

С.В. Киреев, Е.Д. Проценко, С.Л. Шнырев

ЛАЗЕРНО-ФЛУОРЕСЦЕНТНЫЙ КОНТРОЛЬ ГЛОБАЛЬНОГО РАДИОНУКЛИДА ЙОДА-129

Создана лазерно-флуоресцентная система контроля долгоживущего изотопа йода-129 на базе гелий-неонового лазера. Система позволяет детектировать йод-129 как в технологических процессах переработки облученного ядерного топлива на радиохимических комбинатах, так и в атмосферном воздухе на уровне предельно допустимых концентраций.

1. Актуальной проблемой экологически безопасного функционирования предприятий ядерно-топливного цикла является создание средств контроля вредных выбросов этих предприятий. Особую значимость приобретает эта проблема для контроля глобального радионуклида йода-129, поступающего в атмосферу главным образом при переработке облученного ядерного топлива, поскольку до сих пор не существует высокочувствительных средств детектирования этого изотопа в реальном масштабе времени [1].

В то же время известно, что, несмотря на существенно меньшую γ -активность йода-129 (период полураспада которого составляет 16 млн лет) по сравнению с короткоживущим изотопом йод-131 (благодаря чему йод-131 легко обнаруживается обычными радиометрическими методами), вредность его воздействия на организм человека даже выше, чем для печально известного после аварии Чернобыльской АЭС йода-131 [2].

В контроле йода-129 существует две задачи. Первая – регистрация йода непосредственно в технологическом процессе переработки облученного ядерного топлива на радиохимических комбинатах с чувствительностью $\sim 10^{11}$ мол/см³. Вторая – экологическая: контроль йода-129 в естественной атмосфере на уровне предельно допустимых концентраций $\sim 10^9$ мол/см³. Существенные различия в составах и состояниях газовых сред, в требованиях к чувствительности обнаружения йода обуславливают необходимость различных подходов в исследованиях и создании в конечном счете двух различных систем контроля: одной – для работы в специальной атмосфере, другой – в естественной.

2. Для непрерывного контроля примесей йода перспективно использовать методы лазерной аналитической спектроскопии, в частности, метод возбуждаемой лазером флуоресценции. В качестве источников возбуждения флуоресценции йода в основном применяются газовые лазеры: аргоновый ($\lambda = 515$ нм) и гелий-неоновый ($\lambda = 633$ нм). Так, при детектировании йода-129 в специальной атмосфере с помощью аргонового лазера достигнута чувствительность $7,5 \cdot 10^{12}$ мол/см³ [3], а для гелий-неонового – $5 \cdot 10^{12}$ мол/см³ [4]. В естественной атмосфере лучшая чувствительность также получена при использовании He-Ne-лазера ($\sim 10^{11}$ мол/см³) [5].

Учитывая эти факты, а также высокую надежность, простоту в эксплуатации, достаточно большой ресурс гелий-неонового лазера, можно сделать вывод о том, что именно на его основе целесообразно создавать лазерно-флуоресцентные системы для контроля йода-129 в специальной и естественной атмосфере. Этому вопросу и посвящена данная статья.

2.1. При детектировании молекулы $^{129}\text{I}_2$ в естественной атмосфере возникает проблема селективного обнаружения данного изотопа йода на фоне молекулы $^{127}\text{I}_2$ [6]. Учесть вклад молекул каждого вида в регистрируемый сигнал флуоресценции можно с помощью перестройки частоты возбуждаемого излучения относительно линий резонансного поглощения указанных молекул [7]. В нашей работе с этой целью применялся He-Ne-лазер, перестраиваемый в продольном магнитном поле. Диапазон частотной перестройки составил 5 ГГц. Стеклообразные окошки газоразрядной трубки лазера устанавливались ортогонально к оптической оси. Выделение σ^+ и σ^- -компонент излучения, производилось с помощью четвертьволновой пластинки и поляризатора; σ^+ и σ^- -пра-

вая и левая круговые поляризации лазерного излучения, образующиеся в результате наложения продольного магнитного поля на газоразрядный элемент лазера.

Флуоресценция $^{129}\text{I}_2$ возбуждалась в измерительной ячейке длиной 41 см и диаметром 3,5 см, соединенной с вакуумным постом для плавного напуска атмосферного воздуха (рис. 1). Давление в ячейке регулировалось с помощью образцового вакуумметра.

Излучение лазера модулировалось низкочастотным механическим прерывателем луча. Полезный сигнал фокусировался на фотокатод фотоэлектронного умножителя с помощью системы сбора флуоресценции, состоящей из двух линз и диафрагмы. Сигнал с ФЭУ поступал на вход синхронного детектора с полосой пропускания 0,03 Гц. Регистрация и обработка сигнала проводились с помощью компьютера IBM PC. Мощность лазерного излучения измерялась до и после ячейки с помощью фотоприемников и регистрировалась цифровыми вольтметрами. Для селекции сигнала флуоресценции на фоне рассеянного лазерного излучения использовался абсорбционный спектральный светофильтр с областью пропускания 650–900 нм.

