

УДК 551.509

О ВОЗМОЖНОСТИ ДИСТАНЦИОННОЙ ДИАГНОСТИКИ РАДИОАКТИВНОГО ЗАГРЯЗНЕНИЯ АТМОСФЕРЫ

В.П. Кудрявцев, И.Х. Ковалева

В работе предложен метод анализа и интерпретации спутниковых данных по регистрации инфракрасного (ИК) излучения с целью определения уровня радиоактивного заражения местности. Рассмотрена возможность определения уровня радиации по линиям неравновесного ИК излучения электронно-возбуждённых молекул азота в диапазоне длин волн окна прозрачности 10–20 μm .

Введение

Исследования Земли из космоса дают новые возможности для диагностики различных техногенных и естественных процессов, происходящих на поверхности Земли, в ее недрах или являющихся результатом взаимодействия геосфер. В последние годы длинноволновое инфракрасное (ИК) излучение атмосферы интенсивно исследовалось в связи с задачами теплового обмена между различными слоями литосферы, атмосферы и ионосферы, регистрации приземных геофизических возмущений различной природы. В рамках этих исследований проводились ракетные и спутниковые эксперименты по измерению ИК излучения спокойной атмосферы на различных высотах и в различных диапазонах длин волн.

Успешные результаты спутникового мониторинга за динамикой длинноволнового инфракрасного излучения, регистрируемого в ходе подготовки землетрясений и радиоактивного загрязнения атмосферы в моменты аварий на атомных электростанциях [Лаверов, Пулинец, Узунов, 2011; Ouzounov, Liu, Kang, et al., 2007; Лаверов, Величкин, Мальковский и др., 2007], позволили установить что, регистрируемые при этом на спутниках аномалии потоков ИК излучения дают основание для рассмотрения вопроса о возможности дистанционной диагностики данных явлений. Аварии на атомных электростанциях в США (1979 г.), в СССР (1986 г.) и в Японии (Фукусима, март 2011 г.) поставили вопрос о возможности объективного, независимого контроля уровня радиоактивного загрязнения атмосферы вследствие выброса в неё радиоактивных веществ. Необходим независимый источник информации, который позволит оценивать уровень радиоактивного заражения. Таким источником могут служить измерения ИК излучения над местом аварии.

Для успешного анализа спутниковых данных по ИК излучению необходимо чёткое представление об основных источниках ИК излучения, приходящего на ионосферные высоты. В частности, спутниковые измерения проводятся в диапазоне длин волн 8–12 мкм. В ходе подготовки землетрясения регистрируемые аномалии ИК излучения в этом диапазоне связывают с выхода на поверхность земли радона. Образованные ионы связываются в приземном воздухе с молекулами водяного пара. Процесс гидратации ионов и последующей коагуляции наночастиц сопровождается выделением тепловой энергии, что увеличивает температуру воздуха и, следовательно, ИК излучение. По измерениям интенсивность длинноволнового инфракрасного излучения над эпицентром землетрясения на Суматре 26.12.2004 г., согласно [Ouzounov, Liu, Kang, et al., 2007], возросла на 80 Вт/м^2 . При этом при оценках результатов измерений предполагалось, что излучение носит тепловой (равновесный) характер, то есть поток излучения и температура связаны соотношением $\epsilon \sigma T^4 = W$. Принимая $W = 240 \text{ Вт/м}^2$, $T = 288^\circ \text{ К}$, и учитывая, что аномалия радиационного потока излучения, составляет $\Delta W = 80 \text{ Вт/м}^2$, указанная аномалия излучения должна быть вызвана увеличением температуры атмосферы на $\Delta T = T \Delta W / 4W \approx 24^\circ \text{ К}$. Однако проводимые наблюдения показывают, что столь большое повышение температуры перед землетрясениями маловероятно и не наблюдалось. В связи с этим представляется необходимым проведение более тщательного комплексного анализа различных причин и каналов возрастания регистрируемого спутниками ИК излучения в данном диапазоне длин волн при различных возмущениях.

