УДК 535.371:546.15

С.В. Киреев, С.Л. Шнырев

Московский инженерно-физический институт (государственный университет)

РАЗРАБОТКА ЛАЗЕРНЫХ МЕТОДОВ И СРЕДСТВ ЭКОЛОГИЧЕСКОГО МОНИТОРИНГА ИЗОТОПОВ ЙОДА В АТМОСФЕРЕ

Исследована флуоресценция изотопов молекулярного йода ^{129}I и ^{127}I, возбуждаемая излучением Kr- и Nd-лазеров. Предложен лазерно-флуоресцентный метод определения концентрации йода-129 в газовых средах в реальном масштабе времени. Чувствительность данного метода позволяет осуществлять надежный и оперативный контроль технологического процесса переработки облученного ядерного топлива на предприятиях ядерного топливного цикла и экологический мониторинг атмосферного воздуха. Показана перспективность лидарного (дистанционного) метода детектирования этих изотопов в атмосфере.

Fluorescence of iodine-129 and iodine-127 made active by Kr and Nd lasers radiation has been studied. As a result of investigations the laser-fluorescent method to detect iodine-129 concentration in gas conditions in real time conditions has been suggested. The sensitivity of this method enables the user to control both positively and efficiently the processing of the waste nuclear fuel that has been exposed to radiation at the plants of the nuclear fuel production cycle and to monitor the ecological state of the atmospheric air. The future prospects of the lidar (remote) method to detect these isotopes in air are shown hereinafter.

В связи с развитием атомной промышленности крайне актуальными становятся задачи как обеспечения безопасности на предприятиях ядерного топливного цикла (ЯТЦ), так и экологической безопасности. Радиоактивный изотоп ^{129}I, являющийся одним из компонентов облученного ядерного топлива (ОЯТ), признан весьма опасным для здоровья веществом. В процессе переработки топлива заметная доля йода-129 выделяется в газовой фракции и, в конечном счете, попадает в атмосферу. Вследствие этого разработка методов измерения концентрации ^{129}I в реальном масштабе времени открывает возможности для создания эффективных средств контроля за ходом технологического процесса переработки топлива, что важно с точки зрения его безопасности, и для экологического мониторинга окружающей среды.

Одной из главных трудностей при реализации флуоресцентной методики детектирования йода-129 в реальных условиях является неизбежность проведения измерений на фоне всегда присутствующего в атмосфере естественного изотопа йода $^{127}I_2$. При этом концентрации йода-127, как правило, заметно превышают концентрации йода-129. Так как спектры поглощения и флуоресценции этих двух молекул в значительной степени перекрываются, для решения проблемы измерения концентрации йода-129 на фоне существенно бóльших концентраций йода-127 необходимы специальные методики. Как показывают экспериментальные и теоретические исследования, одним из наиболее перспективных методов, позволяющих решать указанные задачи, является метод лазерно-возбуждаемой флуоресценции [3].

Исследования флуоресценции изотопов молекулярного йода ^{129}I и ^{127}I, возбуждаемой излучением Kr-лазера (длина волны $\lambda = 647$ нм), позволили разработать новый метод решения указанной задачи.

Экспериментально полученные спектры флуоресценции йода-127 и йода-129, возбуждаемые излучением Kr-лазера, представлены на рис.1. Для более детального анализа спектров нами были проведены расчеты спектров поглощения йода вблизи длины волны излучения Kr-лазера и спектров возбуждаемой флуоресценции.