Устранение спонтанного излучения газоразрядной трубки лазера, попадающего в область пропускания указанного светофильтра, достигалось с помощью интерференционного светофильтра с полосой пропускания 590–640 нм, установленного перед ячейкой. Кроме того, снижение уровня рассеянного на деталях измерительной ячейки лазерного излучения достигалось за счет диафрагмирования лазерного луча внутри и вне ячейки, чернения внутренних поверхностей ячейки. Для уменьшения темнового тока применялось охлаждение фотокатода жидким азотом.

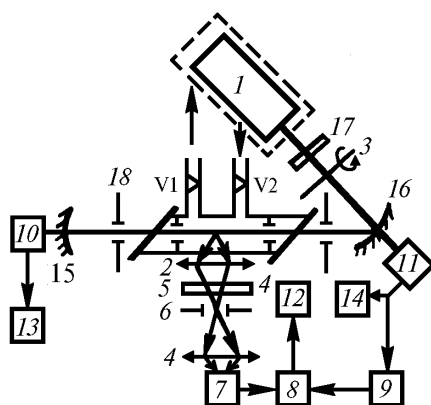


Рис. 1. Блок-схема лазерно-флуоресцентной системы: 1 – лазерная система; 2 – измерительная ячейка; 3 – модулятор лазерного луча; 4 – фокусирующие линзы; 5 – спектральный светофильтр (область пропускания либо 650–900, либо 585–620 нм); 6, 18 – диафрагмы; 7 – фотоумножитель; 8 – синхронный детектор; 9 – усилитель переменного сигнала; 10, 11 – фотоприемники; 12 – компьютер IBM PC; 13, 14 – цифровые вольтметры; 15, 16 – внешние зеркала; 17 – интерференционный светофильтр (область пропускания 590–640 нм)

С целью повышения чувствительности использовалась многопроходная система, образованная внешними зеркалами, между которыми помещалась ячейка.

Чувствительность установки составила $\sim 10^{-16}$ Вт и ограничивалась флуктуациями темнового тока ФЭУ.

Поскольку приготовить реперную ячейку со 100%-м содержанием $^{129}\text{I}_2$ крайне сложно и достаточно дорого, то для оценки чувствительности детектирования йода-129 в естественной атмосфере использовалась ячейка, заполненная смесью изотопов молекулярного йода в соотношении $^{129}\text{I}_2:^{127}\text{I}^{129}\text{I}:^{127}\text{I}_2 = 0,74:0,24:0,02$, типичной для облученного ядерного топлива. Давление насыщенных паров молекулярного йода в ячейке определялось внешней температурой и соответствовало концентрации йода 10^{16} мол/см³. Измерения проводились при давлении воздуха в ячейке ~ 10 Торр, близком к оптимальному с точки зрения чувствительности. Отношение сигнал-шум при этом составило $\sim 10^7$. Что касается селективности выделения сигнала флуоресценции йода-129 на фоне йода-127, то отношение интенсивностей флуоресценции $^{129}\text{I}_2:^{127}\text{I}_2$ составило ~ 100 .

2.2. При детектировании йода-129 в специальной атмосфере (т.е. в газовой рабочей среде при азотнокислом растворении отработанного ядерного топлива) появляются следующие особенности. Во-первых, нет необходимости использовать перестраиваемый по частоте лазер, поскольку в рабочей смеси, как правило, наблюдается заметное преобладание йода-129 над йодом-127 (в 5–6 раз), имеющего к тому же примерно на порядок больший коэффициент поглощения по сравнению с $^{127}\text{I}_2$. Во-вторых, так как одним из основных компонентов специальной атмосферы является диоксид азота, интенсивно поглощающий излучение He–Ne-лазера, возникает задача определения концентрации йода-129 на фоне флуоресценции NO_2 . В связи с тем, что излучение гелий-неонового лазера возбуждает практически только стоксовую область спектра флуоресценции диоксида азота (650–900 нм), то целесообразно переходить к регистрации флуоресценции йода в области 585–620 нм (антистоксовая область).

Испытания разработанной лазерно-флуоресцентной системы по детектированию йода-129 в специальной атмосфере проводились на базе Радиевого института им. В.Г. Хлопина. В процессе эксперимента растворению подвергался образец отработанного ядерного топлива в виде фрагмента твэла ядерного реактора АЭС. Используемый образец имел значительный срок выдержки (≥ 14 лет) и содержал практически лишь два изотопа йода: ^{129}I и ^{127}I с преобладанием йода-129 (84%). В процессе растворения топлива азотной кислотой 95–97% йода переходило в паро-газовую фазу, причем подавляющая часть газообразного йода находилась в виде молекулярных соединений $^{129}\text{I}_2$, $^{129}\text{I}^{127}\text{I}$, $^{127}\text{I}_2$.