Более сложные связи системы литосфера-атмосфера-ионосфера формируют увеличенный уровень ИК излучения. Согласно работе [Aplin, McPheat, 2005], образу-

ящиеся в атмосфере кластерные ионы гидратов вида $X^+(H_2O)_n$, сами поглощают ИК излучение в диапазоне длин волн 4–14 мкм и поэтому вклад теплового ИК излучения из области гидратации ионов будет ещё ниже. Следовательно, необходимо рассмотрение каналов формирования неравновесного ИК излучения. Например, существуют экспериментальные данные по регистрации ИК излучения (7–14 мкм) при конденсации и кристаллизации водяных паров, которые связывают с излучением в процессе фазовых переходов (см. [Татарченко, 2010] и цитируемую в источнике литературу). Известно, что атмосфера модифицируется перед крупными землетрясениями, возможно изменение химического состава среды (выбросы CO_2), возникновение электрических полей, аэрозолей, тоже дающих вклад в ИК излучение, и т.д. [Liperovsky, Meister, Liperovskaya, Bogdanov, 2008]. Такие же изменения возможны и при авариях на атомных станциях. Но, прежде всего, необходимо учесть тот традиционный канал неравновесного ИК излучения атмосферного воздуха, который на протяжении десятилетий подробно исследуется, характеристики которого уточняются и используются для получения различных данных по состоянию атмосферы и нейтральных компонент ионосферы Земли. Это ИК излучение электронно-возбуждённого молекулярного азота (нейтрального и ионизованного) – основной компоненты атмосферного воздуха (например [Fraser, Green, O’Neil, 1991; Sundberg, Duff, Gruninger et al., 1995; Broadfoot, Hatfield, Anderson et al., 1997]). Электронное возбуждение N_2 неизбежно присутствует в тех случаях, когда происходит ионообразование. Образование ионов и возбуждение нейтральных молекул при воздействии ионизирующего источника происходит с одинаковой интенсивностью, по порядку величины. При этом многие авторы часто упускают из вида то, что конечная ширина полос излучения триплетных переходов молекулярного азота приводит к тому, что это излучение даёт вклад в исследуемый диапазон длин волн 8–12 мкм. Рассмотрению данного канала ИК излучения посвящена настоящая работа.

Постановка задачи и результаты расчётов

В настоящей работе в качестве физического механизма генерации подобных аномалий интенсивности длинноволнового инфракрасного излучения предлагается механизм возбуждения колебательных уровней молекул воздуха продуктами радиоактивного распада. Известно, что радиоактивный изотоп йода-131 (^{131}I) испускает электроны с энергией 970 кэВ, а радиоактивный цезий-137 (^{137}Cs) электроны энергии 170,8 кэВ. Энергичные электроны, а также продукты их вторичного распада приводят к образованию большого количества возбуждённых молекул воздуха.

Известно, что из 35 эВ, затрачиваемых на образование одной электрон-ионной пары, более 50% энергии электрона уходит на возбуждение электронных и колебательных уровней молекул атмосферного газа, с последующим высветом квантов излучения. С точки зрения образования спектра возбуждённых атомов и молекул атмосферы, воздействие таких продуктов распада, как α -частицы, γ -излучение и β -электроны, сводится к действию высокоэнергетичных электронов. Это электроны достаточно больших энергий, производящие не только возбуждение молекул, но и образующие вторичные электроны в актах ионизации. Основное возбуждение молекул производится вторичными электронами, так как максимумы сечений возбуждения различных электронно-возбуждённых уровней лежат в диапа-

зоне от 10 до нескольких десятков электрон-вольт. Поэтому уровень возбуждения среды, следовательно, и ее излучение определяется потоком первичных электронов и формой энергетического распределения образуемых ими вторичных электронов. При энергиях первичных электронов порядка и более одного кэВ функция распределения электронов по энергиям $f(\epsilon)$ в интересующем нас диапазоне энергий (десятков электрон-вольт) одинаковы и не зависят от энергии первичного электрона [Коновалов, Сон, 1980]. Вклад в возбуждение уровней молекул воздуха потоком электронов в этом случае является просто суммой вкладов отдельных электронов. Для задач, решаемых в рамках подобных моделей, характерно определение цены ионизации (w_i), возбуждения (U_i) различных уровней, то есть средней энергии, приходящейся на один акт ионизации или возбуждения и доли частиц того или иного сорта, образующихся в одном акте ионизации $\delta_i = w_i/U_i$, $\delta_v^i = U_v^i/U_i$. Здесь U_v^i – энергетическая цена образования i -го электронного состояния с колебательным уровнем V .