На основании полученных результатов предложен метод определения концентра-

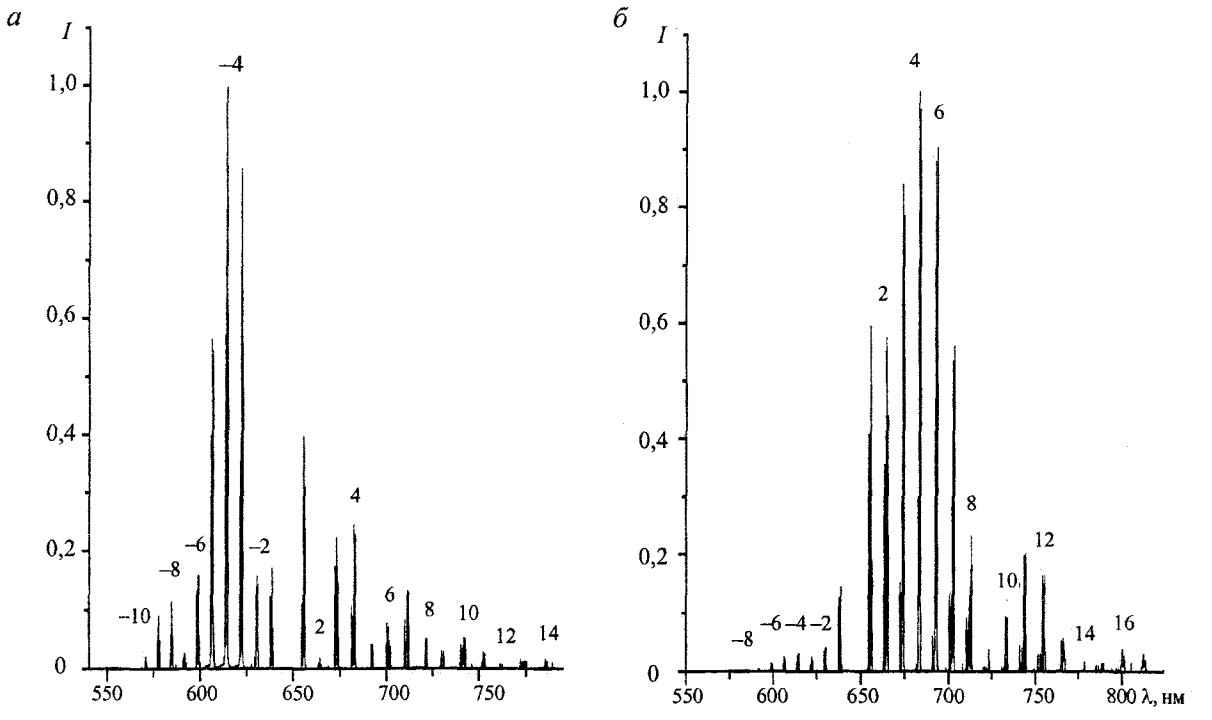


Рис.1. Спектры флуоресценции $^{127}I_2$ (*а*) и $^{129}I_2$ (*б*), возбуждаемой Kr-лазером, в относительных единицах

ции йода-129 и йода-127 в газах, основанный на одновременной регистрации излучения флуоресценции в стоксовой и антистоксовой областях спектра. Граничное соотношение изотопов йода в смеси, измеряемых одновременно (около 10^{-5}), соответствует лучшим результатам, достигнутым в настоящее время. Авторами проекта в 2002 г. получен патент*.

Результаты исследований [1, 2] свидетельствуют также о перспективности лазерных дистанционных (лидарных) методов решения задачи детектирования изотопов йода в газах. Нами были проведены теоретические и экспериментальные исследования флуоресценции изотопов йода, возбуждаемой излучением Nd-лазера ($\lambda = 533$ нм), и разработан лидарный метод их детектирования в атмосфере в реальном масштабе времени.

Результаты расчетов достаточно хорошо согласуются с экспериментом (рис.2). Установлено, что результирующий спектр флуоресценции каждого изотопа обусловлен сравнимым друг с другом вкладом до десятка переходов.

Рассчитана величина интегрального обратного дифференциального сечения резонансной флуоресценции йода-127 и йода-129:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{\text{полн}} = \sum_{i=1}^{n}\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_i = \sum_{i=1}^{n}\sum_{j=1}^{m}\frac{k_i(\lambda)q_{ij}}{4\pi(1+\tau_0^i[M]k_M^i)},$$

где $k(\lambda)$ – коэффициент поглощения молекулы йода на длине волны λ; q – коэффициент Франка – Кондона; τ_0 – суммарное время излучательной релаксации и спонтанной предиссоциации; $[M]$ – концентрация буферного газа; k_M – константа тушения флуоресценции. Суммирование производится по i-м линиям поглощения и по j-м регистрируемым спектральным линиям флуоресценции.

Показано, что при использовании импульсного Nd-лазера с мощностью около 10 МВт ожидаемая минимальная регистрируемая концентрация молекулярного йода

* Пат.2181197 РФ. Способ определения концентрации молекулярного йода в газах / С.В.Киреев, Б.Д.Проценко, С.Л.Шнырев (РФ).