Для возбуждения флуоресценции использовался линейно-поляризованный многомодовый лазер с мощностью излучения 25 мВт. Регистрация флуоресценции йода осуществлялась с помощью интерференционных светофильтров в спектральном диапазоне 585–620 нм. Для уменьшения уровня рассеянного лазерного излучения на деталях ячейки устанавливались окошки ячейки под углом Брюстера. Кроме того, рассеяние излучения на микрочастицах анализируемой рабочей смеси устранялось с помощью аэрозольного фильтра.

Во время эксперимента производился непрерывный контролируемый расходомером отбор небольшой части газового потока от аппарата–растворителя топлива в измерительную ячейку (см. рис. 1). Давление газовой смеси в ячейке равнялось 6–8 Торр. Для уменьшения измеряемых концентраций йода на входе в ячейку устанавливался газо-очистительный фильтр (с коэффициентом улавливания йода $\sim 10^{-2}$), аналогичный применяемому на радиохимических комбинатах. С целью независимой проверки результатов измерений, полученных с помощью лазерной системы, на выходе газового потока из установки помещалась йодная ловушка, посредством которой после окончания эксперимента радиометрическим методом определялось суммарное количество йода-129, выделенного в процессе всего растворения. Газовая смесь, прошедшая установку, подвергалась очистке от вредных веществ и поступала в атмосферу.

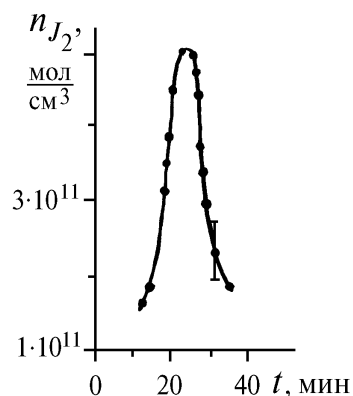


Рис. 2. Зависимость регистрируемого сигнала флуоресценции йода-129 от времени растворения образца топлива

На рис. 2 приведена зависимость сигнала флуоресценции йода от времени растворения образца топлива. Следует отметить, что вклад йода-127 в наблюдаемый сигнал не превышал 1–2%. За «нулевой» отсчет времени выбран момент подачи разогретого газа в аппарат-растворитель. Для калибровки полученного сигнала флуоресценции использовалась реперная

ячейка, содержащая эталонную смесь изотопов молекулярного йода, соответствующую изотопному составу йода в образце облученного топлива. Концентрация йода в пике растворения составила $(5,3 \pm 0,3) \cdot 10^{11}$ мол/см³. Заметим, что суммарные количества йода-129, измеренные радиометрическим и лазерно-флуоресцентным методами, отличались не более чем на 15%.

3. Таким образом, разработанная лазерно-флуоресцентная система позволяет надежно контролировать содержание йода-129 как непосредственно в газовой рабочей среде технологических процессов переработки облученного ядерного топлива, так и после систем газоочистки на радиохимических комбинатах. Кроме того, данная система может быть использована и для экологического мониторинга йода-129 в атмосферном воздухе, в том числе на уровне предельно допустимых концентраций.

1. Недвецкайте Т., Филистович В. // Физика атмосферы. 1985. N 10. С 105–110.
2. Козлов В. Ф. Справочник по радиационной безопасности. М.: Энергоатомиздат, 1987.
3. Советско-французское совещание <Методы и средства контроля технологического процесса переработки топлива АЭС>. Радиевый институт им. В.Г. Хлопина, Санкт-Петербург, 1988.
4. Заспа Ю. П., Киреев С. В., Проценко Е. Д. // Журнал прикладной спектроскопии. 1992. Т. 56. N 1. С. 116–121.
5. Заспа Ю. П., Киреев С. В., Проценко Е. Д. // Тез. докл. 6-й Всесоюзной конференции <Оптика лазеров>. Л., 1990. С. 368.
6. McDonald J. R., Baronavski A. P. Radioiodine Detector on Laser Induced Fluorescence: Patent 4188120 USA: Int. CL² G 01 J 3/30.
7. А. с. 1638614 СССР, МКИ⁵ G 01 N 21/64. Способ определения концентрации йода в газах. /Ю.П. Заспа, С.В. Киреев, Е.Д. Проценко.

Московский инженерно-физический институт

Поступила в редакцию
12 июля 1993 г.

S. V. Kireev, E. D. Protsenko, S. L. Shnyrev. Laser Fluorescence Control of the Global Radionuclide Iodine-129.

This paper presents a description of a laser fluorescence system for monitoring the content of a long living isotope of iodine-129. The system uses a He-Ne-laser as a light source. It provides the detection of this isotope in technological processing of nuclear fuel and in the atmosphere at the level of maximum permissible concentrations.