Теоретический расчет деградационного спектра электронов, или, $f(\epsilon)$ производился путем решения кинетического уравнения Больцмана. Методика расчета и функция распределения вторичных электронов по энергиям представлены в [Коновалов, Сон, 1987]. При этом была решена стационарная задача замедления электронов с энергией более 1 кэВ. Полученная в расчетах функция распределения электронов использовалась для определения параметров, характеризующих степень возмущения молекул воздуха [Коновалов, Сон, 1987]. Доля энергии, затрачиваемая на j -ый процесс, определялась выражением:

$$P_j = [\int f(\epsilon) V(\epsilon) \sigma_j(\epsilon) \epsilon_j d\epsilon] / [\sum_n \int f(\epsilon) V(\epsilon) \sigma_n(\epsilon) \epsilon_n d\epsilon].$$

Здесь $\sigma_j(\epsilon)$ – сечение j -го процесса, ϵ_j – его пороговая энергия. Суммирование проводится по всем элементарным процессам.

Энергетическая цена j -го процесса определяется выражением:

$$U_j = \epsilon_j / P_j,$$

число актов j -го процесса, возникающих при поглощении энергии E_0 –

$$Z_j = E_0 P_j / \epsilon_j.$$

Число актов элементарного j -го процесса приходящихся на один акт ионизации определяется выражением

$$\delta_j = Z_j / Z_i = w_i / U_i,$$

где w_i – цена образования одной электрон-ионной пары.

Каждый электронный уровень молекулы содержит тонкую структуру подуровней колебательного возбуждения. Для определения энергетической цены образования j -го электронного уровня с колебательным подуровнем v (U_v^j) и соответствующего параметра δ_v^j , сечения электронного возбуждения $\sigma_j(\epsilon)$ разбивались на сечения отдельных колебательно-возбужденных состояний данного электронного уровня. Способ расчета отдельных сечений использует подход работ [Словецкий, 1974], реализуемый во многих задачах. Сумма сечений отдельных переходов с различных колебательных подуровней равна сечению данного электронного возбуждения, поэтому $\sum_v \delta_v^j = 1$. Доля возбуждений, приходящая на данный колебательный подуровень электронных состояний молекулы N_2 ($B^3\Pi_g$, $W^3\Delta_u$, $B^3\Sigma_u^-$, $C^3\Pi_u$, $A^2\Pi_u$) представлены в таблице 1.

Таблица 1

Доли возбужденных молекул азота
на указанном колебательном подуровне V электронного состояния i ,
образующиеся в одном акте ионизации (δ_v^i)

$B^3\Pi_g$		$W^3\Delta_u$		$B^3\Sigma_u^-$		$C^3\Pi_u$		$A_2\Pi_u$	
V	δ_v^B	V	δ_v^W	V	$\delta_v^{B'}$	V	δ_v^C	V	δ_v^A
0	0,06100	0	0,00240	0	0,00168	0	0,54962	0	0,273
1	0,14759	1	0,01202	1	0,00844	1	0,30669	1	0,320
2	0,19525	2	0,03220	2	0,02286	2	0,10628	2	0,215
3	0,19056	3	0,06150	3	0,04411	3	0,02979	3	0,111
4	0,15109	4	0,09373	4	0,06785	4	0,00761	4	0,049
5	0,10532	5	0,12202	5	0,08920			5	0,0197
6	0,06582	6	0,14074	6	0,10326			6	0,0075
7	0,03877	7	0,14734	7	0,10935			7	0,0028
8	0,0216	8	0,14313	8	0,10768			8	0,0010
9	0,01138	9	0,13085	9	0,07761			9	0,00038
10	0,00589	10	0,11407	10	0,08632			10	0,00014
11	0,00292			11	0,07181			11	0,00005
12	0,00147			12	0,05851			12	0,000018
13	0,00072			13	0,04610				
14	0,00034			14	0,03506				
15	0,00017			15	0,02636				
16	0,00008			16	0,01958				
17	0,00004			17	0,01410				
				18	0,01013				

Для каждого колебательного подуровня v электронного уровня (j) количество колебательно возбужденных молекул и ионов, образованных электроном с начальной энергией E_0 , определяется из условия $n_v = (E_0/U_j)\delta_v^j$. При этом число испущенных квантов, в процессе общей излучательной дезактивации возбужденного уровня v , для интересующих нас отдельных линий $n_{v,v'}$, при отсутствии гашения в соударениях, будет определяться выражением $n_{v,v'} = A_{v,v'}^j n_v(t) / \sum A_{v,v'}^j$. Здесь $A_{v,v'}^j$ – (коэффициент Эйнштейна) или вероятность радиационных переходов с колебательного подуровня v электронного уровня (j) на колебательный подуровень v' электронного уровня (i). В работе используются вероятности радиационных переходов ($A_{v,v'}^j$) для различных электронных состояний из работ [Lofthus, Krupenie, 1977; Kostinsky, Matveev, Silakov, 1990].