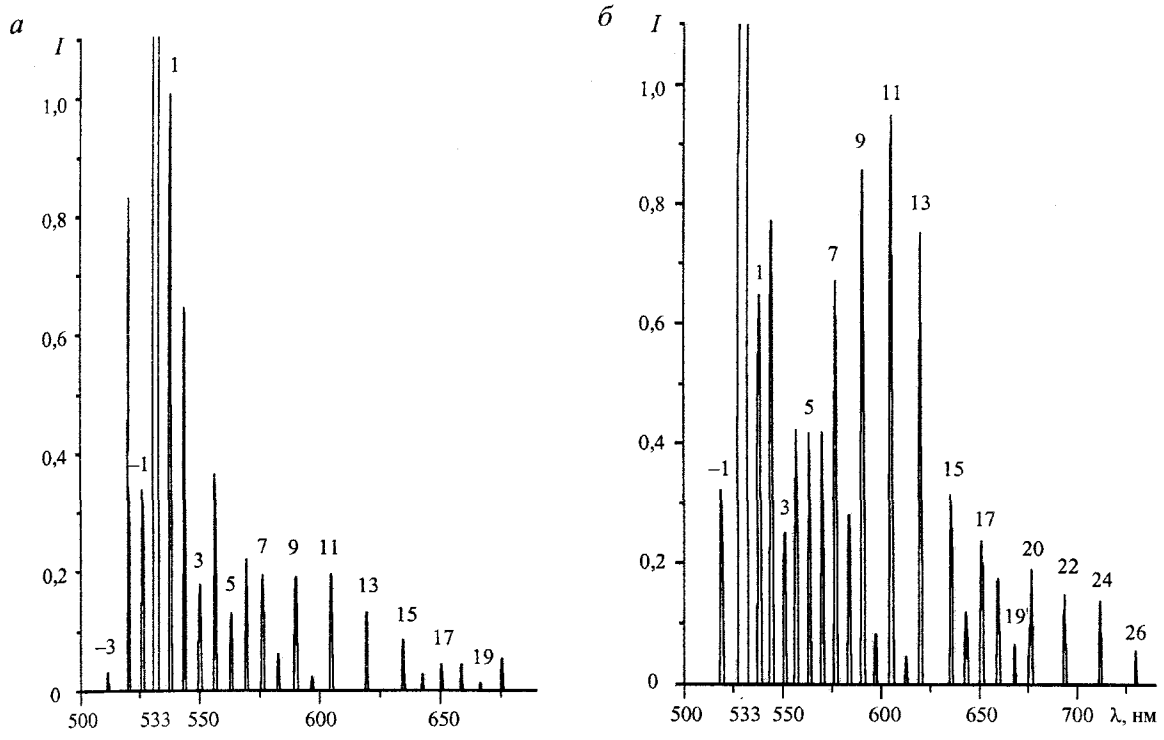


Рис.2. Спектры флуоресценции $^{129}I_2$ (*а*) и $^{127}I_2$ (*б*), возбуждаемой излучением Nd-лазера, в относительных единицах

находится на уровне 10^{10}-10^{11} см$^{-3}$, что свидетельствует о перспективности разработки соответствующего лидара для детектирования йода в атмосферном воздухе.

Работа выполнена в рамках проекта № 02.01.012 программы «Научные исследования высшей школы по приоритетным направлениям науки и техники» и при финансовой поддержке Межотраслевой научно-технической программы сотрудничества Минобразования РФ и Министерства РФ по атомной энергии по направлению «Научно-инновационное сотрудничество».

ЛИТЕРАТУРА

1. *Киреев С.В.* Разработка лазерно-флуоресцентного комплекса для экспресс-контроля изотопов молекулярного йода ^{129}I и ^{127}I в естественной атмосфере / С.В.Киреев, С.Л.Шнырев // Оптика и спектроскопия. 1999. Т.87. № 2. С.344-351.

2. *Киреев С.В.* Лазерная технология в измерениях глобального радионуклида йода-129 / С.В.Киреев, С.Л.Шнырев // Приборы и техника эксперимента. 2000. № 6. С.100-108.

3. *Kireev S.V.* Rotational relaxation of the levels of the B state in ^{127}I and ^{129}I molecular iodine isotopes excited by 633-nm radiation of a He-Ne laser / S.V.Kireev, S.L.Shnyrev // Laser Physics. 1999. V.9. № 3. P.614-625.