

УДК 535.14(076.5)
ББК 32.86-5я7
К43

Киреев С.В., Шнырев С.Л. **Оптические методы детектирования долгоживущих изотопов йода: Монография.** М.: НИЯУ МИФИ, 2010. – 284 с.

Изложены результаты многолетних теоретических и экспериментальных исследований в области оптической спектроскопии, выполненных авторами на кафедре лазерной физики Национального исследовательского ядерного университета «МИФИ».

На основе этих исследований разработаны новые высокочувствительные методы детектирования долгоживущих изотопов йода в газовых и жидких средах в реальном масштабе времени, основанные на использовании лазерной флуоресценции и оптической абсорбционной спектроскопии. Впервые создан лазерный комплекс для детектирования в реальном масштабе времени йода-129 и оксидов азота в процессах переработки облученного ядерного топлива на предприятиях атомной отрасли.

Предназначено для научных сотрудников, преподавателей высшей школы, интересующихся в своей профессиональной деятельности современными методами прикладной оптической спектроскопии, специалистов атомной отрасли в области безопасности ядерного топливного цикла и охраны окружающей среды, а также для аспирантов и студентов технических вузов.

Монография написана в рамках Федеральной целевой программы «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России» на 2009-2013 годы и при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 09-02-00523).

Рецензенты:

д-р физ.-мат. наук, проф. НИЯУ МИФИ *С.А. Гончуков*;

д-р техн. наук, начальник отдела Госкорпорации «Росатом» *Е.П. Емец*

Рекомендовано к изданию редсоветом НИЯУ МИФИ

ISBN 978-5-7262-1285-2

© Национальный исследовательский
ядерный университет «МИФИ», 2010

© С.В. Киреев, С.Л. Шнырев, 2010

ОГЛАВЛЕНИЕ

ВВЕДЕНИЕ.....	7
ГЛАВА 1. ЙОД, ЕГО ГЕНЕЗИС И МЕТОДЫ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ В ОБЪЕКТАХ ОКРУЖАЮЩЕЙ СРЕДЫ..	10
1.1. Физико-химические свойства йода.....	10
1.2. Источники поступления йода-129 в окружающую среду и его миграция.....	12
1.3. Методы детектирования йода-129 в объектах окружающей среды.....	14
1.4. Метод лазерно-возбуждаемой флуоресценции.....	24
1.5. Метод абсорбционной спектроскопии.....	29
ГЛАВА 2. ЛАЗЕРНО-ВОЗБУЖДАЕМАЯ ФЛУОРЕСЦЕНЦИЯ ИЗОТОПОВ МОЛЕКУЛЯРНОГО ЙОДА В ГАЗАХ.....	31
2.1. Оптическая накачка и релаксация.....	31
2.2. Спектры флуоресценции изотопов молекулярного йода.....	34
2.3. Столкновительная преддиссоциация возбужденных излучением He-Ne (632,8 нм) лазера колебательных уровней В-состояния I ₂	43
2.3.1. Самогашение флуоресценции I ₂	48
2.3.2. Тушение флуоресценции I ₂ буферными газами.....	52
2.4. Колебательная релаксация возбужденных уровней В-состояния I ₂	58
2.5. Вращательная релаксация возбужденных уровней В-состояния I ₂	67
2.5.1. Исследование вращательной структуры спектров ¹²⁷ I ₂ и ¹²⁹ I ₂	68
2.5.2. Методика определения констант скорости вращательной релаксации.....	75

ГЛАВА 3. ФАКТОРЫ, ВЛИЯЮЩИЕ НА ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ ЙОДА.....	88
3.1. Исследование влияния температуры паров йода и частоты возбуждающего излучения на интенсивность флуоресценции изотопов йода в отсутствие буферной среды.....	88
3.2. Исследование влияния давления буферного газа на флуоресценцию изотопов йода.....	100
3.2.1. Экспериментальное исследование столкновительного уширения линий поглощения изотопов йода.....	100
3.2.2. Оптимальное давление буферного газа при детектировании изотопов йода в атмосфере.....	105
3.3. Оптимизация давления буферного газа, температуры паров йода и частоты возбуждающего излучения.....	111

ГЛАВА 4. ДЕТЕКТИРОВАНИЕ ИЗОТОПОВ ^{127}I И ^{129}I , НАХОДЯЩИХСЯ В ГАЗОВОЙ СМЕСИ.....	117
4.1. Метод детектирования изотопов йода на основе частотно-перестраиваемого гелий-неонового лазера.....	118
4.2. Лазерно-флуоресцентный метод детектирования изотопов молекулярного йода ^{129}I и ^{127}I на основе Kr (647,1 нм) лазера.....	122
4.3. Повышение точности и чувствительности определения концентрации ^{129}I в смеси с ^{127}I	125
4.3.1. Методика расчетов.....	125
4.3.2. Результаты и обсуждение.....	129