Используя описанную выше методику, были проведены расчеты относительной интенсивности ИК-излучения $J = A_{v,v'} n_v$ (квант/с) отдельных линий для переходов $N_2^+(A^2\Pi_u, v) \rightarrow N_2^+(X^2\Sigma_g^+, v')$, создаваемых одним электроном с начальной энергией 1 кэВ. Здесь $A_{v,v'} = 1/\tau_{v,v'}$ – вероятность излучательного перехода с $A^2\Pi_u, v$ на колебательный подуровень v' электронного уровня ($X^2\Sigma_g^+$). Радиационное девозбуждение колебательных уровней полосы $N_2^+(A^2\Pi_u, v) \rightarrow N_2^+X^2\Sigma_g^+, v'$ рассчитывалось с использованием коэффициентов $A_{v,v'}$ из работы [Lofthus, Krupenie, 1977]. Результаты расчётов относительной интенсивности полосы $N_2^+(A^2\Pi_u, v) \rightarrow N_2^+X^2\Sigma_g^+, v'$ представлены на рис. 1.

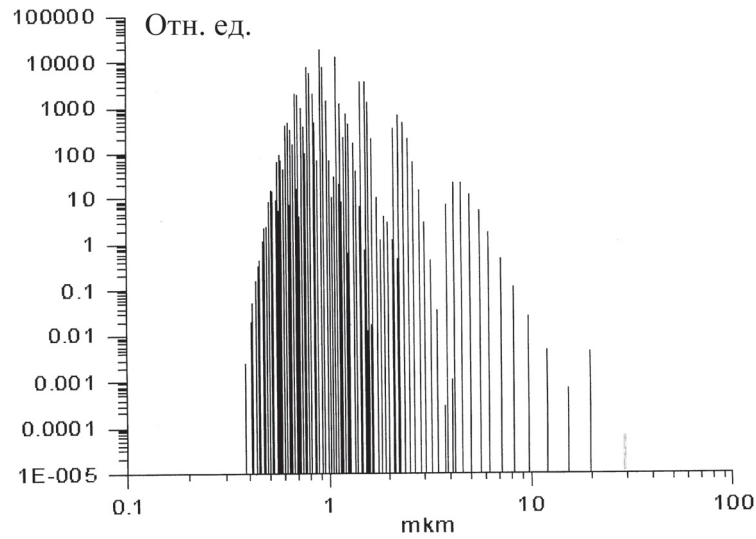


Рис. 1. Относительные интенсивности линий в полосе $N_2^+(A^2\Pi_u) - N_2^+(X^2\Sigma_g^+)$, создаваемые электроном с $E_0 = 1$ КэВ.

В первую очередь нас интересовали радиационные переходы, при которых происходит излучение линий в диапазоне длин волн 10–20 μm . Длины волн в указанном диапазоне, начальные и конечные колебательные подуровни для различных переходов каскада представлены в табл. 2. В расчётах были использованы данные из работы [Lofthus, Krupenie, 1977].

Таблица 2

$N_2(B^3\Pi, v) - N_2(A^3\Sigma, v')$		$N_2(B^3\Pi, v) - N_2(W^3\Delta, v')$		$N_2(B^3\Sigma, v) - N_2(B^3\Pi, v')$		$N_2(W^3\Delta, v) - N_2(B^3\Pi, v')$	
$\lambda \mu\text{m}$	$V-V'$	$\lambda \mu\text{m}$	$V-V'$	$\lambda \mu\text{m}$	$V-V'$	$\lambda \mu\text{m}$	$V-V'$
9,58	2–9	9,97	5–5	9,68	4–7	9,42	3–2
9,81	8–18	10,81	11–12	10,63	5–8	10,49	10–8
11,58	4–12	12,55	4–4	11,87	6–9	12,17	4–3
11,79	6–15	13,79	10–11	13,32	7–10	17,06	5–4
12,98	9–10	17,1	3–3	15,06	8–11	–	–
17,39	1–8	19,3	9–10	16,98	9–12	–	–
–	–	–	–	19,31	10–13	–	–

Интенсивность излучения линий каскада зависит от вероятности перехода между отдельными колебательными подуровнями $A_{vv'}$, а, следовательно, и от длины волны излучения. Для линий, представленных в таблице 2, были рассчитаны относительные интенсивности излучения, создаваемого одним электроном с $E_0 = 1$ КэВ ($J = (E_0/Wi)A_{vv'}\delta_j\delta_v^j$, квант/с). Результаты расчёта представлены на рис. 2.

