----------------|--------------------------|-------|
| 7.42 | 10.0 | 4.4 | 5.1 | 2.6 | 0.2 | 45 | 20 | 23 | 11.7 | 0.9 | 0.508 |
| 14.8 | | | 5.1 | 2.9 | | | | 23 | 13 | | 0.588 |
| 18.2 | | | 4.4 | 3.1 | | | | 22 | 13.8 | | 0.625 |
| 23.9 | | | 5.1 | 3.5 | | | | 23 | 16 | | 0.694 |
| 27.5 | | | 5.1 | 3.8 | | | | 23 | 17 | | 0.726 |
| 32.4 | | | 4.4 | 4.0 | | | | 22 | 18 | | 0.820 |

Таким образом, обработка результатов измерений позволила получить сечение поглощения молекул йода на длине волны 532 нм в диапазоне концентраций от $7,42 \cdot 10^{15}$ см⁻³ до

$3,24 \cdot 10^{16}$ см⁻³ в хорошем согласии с данными [22, 23]. Этот результат можно использовать при дистанционных измерениях концентраций молекулярного йода в атмосфере.

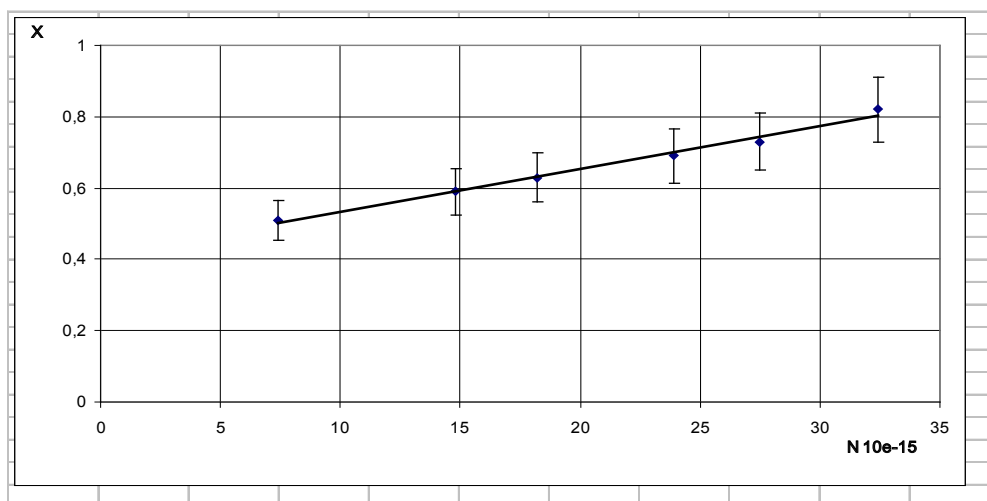


Рисунок 2 – График зависимости ДП-коэффициента X от концентрации молекул йода N в единицах 10^{15} см⁻³ для расстояния зондирования 4 м.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Привалов, В.Е. Дистанционная лазерная диагностика радиационной опасности // Материалы 4-ой Всероссийской НТК «Национальная безопасность». – СПб.: СПбГТУ. – 2000. – С. 245–246.
2. URL: http://energobelarus.by/index.php?section=articles&article_id=368
3. URL: <http://perevodika.ru/articles/18173.html>
4. URL: <http://www.regnum.ru/news/fd-abroad/armenia/1388551.html>
5. Стыро Б.И., Недвецкайте Т.Н., Филистович В.И. Изотопы йода и радиационная безопасность – СПб.: Гидрометеиздат, 1992. – 255с.
6. Черкашов Ю.М., Петров А.А., Новосельский О.Ю. [и др.]. Анализ текущей безопасности объекта «Укрытие» и прогнозные оценки развития ситуации // Сб. ВИНТИ «Проблемы безопасности при чрезвычайных ситуациях», М. – Вып.2 – 2001 – С. 57–64.
7. USSR State Committee on the Utilization of Atomic Energy. IAEA Post Accident Review Meeting. Vienna. 25-27.08.1986.
8. URL: <http://www.kiae.ru/rus/chnpp/2>
9. Зуев В.В., Катаев М.Ю., Макогон М.М., Мицель А.А. Лидарный метод дифференциального поглощения. Современное состояние исследований // Оптика атмосферы и океана. – 1995. – Т.8 – №8. – С. 1136–1164.
10. Привалов В.Е., Шеманин В.Г. Параметры лидара дифференциального поглощения для обнаружения молекулярного йода в атмосфере // Оптический журнал. – 1999. – Т.66. – №2. – С.40–42.
11. She C.Y. Remote measurement of atmospheric parameters : new applications of physics of lasers // Contemporary Physics. V. 31. – N. 4 – 1990. – P. 247–260.
12. Привалов В.Е., Шеманин В.Г. Параметры флуоресцентного лидара для зондирования молекулярного йода в атмосфере // Оптика атмосферы и океана. – 1998. – Т.11. – С. 237–239.
13. Воробьева Л.П., Евтушенко Г.С., Клишкин В.М. Си лазер в проблеме мониторинга радионуклидов йода // Оптика атмосферы и океана. – 1995. Т.8. – С. 1648–1651.
14. Gerstenkorn S., Luc P. Atlas de l'iode – Edition du CNRS. Paris, 1978.
15. Голикова Е.В., Миронов А.В., Привалов В.Е. О спектре поглощения йода-127 на длине волны 0,63 мкм // Оптика и спектроскопия. – 1986. – Т.61. – №3. – С.444–448.
16. Голикова Е.В., Привалов В.Е. Расчет линий поглощения для лазеров, стабилизированных по реперам йода //Препринт № 53 ИАП РАН, 1992.
17. Миронов А.В., Привалов В.Е., Савельев С.К. Полный расчетный атлас спектра поглощения йода -127 (система полос В-Х) и комплекс программ для табуляции линий йода // Оптика и спектроскопия. – 1997. – Т.82. – №3. – С.366–373.
18. Привалов В.Е. Перспективы стабилизации частоты ЛПМ // Квантовая электроника. – 1995. – Т.22. – №3. – С.303
19. Privalov V.E. Atlas of molecular iodine absorption lines // J. Moscow Phys. Soc. V. 7. – 1997. – P. 335
20. Привалов В.Е., Шеманин В.Г. Расчет параметров лидара для обнаружения паров йода в атмосфере // Приборы и системы управления. –1998. – №12. – С. 60–63.
21. Большаков А.А., Головенков Н.В., Ошемков С.В., Петров А.А. Лазерно-флуоресцентный анализ неорганических газов и паров // Журнал прикладной спектроскопии. – 1989. –Т.51. – №2. – С. 183–197.
22. Межерис Р. Лазерное дистанционное зондирование. – М.: Мир, 1987.
23. Привалов В.Е., Фотиади А.Э., Шеманин В.Г. Лазеры и экологический мониторинг атмосферы – СПб.: Лань, 2013. – 288с.