ГЛАВА 5. ФЛУОРЕСЦЕНЦИЯ ДИОКСИДА АЗОТА КАК ФАКТОР, ВЛИЯЮЩИЙ НА ТОЧНОСТЬ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ ИЗОТОПОВ ЙОДА В МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ СРЕДАХ.....	145
5.1. Поглощение и релаксация возбужденных состояний NO_2	148
5.2. Определение коэффициентов и сечений поглощения NO_2	150

5.3. Исследование процессов безызлучательной релаксации возбужденных состояний NO ₂	154
5.3.1. Самогашение флуоресценции NO ₂	155
5.3.2. Тушение флуоресценции NO ₂	156
5.3.3. О влиянии давления и температуры на чувствительность детектирования NO ₂	161

ГЛАВА 6. ЛАЗЕРНЫЙ КОМПЛЕКС ДЛЯ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ ЙОДА В ГАЗОВЫХ СРЕДАХ В РЕАЛЬНОМ МАСШТАБЕ ВРЕМЕНИ.....

6.1. Схема лазерного комплекса. Чувствительность.....	163
6.2. Методы одновременного детектирования йода и оксидов азота.....	169
6.2.1. Детектирование I ₂ , NO ₂ и NO в естественной атмосфере.....	169
6.2.2. Детектирование I ₂ и оксидов азота в специальной атмосфере.....	173
6.3. Измерения концентраций изотопа йода-129 и диоксида азота в процессе азотно-кислого растворения облученного ядерного топлива.....	175

ГЛАВА 7. ПОГЛОЩЕНИЕ ЙОДСОДЕРЖАЩИХ ВЕЩЕСТВ В ЖИДКИХ ТЕХНОЛОГИЧЕСКИХ СРЕДАХ, ОБРАЗУЮЩИХСЯ ПРИ ПЕРЕРАБОТКЕ ОЯТ.....

7.1. Механизмы образования йодсодержащих веществ в жидких технологических средах.....	184
7.1.1. Растворение йода в воде.....	184
7.1.2. Взаимодействие йода с азотной кислотой.....	185
7.1.3. Взаимодействие йода со щелочью.....	186
7.2. Экспериментальные исследования спектров поглощения I ₂ , IO ₃ ⁻ , I ⁻ и I ₃ ⁻	187
7.2.1. Методика экспериментальных исследований.....	188
7.2.2. Поглощение аниона IO ₃ ⁻	190
7.2.3. Поглощение аниона I ⁻	193
7.2.4. Поглощение I ₂	197
7.2.5. Поглощение I ₃ ⁻	201

ГЛАВА 8. ОПТИЧЕСКИЕ СПОСОБЫ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ ЙОДСОДЕРЖАЩИХ ВЕЩЕСТВ В ЖИДКИХ СРЕДАХ.....	208
8.1. Детектирование йодсодержащих веществ в нейтральных жидких средах.....	208
8.2. Детектирование йодсодержащих веществ в кислых жидких средах.....	218
ГЛАВА 9. ИССЛЕДОВАНИЕ ФАКТОРОВ, ВЛИЯЮЩИХ НА ТОЧНОСТЬ И ЧУВСТВИТЕЛЬНОСТЬ СПОСОБОВ ДЕТЕКТИРОВАНИЯ ЙОДСОДЕРЖАЩИХ ВЕЩЕСТВ В ЖИДКИХ СРЕДАХ.....	228
9.1. Влияние соотношений концентраций йодсодержащих веществ в исследуемой смеси на точность их детектирования.....	229
9.1.1. Детектирование йодсодержащих веществ в нейтральных жидких средах.....	229
9.1.2. Детектирование йодсодержащих веществ в кислых и щелочных жидких средах.....	231
9.1.3. Учет влияния дополнительных факторов на точность способов детектирования йодсодержащих веществ.....	235
9.2. Учет влияния рассеивающих примесей на точность способов детектирования йодсодержащих веществ.....	239
9.2.1. Анализ процессов светорассеяния на взвесах, образующихся при переработке ОЯТ.....	239
9.2.2. Экспериментальные исследования рассеяния лазерного излучения на взвесах частиц.....	245
9.2.3. Оптическая схема с применением лазерных источников излучения.....	254
ЗАКЛЮЧЕНИЕ.....	257
СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ.....	259