Наиболее интенсивные линии наблюдаются в полосе $N_2(B^3\Pi_g, v) \rightarrow N_2(W^3\Delta_u, v')$ при переходах $(V = 5 - V' = 5) - \lambda = 9,97 \mu\text{m}$, $(4-4) - \lambda = 12,55 \mu\text{m}$ и $(3-3) - \lambda = 17,1 \mu\text{m}$, относительные интенсивности соответственно равны 10, 8 и 3.

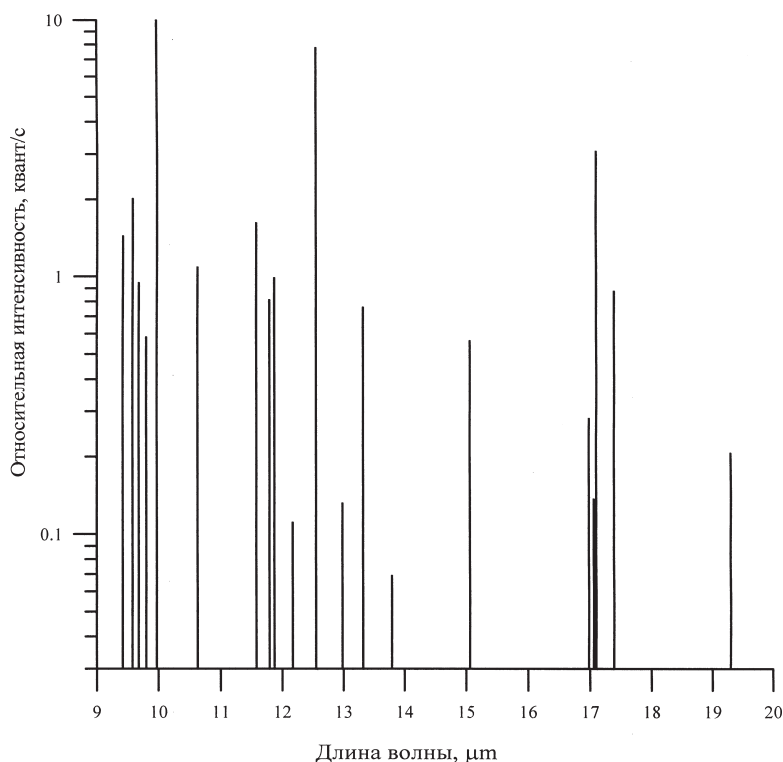


Рис. 2. Относительные интенсивности линий в полосах $V^3\Pi_g$, $W^3\Delta_u$, $V^3\Sigma_u^-$, создаваемые электроном с $E_0 = 1$ Кэв.

Заключение

Таким образом, проведённые расчёты показали, что в результате возбуждения колебательных уровней молекул азота в пограничном слое атмосферы при её существенном радиоактивном загрязнении в ней генерируется неравновесное ИК излучение в широком диапазоне длин волн (0,4–30 мкм), в том числе в окне прозрачном для паров воды. Это делает возможным измерения потоков ИК излучения аппаратурой установленной на спутниках. Отметим, что во всех рассчитанных полосах присутствуют линии, которые измерялись на спутниках (8–12 мкм) при дистанционной диагностике радиоактивно зараженной среды. Спутниковые данные можно интерпретировать как регистрацию неравновесного ИК излучения в диапазоне длин волн, прозрачном для облачного покрова. Подобная регистрация делает данные измерения погодонезависимыми.

Регистрация интенсивности отдельных линий ИК излучения на спутниках позволяет связать потоки неравновесного ИК излучения и величину радиоактивных выбросов в атмосферу. Однако при этом в количественных расчётах интенсивности отдельных линий необходимо учесть все каналы их безизлучательного девозбуждения (столкновительные, за счёт химических реакций), возможность изменения соотношения интенсивности отдельных линий за счёт процессов столкновительного перераспределения возбуждения [Benesch, Fraedrich, 1984; Bachmann, Ottinger,

Vilesov, 1992; Bachmann et al., 1993], возможное наложение излучения различных линий, так как вращательные подуровни каждой колебательной линии расширяют её ширину в длинах волн до размеров порядка единиц мкм.

Авторы благодарят д.ф.-м.н. С.И. Козлова за ценные замечания, возникшие в ходе обсуждения данной работы.

Литература

Коновалов В.П., Сон Э.Е. Функция распределения электронов и состав молекулярной плазмы, возбуждаемой пучком электронов // ЖТФ. 1980, Т. 50, в. 2, с. 300–310.

Коновалов В.П., Сон Э.Е. Деградиционные спектры электронов в газах // Химия плазмы / под ред. Б.М. Смирнова. № 14. М.: Энергоатомиздат. 1987.

Лаверов Н.П., Величкин В.И., Мальковский В.И. и др. // Изменение окружающей среды и климата: природные и связанные с ними техногенные катастрофы. М.: ИГЕМ РАН, 2007. с. 139–175.

Лаверов Н.П., Пулинец С.А., Узунов Д.П. Использование теплового эффекта ионизации атмосферы для дистанционной диагностики радиоактивного заражения окружающей среды // ДАН. 2011. Т. 441. № 2. с. 245–248.

Словецкий Д.И. Диссоциация молекул электронным ударом // Химия плазмы / под ред. Б.М. Смирнова. М.: Атомиздат, 1974.

Татарченко В.А. Природа некоторых фиксируемых ИСЗ источников ИК излучения // Современные проблемы дистанционного зондирования Земли из космоса. 2010, Т. 7, № 4, с. 310–318.

Aplin K.L., McPheat R.A. Absorption of infra-red radiation by atmospheric molecular cluster-ions // J. Atmos. Sol. Terr. Phys. 2005, V. 67, (8-9). PP. 775–783.

Bachmann R., X. Li, C. Ottinger, V.F. Vilesov, Molecular-beam study of the collisional intramolecular coupling of $N_2(B^3\Pi_g)$ with $N_2(A^3_u^+)$ and $N_2(W^3_u)$ states // J. Chem. Phys. 1992, V. 96. PP. 5151–5165.

Bachmann R., X. Li, C. Ottinger, V.F. Vilesov, V. Wulfmeyer. Vibrational-state-to-state collision-induced intramolecular energy transfer $N_2(A^3_u^+ \rightarrow B^3\Pi_g)$ // J. Chem. Phys. 1993, V. 98. PP. 8608–8628.

Benesch W., Fraedrich D. The role of intersystem collisional transfer of excitation in the determination of N_2 vibronic level populations. Application to $B^3\Sigma_u^- - B^3\Pi_g$ band intensity measurements // J. Chem. Phys. 1984, V. 81, N. 12 pt. 1. PP. 5367–5374

Broadfoot A.L., Hatfield D.B., Anderson E.R., Stone T.C., Sandel B.R., Gardner J.A. N_2 triplet band system and atomic oxygen in the dayglow // J. Geophys. Res. 1997, V. 102. PP. 11567–11584.

Fraser M.E., Green B.D., O'Neil R.R. Infrared emission from the electron irradiated upper atmosphere produced by the Excede:Spectral experiment // J. Geophys. Res. 1991, V. 96, A 11. PP. 19491–19497.

Kostinsky A.Y., Matveev A.A., Silakov V.P. Kinetic Processes In The Non-Equilibrium Nitrogen-Oxygen Plasma // Preprint № 87. Academy of Sciences Of The USSR. General Physics Institute. Plasma physics division. M., 1990.

Liperovsky V.A., C.-V. Meister, E.V. Liperovskaya, V.V. Bogdanov, On the generation of electric field and infrared radiation in aerosol clouds due to radon emanation in the atmosphere before earthquakes // Nat. Hazards Earth Syst. Sci., 2008, 8. PP. 1199–1205.

Lofthus A., Krupenie P.H. The spectrum of molecular nitrogen // J. of Phys. and Chem. Ref. Data. 1977, V. 6, N1, pp. 113–228.

Ouzounov D., Liu D., Kang C., et al. Outgoing long wave radiation variability from IR satellite data prior to major earthquakes // Tectonophysics. 2007. V. 431. PP. 211–220.

Sundberg R.L., Duff J.W., Gruninger J.H., et al. SHARC: A model for calculating atmospheric infrared radiation under non-equilibrium conditions // In: The Upper Mesosphere and Lower Thermosphere: A Review of Experiment and Theory. Geophys. Monogr. Ser., 1995, V. 87. PP 287–295.